



**HAL**  
open science

# L'hélium trois solide aux très basses températures. Etude neutronique

Jacques Bossy

► **To cite this version:**

Jacques Bossy. L'hélium trois solide aux très basses températures. Etude neutronique. Physique [physics]. Université scientifique et médicale et institut polytechnique de Grenoble, 1985. Français. NNT: . tel-03670337

**HAL Id: tel-03670337**

**<https://theses.hal.science/tel-03670337>**

Submitted on 23 May 2022

**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.

T0113  
1985/DS

1985.3  
BOS

# THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ SCIENTIFIQUE ET MÉDICALE  
ET L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE  
DE GRENOBLE

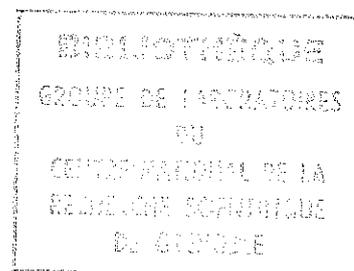
pour obtenir le grade

DOCTEUR EN PHYSIQUE

OPTION MATIÈRE ET RAYONNEMENT

par

Jacques BOSSY



## SUJET

L'HELIUM TROIS SOLIDE  
AUX TRES BASSES TEMPERATURES.  
ETUDE NEUTRONIQUE.

---

Soutenu le 29 Avril 1985 devant la commission d'Examen

Président B. CASTAING

Examineurs A. BENOIT

J.P. LAHEURTE

P. MERIEL

J. SCHWEIZER



## TABLE DES MATIERES

	<u>Pages</u>
Remerciements	
<u>CHAPITRE I : PROPRIETES DE L'<sup>3</sup>He SOLIDE</u> .....	1
1. PRESENTATION DE L'He SOLIDE .....	3
1.1. <sup>3</sup> Helium fluide quantique .....	3
1.2. Diagramme de phases : structures cristallines stables ..	3
2. MAGNETISME NUCLEAIRE DE L' <sup>3</sup> He SOLIDE .....	8
2.1. L' <sup>3</sup> He n'est pas décrit par un hamiltonien d'Heisenberg .	8
2.2. Diagramme de phases sous champ magnétique .....	10
2.3. Hypothèse sur la structure à bas champ .....	12
2.4. Le modèle d'échange à 4 spins .....	14
REFERENCES DU CHAPITRE I .....	17
<u>CHAPITRE II : HELIUM TROIS ET NEUTRONS</u> .....	19
1. DIFFRACTION DES NEUTRONS PAR L' <sup>3</sup> He SOLIDE .....	23
1.1. Diffusion de neutrons par la matière .....	23
1.2. Amplitude de diffusion .....	23
1.3. Diffusion cohérente et incohérente .....	26
1.4. Diffraction par le réseau cubique centré de l' <sup>3</sup> He .....	26
1.5. Diffraction par un monocristal .....	29
1.5.1. Intensité d'une raie .....	29
1.5.2. Modèle du cristal mosaïque .....	30
1.6. Estimation du signal magnétique pour la structure propo- sée par Osheroff .....	33
1.7. Tableaux de valeurs numériques : diffraction par l' <sup>3</sup> He solide sur la courbe de fusion .....	36
2. ABSORPTION DES NEUTRONS PAR L' <sup>3</sup> He .....	37
2.1. Conséquences sur le chauffage de <sup>3</sup> He à très basse température .....	38
2.2. Ralentissement des particules chargées .....	39
2.3. Thermométrie sur <sup>3</sup> He solide par neutrons polarisés .....	39
REFERENCES DU CHAPITRE II .....	47
<u>CHAPITRE III : TECHNIQUES EXPERIMENTALES</u> .....	49
1. MODES OPERATOIRES .....	51
1.1. Choix et mesure du volume molaire .....	51
1.2. Cristallisation - Orientation du cristal .....	56
1.3. Refroidissement du cristal au millikelvin .....	56
1.4. Recherche des réflexions de surstructure .....	57
2. APPAREILLAGE .....	58
2.1. Techniques de réfrigération .....	58
2.1.1. La réfrigération par dilution .....	58
2.1.2. Refroidissement par désaimantation nucléaire adiabatique .....	60
2.2. Cryogénie .....	64
2.2.1. Réfrigérateur à dilution .....	64
2.2.2. La désaimantation .....	66
3. LE GONIOMETRE DN2 .....	67
REFERENCES DU CHAPITRE III .....	73

	<u>Pages</u>
<u>CHAPITRE IV : LES CELLULES EXPERIMENTALES</u> .....	75
1. LES IMPERATIFS .....	77
1.1. Surface d'échange .....	77
1.2. Epaisseur .....	78
1.3. Tenue mécanique .....	79
2. TECHNOLOGIE DE FABRICATION .....	81
2.1. Les cellules argent .....	81
2.2. Les cellules cuivre .....	84
2.3. Les cellules "joint indium" .....	86
2.4. Les cellules quadrillées .....	86
3. LE FRITTAGE .....	86
REFERENCES DU CHAPITRE IV .....	93
<u>CHAPITRE V : CRISTALLISATION DE <math>1^3\text{He}</math> DANS DIFFERENTES CELLULES</u> .....	95
1. METHODE DE CRISTALLISATION .....	99
2. ORIENTATION DES CRISTAUX : RECHERCHE EXPERIMENTALE DES RE- FLEXIONS (h,k,l) .....	101
3. RESULTATS EXPERIMENTAUX SUR LA CRISTALLISATION .....	104
3.1. Premiers résultats en géométrie confinée .....	104
3.2. Expériences systématiques dans la poudre de cuivre ....	106
3.3. Cristallisation en géométrie massive .....	111
3.4. Cristallisation dans la poudre d'argent .....	117
3.5. Remarque sur la fusion des cristaux .....	120
4. MESURE DU FACTEUR DE DEBYE-WALLER .....	120
5. CONCLUSION .....	128
REFERENCES DU CHAPITRE V .....	129
<u>CHAPITRE VI : REFROIDISSEMENT DE <math>L^3\text{He}</math> SOLIDE A TRES BASSE TEMPERATURE</u> .....	131
1. POUDRE DE CUIVRE, POUDRE D'ARGENT .....	135
2. REFROIDISSEMENT DANS LA POUDRE D'ARGENT NON FRITTEE .....	138
3. REFROIDISSEMENT D'UNE CELLULE INHOMOGENE.....	140
REFERENCES DU CHAPITRE VI .....	143
<u>CONCLUSION</u> .....	145

## REMERCIEMENTS

*Le travail présenté dans cette thèse est le résultat d'une collaboration entre le Centre de Recherches sur les Très Basses Températures et le Laboratoire de Diffraction Neutronique du C.E.N.G.*

*Je remercie Monsieur D. Thoulouze, Directeur du Laboratoire de m'avoir accueilli au C.R.T.B.T. Messieurs J. FLOUQUET, A. BENOIT et J. SCHWEIZER m'ont initié à la physique des très basses températures et à la diffraction de neutrons et guidé tout au long de cette étude. J'ai été entraîné par leur dynamisme et leur enthousiasme face aux difficultés expérimentales ; qu'ils reçoivent ici l'expression de ma profonde reconnaissance.*

*Monsieur le Professeur B. CASTAING me fait l'honneur de présider le jury de cette thèse ; au cours de nombreuses discussions, il a su me faire partager son intérêt pour l'étude des solides quantiques. Qu'il reçoive mes plus sincères remerciements.*

*Monsieur le Professeur J.P. LAHEURTE ainsi que Monsieur P. MERIEL ont bien voulu participer au jury et se déplacer jusqu'à Grenoble ; je suis touché de l'intérêt qu'ils portent à mon travail ; je leur adresse mes plus vifs remerciements.*

*J'adresse ma profonde sympathie à tout le personnel du réacteur Mélusine ; j'ai apprécié sa gentillesse et son efficacité.*

*Le laboratoire des très basses températures, chercheurs et techniciens, m'a accueilli dans une ambiance chaleureuse et ouverte. Que tous trouvent l'expression de ma reconnaissance amicale.*

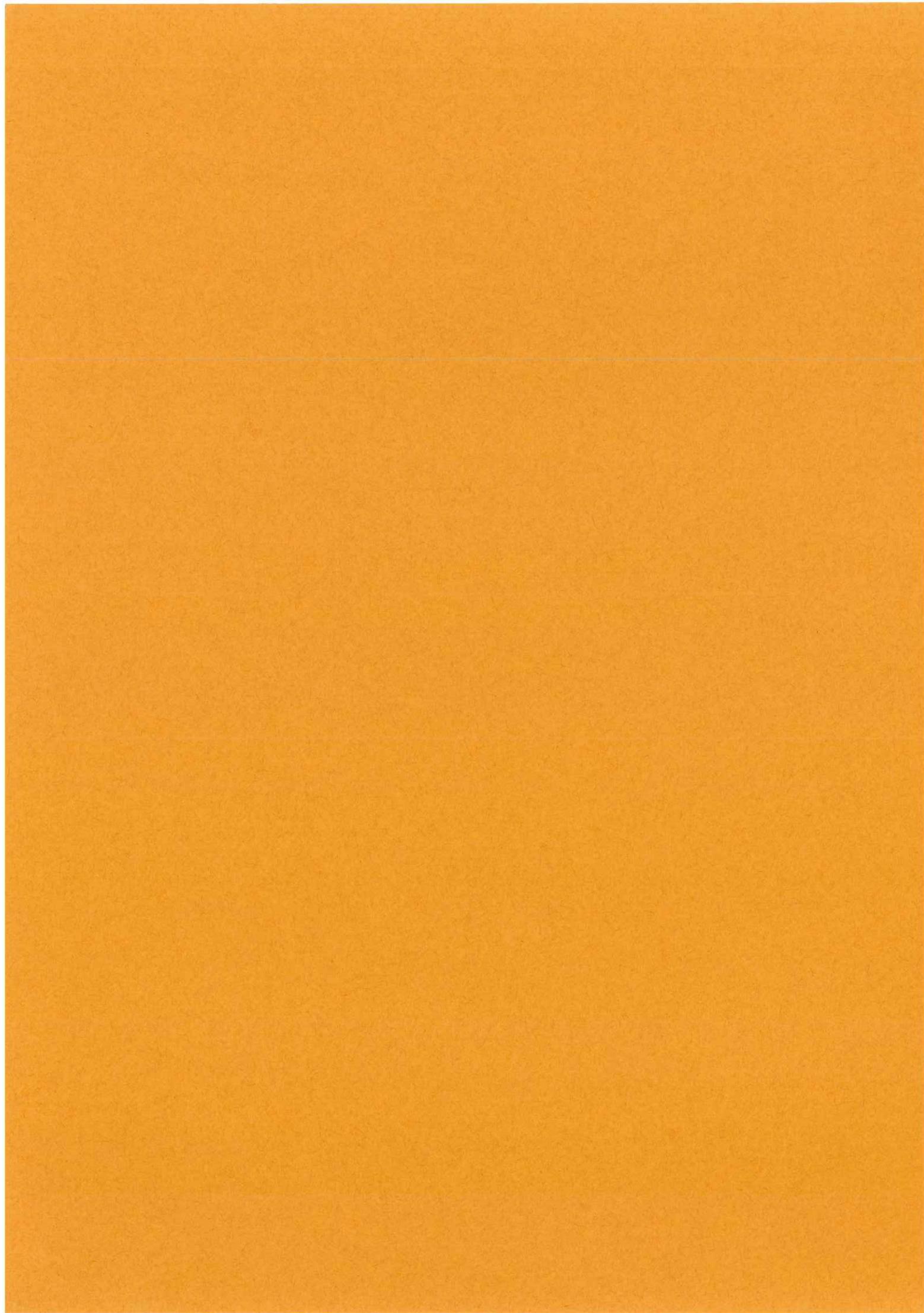
*Madame Danièle DEVILLERS a assuré la dactylographie de ce mémoire avec beaucoup d'amabilité ; je l'en remercie cordialement.*



CHAPITRE I

---

PROPRIETES DE L'<sup>3</sup>He SOLIDE



## 1. PRESENTATION DE L'<sup>3</sup>He SOLIDE

### 1.1. <sup>3</sup>He fluide quantique

L'hélium trois, à cause de sa faible masse, présente des propriétés singulières à basse température, non interprétables dans le cadre de la mécanique classique, en l'occurrence, l'existence d'une phase liquide à 0 K. Lorsque la température tend vers zéro, la dimension du paquet d'ondes traduisant la délocalisation des particules devient comparable aux longueurs caractéristiques, à savoir la distance moyenne entre particules et la portée du potentiel d'interaction.

Le potentiel d'interaction entre deux atomes d'<sup>3</sup>He représenté figure 1.1 présente une faible partie attractive ( $\epsilon \approx 10$  K) et une forte partie répulsive (énergie supérieure à 27 eV) donnant un "coeur dur" de diamètre  $\sigma_H \approx 2.14 \text{ \AA}$  rigoureusement impénétrable. Du fait de la faible masse des atomes au minimum de ce potentiel ( $r_0 \approx 2.9 \text{ \AA}$ ), l'énergie cinétique des atomes est supérieure à la partie attractive de ce potentiel. Il en résulte que la distance d'équilibre entre atomes ( $R_0 = 3.65 \text{ \AA}$  pour <sup>3</sup>He) est plus grande que la distance d'équilibre classique  $r_0 \approx 2.9 \text{ \AA}$  au point de fusion. Ainsi, la partie attractive du potentiel semble jouer un rôle beaucoup moins important que le "coeur dur". Il en résulte qu'un modèle de sphères dures quantiques décrit assez bien les propriétés énergétiques des atomes d'<sup>3</sup>He.

### 1.2. Diagramme de phases : structures cristallines stables

Les diagrammes de phases (variables Pression-Température) comparés de <sup>3</sup>He et <sup>4</sup>He sont représentés à la figure 1.2 A l'état

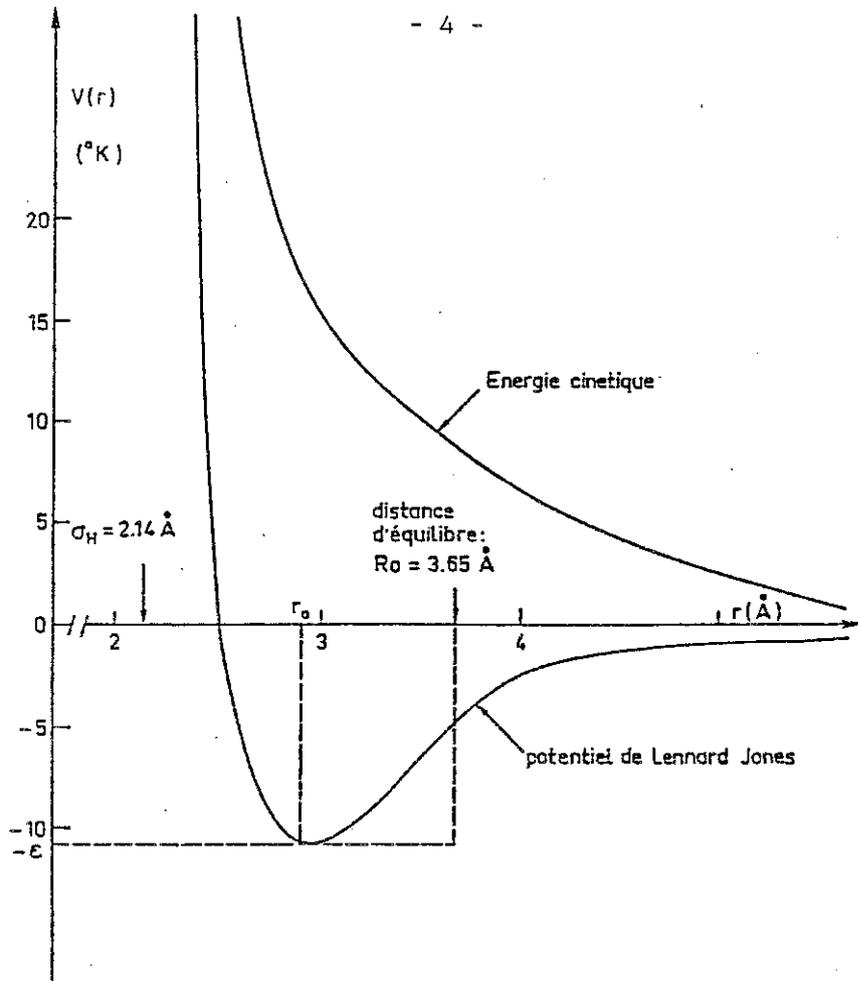


Figure 1.1  
Potentiel d'interaction entre deux atomes d'hélium.

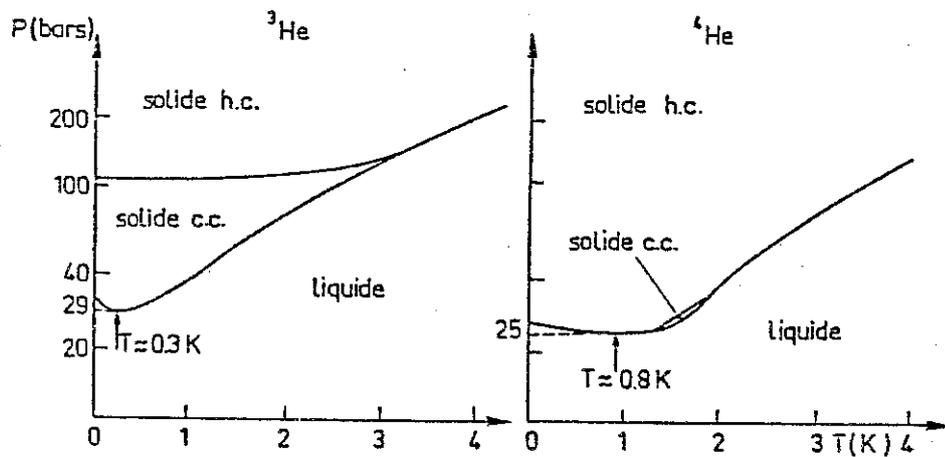


Figure 1.2  
Diagramme de phases des deux isotopes de l'hélium en coordonnées semi-logarithmiques.

solide, les deux isotopes peuvent se présenter, soit en phase cubique centrée (c.c) ou hexagonale compacte (h.c), (ou cubique face centrée à  $P > 2000$  atm). Alors que pour  $^4\text{He}$  le domaine de stabilité de la phase c.c est extrêmement réduit, il occupe, pour  $^3\text{He}$  une importante partie du diagramme. Il a été souligné que l'existence de cette phase non compacte, peu éloignée d'une instabilité donnant la phase h.c pouvait avoir des liens étroits avec les mécanismes d'échange mais ces liens n'ont pas réellement été élucidés jusqu'ici<sup>5</sup>.

Dans le cadre de cette thèse, nous ne considérons que la phase cubique centrée de l'hélium trois et, plus particulièrement, ses phases magnétiques à très basse température.

La maille élémentaire est un cube d'arête  $a$  comprenant deux atomes, l'un au centre, l'autre à un des sommets. Sur la courbe de fusion à 34 atmosphère et à 0 K, le volume molaire du solide  $^3\text{He}$  vaut  $V_M = 24.2 \text{ cm}^3/\text{mole}$  avec un paramètre de réseau correspondant  $a$ , égal à :

$$a = \frac{(2V_M)^{1/3}}{N_A} \quad (N_A \text{ est le nombre d'Avogadro})$$
$$a = 4.32 \text{ \AA}$$

Une particularité importante de la courbe de fusion-solidification de  $^3\text{He}$  est la présence d'un minimum assez accusé à ( $T_m = 0,32 \text{ K}$  et  $P_m = 28,9 \text{ atm}$ ). L' $^3\text{He}$  liquide, à basse température, a une faible entropie variant linéairement avec la température : caractéristique d'un liquide de Fermi. Pour le solide, l'entropie est essentiellement magnétique ; elle correspond au désordre des spins nucléaires. Pour des températures supérieures à la transition vers un état magnétique ordonné ( $T \gg 1 \text{ mK}$ ), elle est  $k_B \ln 2$

par atome. Il en résulte que, pour  $T < T_m$ , l'entropie du liquide est inférieure à celle du solide, ainsi le liquide est plus ordonné que le solide ! (cf. Fig. 1.3). La relation de Clapeyron-Clausius

$$\left(\frac{dP}{dT}\right)_{\text{Courbe Fusion}} = \frac{S_l - S_s}{V_l - V_s}; \quad \begin{array}{l} S \text{ désigne l'entropie, } V \text{ le volume, les} \\ \text{indices } l \text{ et } s \text{ se rapportent respective-} \\ \text{ment au liquide et au solide.} \end{array}$$

implique  $\frac{dP}{dT} < 0$  pour  $T < T_m$ , le changement de signe ayant lieu à  $T_m$ .

Cette propriété est à l'origine de l'"effet Pomeranchuk"<sup>1</sup> utilisé comme méthode de réfrigération : en comprimant adiabatiquement un mélange de liquide et solide, on accroît le volume de solide ; à température égale, l'entropie du solide étant plus forte que celle du liquide à partir duquel il est formé, il faut que la température diminue pour que l'entropie de l'ensemble reste constante (dans la mesure où cette compression est adiabatique).

La courbe de fusion de l'hélium 4 possède aussi un minimum beaucoup moins prononcé et d'origine différente : à basse température, les seules excitations présentes dans les deux phases, liquide et solide sont les phonons. Dans le liquide, il n'y a que des phonons longitudinaux alors que dans le solide il y a des phonons longitudinaux et transversaux. Il en résulte que l'entropie du liquide est inférieure à celle du solide tant que la contribution des rotons reste négligeable.

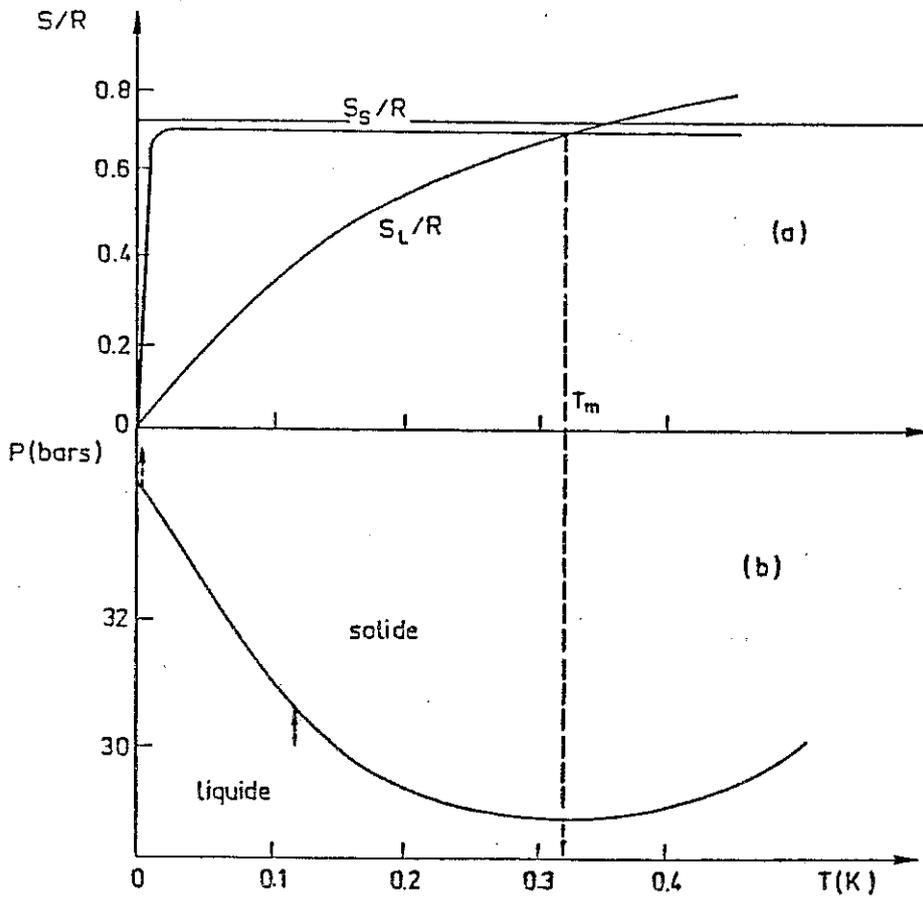


Figure 1.3

- a) Entropie  $S_L$  et  $S_S$  du solide  $^3\text{He}$  sur la courbe de fusion.
- b) Courbe de fusion de  $^3\text{He}$  ; en dessous de  $T \sim .3$  K, la pente est négative puisque  $S_L < S_S$ .

## 2. MAGNETISME NUCLEAIRE DE L'<sup>3</sup>He SOLIDE

Le magnétisme de l'<sup>3</sup>He solide peut sembler a priori comme un cas simple où un seul type de particules est concerné. Cependant, le fort déplacement de point zéro des atomes rend le processus d'échange entre atomes importants. Les propriétés de fermion de leur spin 1/2 conduisent à une forte interaction effective entre spins ; l'ordre nucléaire apparait au mK, soit trois ordres de grandeur supérieure au couplage classique entre noyaux d'origine dipolaire.

Limité aux hautes températures ( $T > 100$  mK), l'<sup>3</sup>He solide semblait décrit par l'image simple d'un hamiltonien d'échange antiferromagnétique d'Heisenberg<sup>2</sup>. Les expériences de très basses températures ont rapidement montré que ce dernier ne pouvait rendre compte des faits essentiels, notamment la réduction de la température d'ordre par un facteur deux<sup>3</sup>. Ce désaccord a conduit à un nouvel effort théorique reprenant les considérations de Thouless sur l'échange multiple<sup>4,5</sup>. Nous allons nous intéresser plus spécifiquement aux diagrammes de phase champ-température et montrer l'intérêt d'expériences neutroniques pour trancher la nature réelle des phases ordonnées.

### 2.1. L'<sup>3</sup>He n'est pas décrit par un hamiltonien d'Heisenberg

L'échange est une fonction rapide du volume, c'est-à-dire que la température d'ordre nucléaire décroît rapidement loin du point de fusion. Les considérations suivantes concernent la phase solide sur la courbe de fusion. Comme le montre les figures 1.3 et 1.4, les courbes expérimentales d'aimantation réalisées par

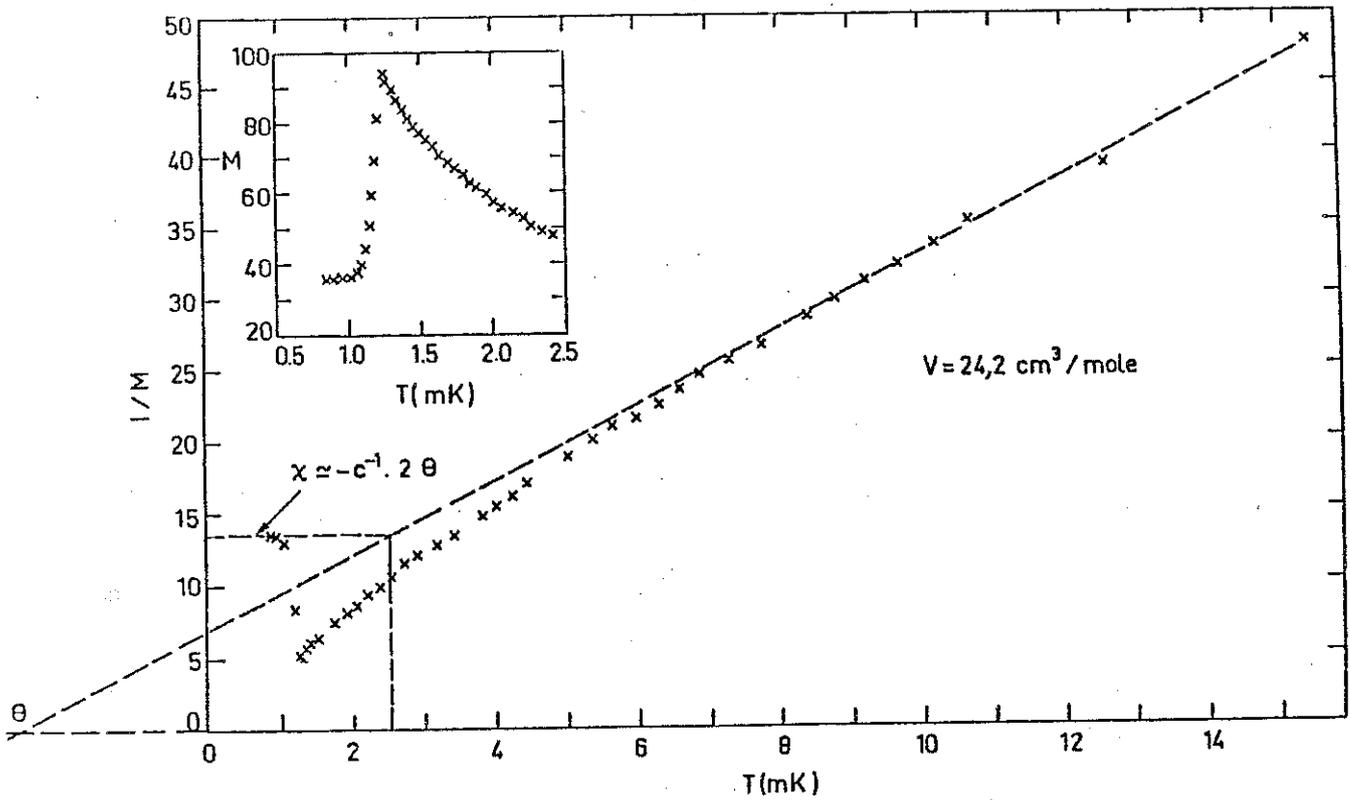


Figure 1.4  
Aimantation  $M$  et son inverse  $M^{-1}$  en fonction de la température d'après Prewitt et Goodkind<sup>3</sup>.

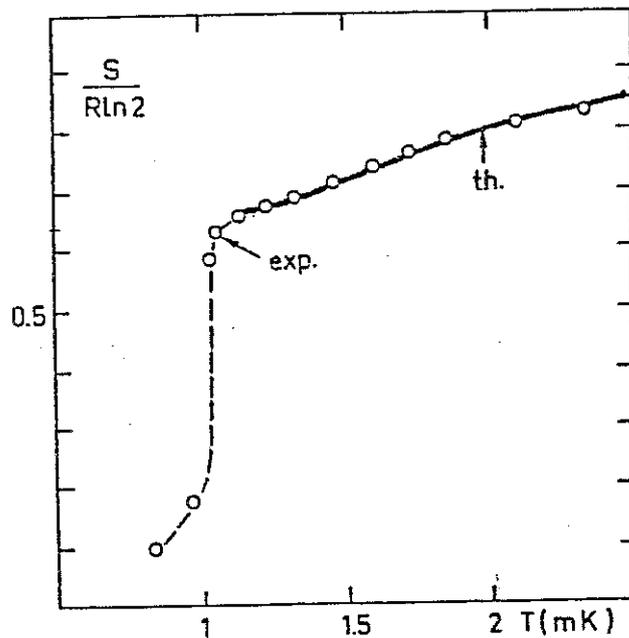


Figure 1.5  
Entropie de l' $^3\text{He}$  au voisinage de la transition magnétique. Les cercles indiquent les valeurs mesurées par Kummer et al.<sup>6</sup>. La courbe est parfaitement ajustée par un développement haute température (Roger<sup>4</sup>).

Prewitt et Goodkind<sup>3</sup> et d'entropie faites par Kummer et al.<sup>6</sup> font apparaître une transition de phase du premier ordre à  $T_N \sim 1$  mK. La structure de la phase ordonnée est apparemment de type antiferromagnétique. L'ordre de grandeur des interactions dipolaires étant le microkelvin, celles-ci n'interviennent pas dans les mécanismes provoquant la transition. Elles ne sont responsables que de l'anisotropie. Le comportement de la susceptibilité est singulier. Pour des composés antiferromagnétiques usuels de type Heisenberg comme  $\text{KNiF}_3$ , au voisinage de la transition, la susceptibilité diminue par rapport à la loi de Curie-Weiss. Elle augmente dans le cas de  $^3\text{He}$  comme en témoigne la figure 1.5.

Un développement hautes températures ajusté sur la courbe d'aimantation de la figure 1.3 donne, pour l'inverse de la susceptibilité  $\chi(T)$ , l'expression suivante :

$$\chi^{-1}(T) = C^{-1} \left( T - \theta + \frac{B'}{T} \right)$$

où  $C$  est la constante de Curie,  $\theta$  une température de Curie-Weiss égale à  $-2.6$  mK et  $B' = -2.7$  mK<sup>2</sup>. Cette valeur négative de  $B'$  est en contradiction avec un modèle d'Heisenberg, même étendu aux nièmes voisins.

## 2.2. Diagramme de phase sous champ magnétique

La figure 1.6 représente le diagramme de phase (H,T) : une phase I ordonnée bas champ ( $H < 4.1$  kG), une phase II ordonnée haut champ et la phase paramagnétique (III). Au-dessus de  $4.1$  kG apparaît une phase II à forte composante ferromagnétique, la transition II-III est observée du second ordre jusqu'au plus haut champ actuellement appliqué ( $72$  kOe)<sup>7</sup>. L'aspect inhabituel du diagramme à haut

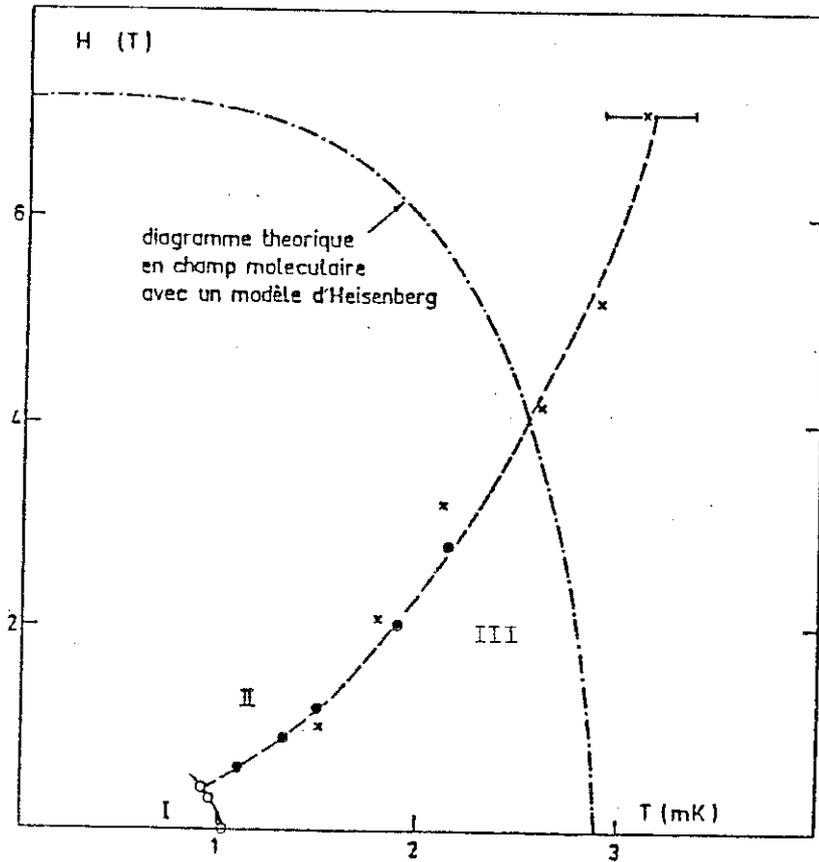


Figure 1.6

Diagramme de phases magnétiques de  $^3\text{He}$  solide. Les cercles blancs et noirs représentent respectivement les transitions du 1er et 2ème ordre observées par Adams et al ; les croix représentent les mesures de Godfrin et al<sup>7</sup>. Le diagramme expérimental est en contradiction avec les prévisions théoriques d'un modèle d'Heisenberg.

champ ( $H > 4$  kG) est de présenter une ligne  $T_{C_2}(H)$  de transition croissante avec  $H$ . Ceci est en contradiction flagrante avec le modèle d'Heisenberg limité aux interactions entre premiers voisins  $J$  qui donne, pour  $\theta = 4 J \cong -2.9$  mK, le diagramme de champ moléculaire représenté en traits parallèles sur la figure 1.6. Comme il est usuel dans la plupart des composés antiferromagnétiques, la ligne de transition  $T_C(H)$  décroît avec  $H$ .

### 2.3. Hypothèses sur la structure bas champ

Actuellement, la seule expérience permettant de proposer un schéma pour la structure bas champ est l'expérience de résonance antiferromagnétique réalisée par Osheroff et al.<sup>8</sup> sur un monocristal d' $^3\text{He}$ . Le premier point important est l'observation d'une fréquence de résonance  $\Omega_0$  en champ nul :  $\Omega_0/2\pi = 825$  kHz.

La structure magnétique est donc fortement anisotrope car, dans le cas d'une symétrie cubique,  $\Omega_0 \rightarrow 0$ . Le deuxième point important est l'observation en fonction du champ magnétique de trois branches de résonance (fig. 1.7). Le cristal présentant seulement trois directions possibles pour l'orientation des spins, l'axe d'anisotropie ne peut être que les axes quaternaires  $[100]$ ,  $[010]$  ou  $[001]$ . Tout autre axe donnerait plus de trois directions possibles,  $[111]$  quatre directions et  $[110]$  six directions.

Parmi les structures simples correspondant à un axe de symétrie dirigé suivant  $(100)$ , Osheroff et al. ont proposé une structure de vecteur  $\vec{K} = \frac{\pi}{a}(0,0,1)$ , c'est-à-dire une maille doublée dans la direction  $Oz$ <sup>8</sup>. Les plans cristallins perpendiculaires à  $\vec{K}$  sont ferromagnétiques. En désignant par up et down les 2 directions possibles des spins, les plans se succèdent dans la direction de  $\vec{K}$  suivant le cycle up, up, down, down. Cette phase a été

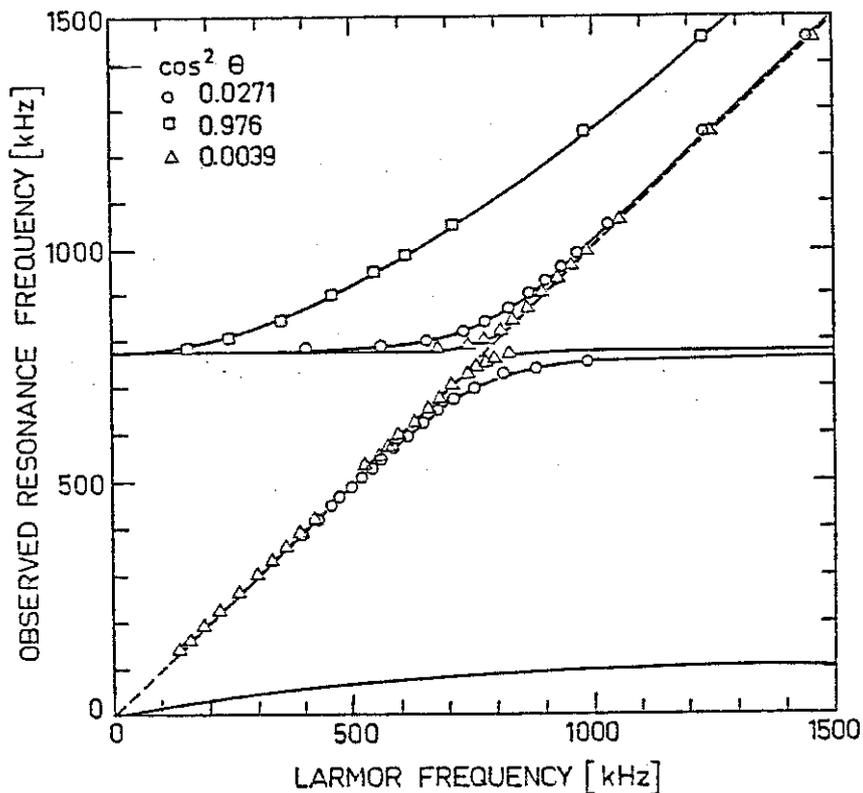


Figure 1.7  
 Spectre de RMN pour un monocristal d' $^3\text{He}$  contenant trois domaines d'après Osheroff<sup>8</sup>.

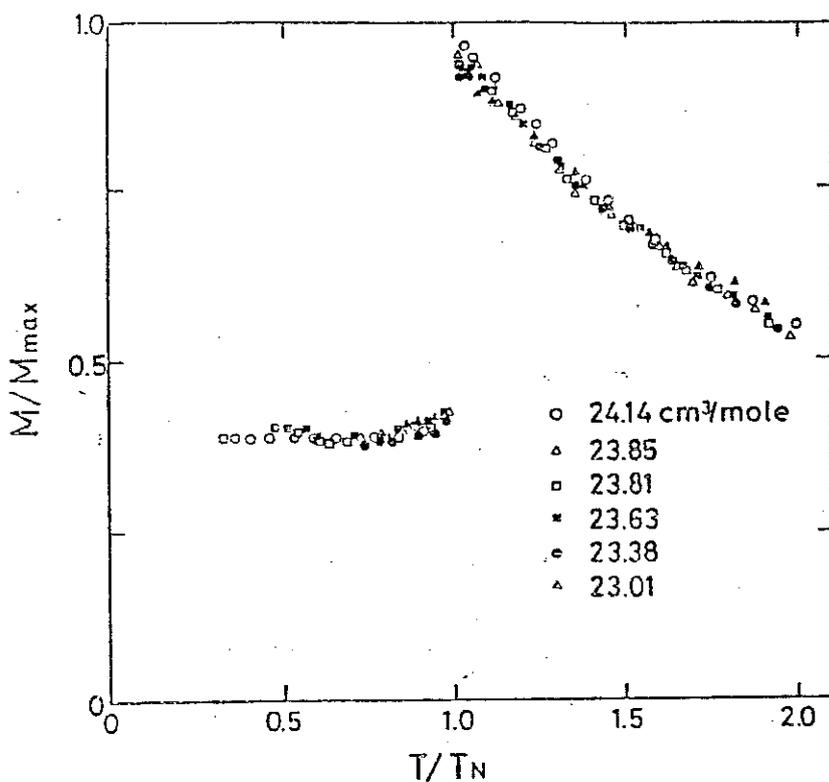


Figure 1.8  
 Courbes d'aimantation réalisées par Hata et al.<sup>9</sup> pour différents volumes molaires.

appelée "uudd". La valeur théorique de la fréquence de résonance antiferromagnétique en champ nul  $\frac{\Omega_0}{2\pi} = 875$  kHz, calculée à partir de l'énergie d'anisotropie dipolaire, est proche de la valeur expérimentale.

Roger et Delrieu<sup>4</sup> ont calculé l'énergie dipolaire et la fréquence de résonance pour des phases similaires à la phase uudd où n plans successifs perpendiculaires à (0,0,1) ont tous leurs spins up et les n plans suivants tous leurs spins down. La variation relative de fréquence de résonance par rapport à celle de la phase uudd est 6 % pour n = 4 et 7.4 % pour n  $\rightarrow \infty$  (cette limite n  $\rightarrow \infty$  est celle de domaines ferromagnétiques alternés macroscopiquement,  $\Omega_0$  étant donné par le champ démagnétisant).

Les mesures de résonance ne permettent donc pas d'identifier avec certitude la phase ordonnée. Toute ambiguïté devrait être levée par une expérience de diffraction neutronique. C'est là l'objet des expériences neutroniques que nous avons entreprises sur l'<sup>3</sup>He. Avant d'aborder les possibilités et problèmes expérimentaux ainsi posés, citons enfin le stade actuel des modèles proposés pour décrire le magnétisme de l'<sup>3</sup>He solide.

#### 2.4. Le modèle d'échange à 4 spins

Depuis quelques années, un certain nombre de modèles théoriques sont apparus dans la littérature. Citons d'abord les modèles basés sur le couplage de l'Hamiltonien d'Heisenberg avec un autre système : les phonons<sup>10</sup> ou les défauts<sup>11</sup>. Ces derniers n'interprètent pas correctement les résultats expérimentaux présentés précédemment. Le seul modèle en accord avec ces résultats

est le modèle présenté par Delrieu et Roger, connu sous le titre "modèle d'échange à quatre spins"<sup>4,5</sup>. La température de Curie-Weiss  $|\theta_{CW}| \sim 3$  mK, caractéristique des fréquences d'échange, est très petite devant la température de Debye  $\theta_D = 18$  K, représentant le mouvement de point zéro. On peut considérer que, malgré cette forte amplitude, les atomes restent localisés autour de leurs sites et s'échangent "rarement".

Pour des fermions, tenant compte du principe de Pauli, on montre<sup>13</sup> que les niveaux d'énergie du système sont représentés par un Hamiltonien de spin :

$$\mathcal{H}_{ex} = \sum_P (-1)^P J_P \cdot P$$

$P$  : opérateur de permutation à  $N$  variables agissant sur les variables de spin.

$J_P$  : intégrale d'échange.

Pour les systèmes magnétiques électroniques classiques, les atomes définissent le réseau et seuls les électrons s'échangent d'un atome à l'autre. Seules les transpositions  $P_{ij}$  ont un poids important, ce qui conduit à l'Hamiltonien :

$$\mathcal{H}_{ex} = - \sum_{ij} J_{ij} P_{ij}$$

La situation est très différente pour le magnétisme nucléaire de l'hélium trois solide. Les particules qui s'échangent sont les atomes constituant le réseau cristallin. Les mécanismes d'échange vont être gouvernés par les corrélations entre coeurs durs.

Les deux idées essentielles du modèle sont les suivantes :

- 1) Des arguments géométriques simples, basés sur les propriétés de sphères dures des atomes d'hélium, montrent que les échanges à quatre particules sont au moins aussi favorables que les transpositions.
- 2) La présence de termes d'ordre quatre par rapport aux variables de spin, provenant des échanges à quatre particules, introduit dans l'énergie libre des termes d'ordre quatre pouvant induire une transition du 1er ordre.

Les propriétés de la phase paramagnétique et de la phase à bas champ sont bien décrites dans un modèle à deux paramètres comprenant l'échange triple  $J_t$  et un échange à 4 spins planaire  $K_p$  (voir Roger et al.<sup>5</sup>).

Il est intéressant de noter que la variation de  $T_N$  en volume correspond bien à l'estimation du coefficient de Grüneisen magnétique  $\Omega_M$ , estimé par des mesures plus anciennes dans le régime paramagnétique. S'il est phénoménologiquement nécessaire d'introduire 2 paramètres pour décrire les interactions magnétiques, microscopiquement, une seule variable semble suffisante pour décrire l'évolution sous pression du magnétisme de l'<sup>3</sup>He. Nous montrons à la figure 1.8 les courbes d'aimantations obtenues par Hata<sup>9</sup> pour différents volumes molaires.

REFERENCES DU CHAPITRE I

- 1 - O.V. LOUNASMAA : Experimental principles and Methods below  
1 K, Academic Press Inc. London (1974).
- 2 - A. LANDESMAN, Ann. Phys. 1973-1974, t. 8, pp. 53-79.
- 3 - T.C. PREWITT et J.M. GOODKIND, Phys. Rev. Lett. 39 (1977) 1283.
- 4 - M. ROGER, Thèse Orsay 1980.
- 5 - M. ROGER, J.H. HETERINGTON, J.M. DELRIEU, Reviews of Modern  
Physics, Vol. 55, N° 1, January 1983.
- 6 - R.B. KUMMER, R.M. MUELLER et E.D. ADAMS, J. Low Temp. Phys. 27  
(1977) 379.
- 7 - H. GODFRIN, Thèse Grenoble 1981.
- 8 - D.D. OSHEROFF, M.C. CROSS et D.S. FISHER, Phys. Rev. Lett. 44  
(1980) 792.
- 9 - T. HATA, S. YAMASATII, Y. TANAKA, T. KODAMA et T. SHIGI, J.  
Magn. Magn. Mat. (1983) 737.
- 10 - C.P. BEAN et D.S. ROBBELL, Phys. Rev. 126 (1962) 104.
- 11 - M. PAPOULAR, J. Low Temp. Phys. 31 (1978) 595.

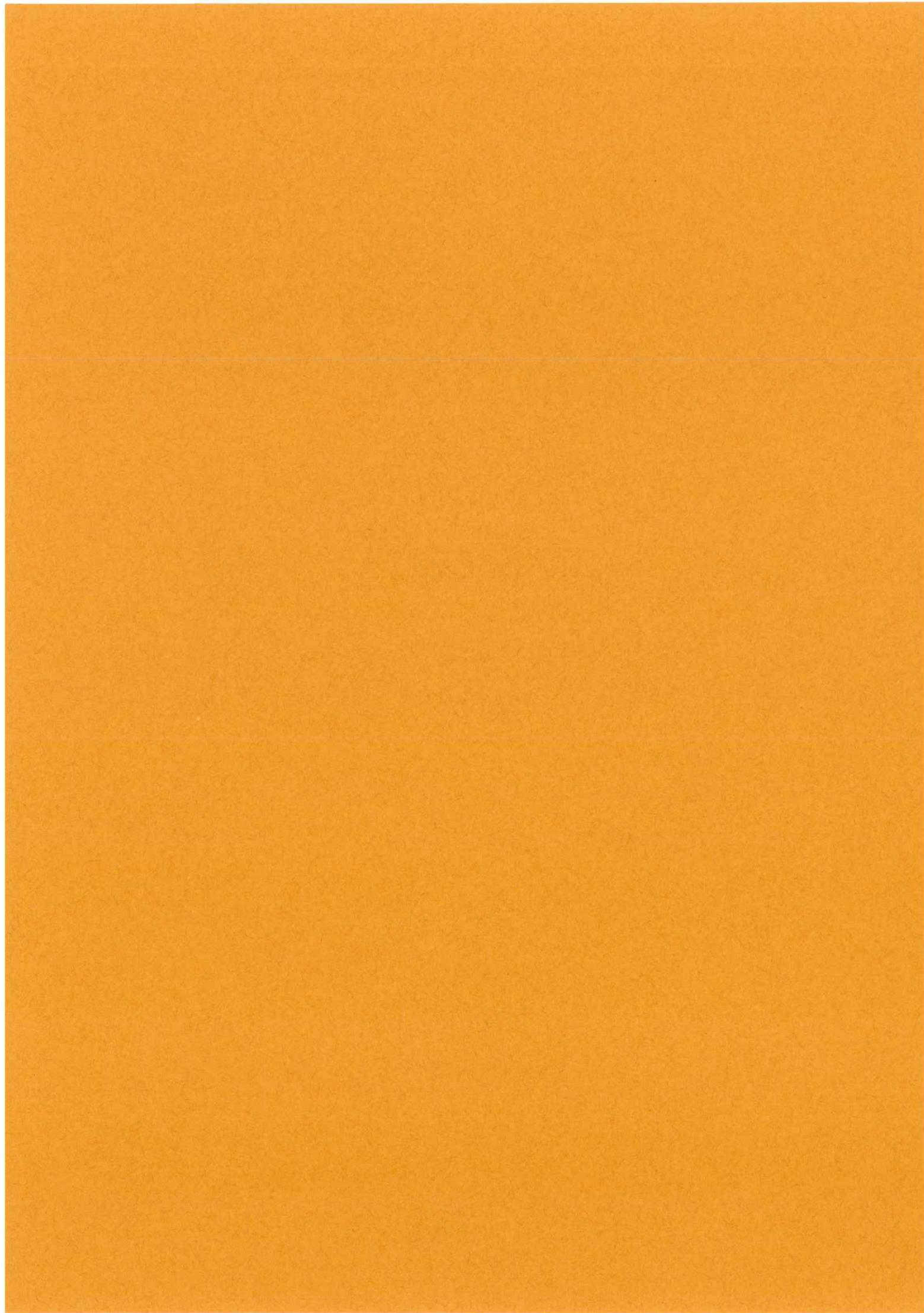


CHAPITRE II

HELIUM TROIS

ET

NEUTRONS



Le but de ce chapitre est d'indiquer les paramètres essentiels intervenant dans l'étude neutronique de l' $^3\text{He}$ . Les points majeurs sont :

- l'estimation des signaux de diffraction avec la valeur comparée des raies de Bragg et de la raie de surstructure magnétique de type  $\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow$ ,
- l'utilisation de la forte section efficace de capture comme moyen d'étude de la thermalisation de l'échantillon.



## 1. DIFFRACTION DES NEUTRONS PAR L'<sup>3</sup>He SOLIDE

### 1.1. Diffusion des neutrons par la matière

Lorsqu'un rayonnement (par exemple des neutrons) tombe sur un solide, on observe :

- a) qu'une partie plus ou moins importante du rayonnement a disparu ; c'est le phénomène d'absorption ;
- b) une autre partie est transmise sans déviation ;
- c) une troisième partie a été plus ou moins déviée de sa trajectoire : c'est la diffusion. Une fraction est concentrée dans certaines directions de l'espace liées à la structure cristalline du solide ; il s'agit des pics de Bragg. Une autre fraction est diffusée dans tout l'espace : c'est la diffusion diffuse.

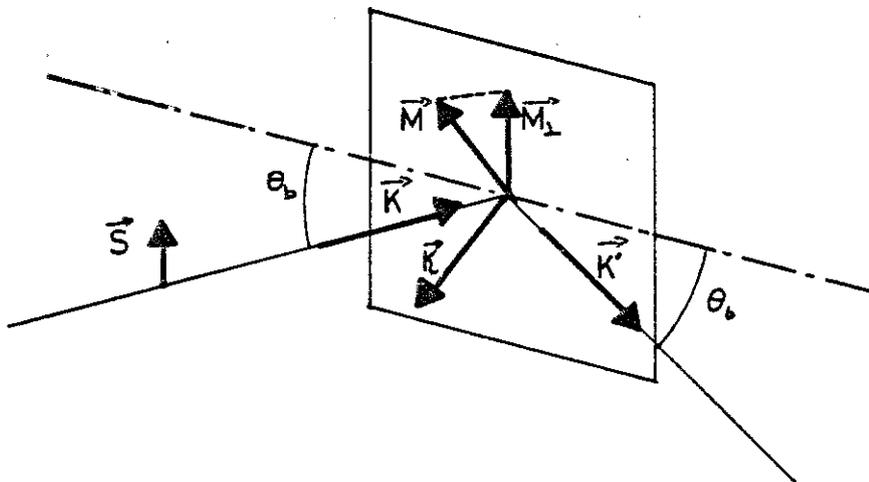
### 1.2. Amplitude de diffusion

Les rayons X interagissent avec le nuage électronique dont la dimension est comparable à celle de la longueur d'onde du rayonnement. L'amplitude de diffusion contient un facteur de forme qui dépend fortement de l'angle d'incidence. Avec les neutrons, le potentiel d'interaction neutron-noyau a un rayon d'action très petit vis à vis de la longueur d'onde du rayonnement. Autrement dit, le facteur de forme est constant et l'interaction est caractérisée par une amplitude de diffusion  $b$  mesurée expérimentalement car la nature exacte du potentiel d'interaction neutron-noyau n'est pas connue théoriquement.

La diffusion des neutrons par la matière est beaucoup plus complexe que celle des rayons X dans la mesure où elle fait intervenir la nature isotopique, le spin électronique et nucléaire de l'atome diffuseur. L'amplitude de diffusion d'un atome est donnée par l'expression<sup>1</sup> :

$$b = \bar{b} + 2A\vec{M}_{\perp} \cdot \vec{s} + 2B\vec{I} \cdot \vec{s}$$

$2A\vec{M}_{\perp} \cdot \vec{s}$  est le terme d'interaction magnétique où A est une constante et  $\vec{M}_{\perp}$  est la projection de l'aimantation  $\vec{M}$  de l'atome sur le plan perpendiculaire au vecteur de diffusion  $\vec{K}$ ,  $\vec{s}$  est le spin du neutron.



Cette contribution du moment magnétique n'intervient pas dans le cadre de nos études où les atomes diffuseurs ne portent pas de moment électronique mais elle est à l'origine d'un procédé d'obtention de neutrons polarisés. Il existe des cristaux ferromagnétiques pour lesquels l'aimantation  $\vec{M}$  a une valeur telle que l'intensité des raies de diffraction dans l'un des deux états,  $\vec{s}$  parallèle

à  $\vec{M}$  et  $\vec{s}$  antiparallèle à  $\vec{M}$ , soit prépondérante et l'autre nulle, ce qui assure la polarisation du faisceau réfléchi par le cristal.

$\bar{b} + 2B\vec{I}\cdot\vec{s}$  traduit l'interaction nucléaire :

$\bar{b}$  :

L'interaction neutron (spin 1/2) + noyau (spin I) implique une des deux configurations  $I + 1/2$  ou  $I - 1/2$  du spin total du système composé<sup>2</sup>. Chaque état J du spin composé, auquel est associé des longueurs de diffusion  $b^+$  et  $b^-$ , a un nombre d'orientations possibles  $2J + 1$  (soit  $2I + 2$  et  $2I$ ) conduisant à des probabilités

$$\omega^+ = \frac{I+1}{2I+1} \text{ et } \omega^- = \frac{I}{2I+1}$$

Pour  $1^3\text{He}$   $b^+ = 0,43 \cdot 10^{-12}$  cm ;  $b^- = 0,87 \cdot 10^{-12}$  cm d'après Alfimenkov<sup>3</sup>  
( $I = 1/2$ )

d'où  $\bar{b} = \omega^+ b^+ + \omega^- b^- = 0,54 \cdot 10^{-12}$  cm

$2B\vec{I}\cdot\vec{s}$  :

$\vec{I}$  : spin nucléaire

$\vec{s}$  : spin du neutron

$$B = (b^+ - b^-) / 2I + 1 = -0,22 \times 10^{-12} \text{ cm}$$

### 1.3. Diffusion cohérente et incohérente

Le milieu diffractant réel est en général formé d'isotopes différents portant des spins nucléaires d'orientation le plus souvent aléatoire. Lorsque la matière est ordonnée apparaissent des phénomènes d'interférences entre les amplitudes diffusées par des atomes : une partie du rayonnement diffusé est cohérent et se trouve concentré dans des directions de l'espace bien définies. L'intensité diffractée correspondante est la même que celle qui serait produite par un système d'atomes identiques auxquels serait associée une amplitude de diffusion moyenne  $\bar{b}$  sur les spins et les isotopes du milieu réel. L'intensité cohérente est proportionnelle à la section efficace de diffraction cohérente  $\sigma_c$  :

$$\sigma_c = 4\pi(\bar{b})^2$$

$$\bar{b} = \sum_i p_i \bar{b}_i \quad (\text{pour un ensemble d'isotopes ayant chacun une proportion } p_i)$$

Le rayonnement incohérent qui est dû à la dispersion des longueurs de diffusion réelles autour de  $\bar{b}$  est caractérisé par une section efficace de diffraction incohérente  $\sigma_{inc} = 4\pi[\overline{b^2} - (\bar{b})^2]$ . Pour l' $^3\text{He}$  solide, dans le cas d'un désordre total nucléaire,  $\sigma_{inc}$  s'écrit :

$$\sigma_{inc} = I(I+1)B^2$$

### 1.4. Diffraction par le réseau cubique centré de l' $^3\text{He}$

Conséquence de la périodicité du réseau cristallin, la loi de Bragg exprime la relation entre l'angle de diffraction  $\theta_b$ , la distance interréticulaire  $d_{hkl}$  et la longueur d'onde du rayonnement  $\lambda$  :

$$2d_{hkl} \cdot \sin\theta_b = n\lambda, \quad n \text{ entier}$$

Dans l'expression de l'intensité de diffraction intervient le carré du module du facteur de structure qui contient l'information relative à la position et à la nature des atomes formant la maille élémentaire du réseau. Les autres termes qui apparaissent ne dépendent que du cristal (poudre ou monocristal, extinction, absorption, ...)

$$F_{hkl}^2 = e^{-2W} \left[ \sum_{\text{maille}} b \exp\left(2\pi i \frac{hx}{a_0} + \frac{ky}{b_0} + \frac{lz}{c_0}\right) \right]^2$$

$b$  est l'amplitude de diffusion cohérente du noyau atomique.

$(x, y, z)$  sont les coordonnées des atomes de la maille élémentaire dans le réseau direct.

$a_0, b_0, c_0$  sont les paramètres de maille.

$(hkl)$  sont les directions du réseau réciproque.

$e^{-2W}$  est le facteur de Debye-Waller qui apporte une correction à l'intensité des raies en tenant compte des mouvements des atomes autour de leur position d'équilibre.

Nous ne nous intéresserons qu'à la région du diagramme de phase pour laquelle l'hélium 3 est cubique centré. Le facteur de structure  $F_{h,k,l}$  définissant les raies de structure pour un cubique centré est

$$F_{h,k,l} = b [1 + \exp(i\pi(h+k+l)) e^{-W}]$$

Les premières raies et leur multiplicité sont  $(110)^{12}$ ,  $(200)^6$ ,  $(211)^{24}$ .

#### Facteur de Debye-Waller

Dans le cadre d'une approximation harmonique, la perturbation au premier ordre sur l'intensité d'une raie  $(h,k,l)$  est donnée par<sup>2</sup> :

$$e^{-2W} = \exp \left[ -\frac{4\pi^2}{3} \left\langle \left( \frac{\Delta x}{d_{h,k,\ell}} \right)^2 \right\rangle \right]$$

$\Delta x$  est le déplacement quadratique moyen des atomes. Lorsque  $T \ll \theta_D$  ( $\theta_D$  : température de Debye).

$$\langle \Delta x^2 \rangle = \frac{9h^2}{16\pi^2 mk\theta_D} \quad (m : \text{masse de l'atome})$$

$$e^{-2W} = \exp \left( -\frac{3h^2}{4mk\theta_D} \frac{1}{d_{hk\ell}^2} \right) = \exp \left( -\frac{3h^2}{mk\theta_D} \frac{\sin^2 \theta_b}{\lambda^2} \right)$$

Les raies seront d'autant plus affaiblies que la diffraction a lieu aux grands angles.

Dans le cadre de cette approximation et pour l' $^3\text{He}$  solide sur la courbe de fusion, le facteur de Debye-Waller est égal à

$$e^{-2W} = \exp \left[ -100.2 \frac{\sin^2 \theta_b (\text{\AA}^2)}{\lambda^2} \right]$$

masse d'un atome d' $^3\text{He}$  =  $5.0 \times 10^{-24}$  g  
température de Debye :  $\theta_D = 19$  K.<sup>7</sup>

Les valeurs numériques de  $e^{-2W}$  sont calculées pour les différentes réflexions (hkl) au paragraphe 7.

Les déplacements des atomes autour de leurs positions d'équilibre calculés sont de l'ordre de 35 % du paramètre de maille, ce qui est trop important pour que l'approximation harmonique soit valable. Le calcul du facteur de Debye-Waller doit s'appuyer sur une théorie anharmonique des mouvements atomiques en tenant compte des

potentiels d'interaction propre à l'hélium par suite du comportement quantique important lié au recouvrement des fonctions d'onde.

### 1.5. Diffraction par un monocristal

#### 1.5.1. Intensité d'une raie de structure

Nous observons les raies de structure nucléaire avec un appareil appelé "diffractomètre bras levant" qui sera décrit au chapitre suivant. La mesure de l'intensité d'une raie de Bragg se fait grâce à la méthode du cristal tournant<sup>2</sup>.

$$P = \int N(\omega) d\omega$$

où  $N$  est le nombre de neutrons comptés par unité de temps et pour un angle  $\omega$ , angle qui mesure la rotation du cristal autour de l'axe du goniomètre.

La position du compteur repérée par les angles  $\theta$  et  $\mu$  est alors fixée dans une direction  $(hkl)$  du réseau réciproque. L'ouverture du compteur est telle que ce dernier doit voir passer toute la tache de diffraction en tournant le cristal d'un angle  $\Delta\omega$ .

L'intensité théorique calculée par la théorie cinématique est, en négligeant les phénomènes d'extinction :

$$P = \frac{V}{v_0} \phi \frac{\lambda^3}{\sin 2\theta_b} |F_n(\kappa)|^2 \times A \times \exp^{-\alpha}$$

- $V$  : volume du cristal
- $v_0$  : volume de la maille
- $F_n(\kappa)$  : facteur de structure
- $\theta_b$  : angle de Bragg
- $A$  : facteur géométrique
- $\phi$  : flux de neutrons (neutrons.s<sup>-1</sup>.cm<sup>-2</sup>)

En prenant comme dimensions du cristal celles correspondant à la surface de collimation du faisceau ( $10 \times 30 \text{ mm}^2$ ) et l'épaisseur de la cellule  $80 \mu$ , l'intensité intégrée prévue sur la raie (110) est

$$P \cong 9 \text{ n/s (avec un flux } \phi = 10^5 \text{ ns}^{-1}\text{cm}^{-2}\text{)}$$

### 1.5.2. Modèle du cristal mosaïque

Un cristal réel est trop gros pour être traité par la théorie cinématique et en général trop imparfait pour que la diffraction puisse être décrite par la théorie dynamique. Cette imperfection peut être décrite par le modèle du cristal mosaïque<sup>5</sup> : il est alors possible d'employer la théorie cinématique en introduisant la notion d'extinction.

#### a) *Le cristal mosaïque*

Le cristal est défini comme une juxtaposition de petits blocs parfaits légèrement désorientés, suffisamment petits pour que, dans chacun d'eux la théorie cinématique puisse s'appliquer. Deux paramètres décrivent ce modèle :  $t$  la dimension des blocs et  $g$  qui détermine la distribution  $W(\Delta)$  des orientations des petits blocs, suivant une loi gaussienne par exemple.

$$W(\Delta) : \sqrt{2}g \exp(-2\pi g^2 \Delta^2) \text{ avec } g = \frac{1}{2\sqrt{\pi}\eta}$$

$\eta$  représente la mosaïque du cristal.

b) *Extinction secondaire*

Le cristal comporte un nombre important de blocs qui se trouvent simultanément en position de réflexion. Un même faisceau incident pourra donner plusieurs diffractions successives, son intensité étant alors chaque fois affaiblie. C'est ce que l'on appelle l'extinction secondaire. Les différents blocs du cristal mosaïque ne présentent pas de cohérence entre eux. L'extinction se traduit par une diminution de l'intensité mesurée  $P_1$  par rapport à la puissance cinématique  $P$  d'un facteur  $y$  ( $y \leq 1$ )

$$P_1 = P \cdot y$$

Dans le cas de géométrie simple, on peut se ramener pour l'extinction secondaire à des formules du type

$$y_S = 1 + A_1 X_S + A_2 X_S^2 + \dots$$

avec

$$X = Q \alpha T_N$$

$$Q = \frac{|F^2| \lambda^3}{v_1^2 \sin^2 \theta_b}$$

$T_N$  : trajet moyen effectif du neutron dans l'ensemble du cristal.

Les coefficients  $A_i$ , dépendent de la forme du cristal, et  $\alpha$ , s'expriment en fonction des paramètres  $t$  et  $g$  de l'extinction. Dans le cas d'une distribution gaussienne

$$\alpha = \left[ \left( \frac{\lambda}{t \sin^2 \theta} \right)^2 + \left( \frac{1}{\sqrt{2} g} \right)^2 \right]^{-1/2}$$

D'après cette formule, il existe deux causes d'extinction : la dimension des blocs  $t$  et la mosaïque représentée par  $g$ . Suivant leur importance Zachariasen (1967) a proposé un classement.

type I  $\frac{\lambda}{t \sin^2 \theta} < \frac{1}{g}$  l'extinction est due à la finesse de la mosaïque

type II  $\frac{\lambda}{t \sin^2 \theta} > \frac{1}{g}$  l'extinction est créée par la taille des blocs

c) *Extinction primaire*

L'extinction secondaire provient du couplage des intensités entre les différents blocs du cristal mosaïque. Mais, à l'intérieur du bloc parfait, il peut se produire un couplage des amplitudes qui provoque une diminution de l'intensité diffractée ; ceci correspond à l'extinction primaire qui doit être traitée par la théorie dynamique. Ce calcul n'est, en général, pas possible et on admet que, si cette extinction est suffisamment faible, on peut employer le formalisme de l'extinction secondaire au premier ordre. En supposant les blocs sphériques, on obtient :

$$Y_p = 1 - X_p$$

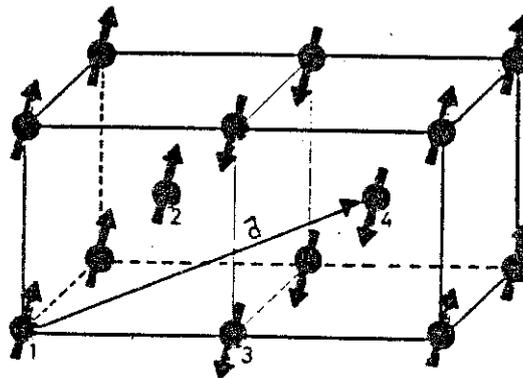
$$X_p = 2/3 Q \frac{\sin 2\theta b t^2}{\lambda}$$

où  $t$  définira la distance d'un bloc parfait, c'est-à-dire d'un cristal en l'absence de défauts.

1.6. Estimation du signal magnétique pour la structure proposée par Osheroff

Essayons d'estimer l'intensité relative des signaux nucléaires et magnétiques. Pour la structure magnétique proposée par Osheroff, la maille du cube est doublée dans la direction (100) ; la maille magnétique contient donc quatre atomes par maille.  $\vec{d}$  est la position de l'atome dans la maille (figure 2.1).

Figure 2.1  
Structure "uudd"



Le facteur de structure s'écrit :

$$F(\kappa) = \sum_{\vec{d}} b_{\vec{d}} \exp(i\vec{\kappa} \cdot \vec{d}) \exp(-W)$$

avec  $b_{\vec{d}} = \bar{b} + 2B\sigma I_{\vec{d}}$

$\kappa$  est le vecteur de diffusion

$\langle \sigma \rangle$  et  $\langle I \rangle$  sont les valeurs moyennes du spin du neutron et du noyau

$$|F(\kappa)|^2 = e^{-2W} \left| \sum_{\vec{d}, \vec{d}'} (\bar{b} + B\sigma I_{\vec{d}}) (\bar{b} + B\sigma I_{\vec{d}'}) \exp(i\vec{\kappa} \cdot \vec{d}) \exp(i\vec{\kappa} \cdot \vec{d}') \right|^2$$

On obtient en moyennant sur les états de spin du neutron et des noyaux

$$|F(\kappa)|^2 = e^{-2W} \left| \frac{1}{b} \left[ \sum_d e^{i\vec{\kappa}\vec{d}} \right]^2 + 4B^2 \langle \sigma^2 \rangle \left[ \sum_d \langle I_d \rangle e^{i\vec{\kappa}\vec{d}} \right]^2 + 4Bb \langle \sigma \rangle \left( \sum_d \langle I_d \rangle e^{i\vec{\kappa}\vec{d}} \right) \left( \sum_d e^{i\vec{\kappa}\vec{d}} \right) \right|$$

Les raies de diffraction sont indexées par rapport à la maille double.

Pour des neutrons non polarisés  $\langle \sigma \rangle = 0$  les contributions cohérente et incohérente s'ajoutent simplement.

Dans notre cas, nous observons la "raie magnétique" en neutrons polarisés.

Le carré du facteur de structure s'écrit donc :

$$|F(hk\ell)|^2 = e^{-2W} \left| \frac{1}{b^2} \left[ (1 + \exp i\pi h) (1 + \exp i\pi (\frac{h}{2} + k + \ell)) \right]^2 + B^2 \langle I^2 \rangle \left[ (1 - \exp i\pi h) (1 + \exp i\pi (\frac{h}{2} + k + \ell)) \right]^2 + 4Bb \langle \sigma \rangle \left[ (1 + \exp i\pi (\frac{h}{2} + k + \ell)) (1 + \exp i\pi h) (1 - \exp i\pi h) \right] \right|$$

La contribution des termes croisés s'annule dans les 2 cas à cause du produit des facteurs de structure. Les raies nucléaires apparaissent pour h pair ; les raies magnétiques pour h impair.

Le carré du facteur de structure pour la raie (0,1,1) vaut

$$|F_{011}|^2 = e^{-2W} \frac{1}{b^2} \times 16$$

Le carré du facteur de structure pour la raie magnétique (1,0,0) vaut :

$$|F_{100}|^2 = e^{-2W} B^2 \langle I^2 \rangle \times 8$$

L'intensité de la raie magnétique  $I_m$  sera calculée en tenant compte du nombre de domaines  $n_D$  (3 dans le cas de  $1^3\text{He}$ ) :

$$I_m \propto F_{hkl}^2 \frac{1}{\sin 2\theta_b} \times \frac{1}{n_D}$$

Le tableau ci-dessous résume la valeur des différents paramètres.

Réflexion	011	100
$\theta_b$ ( $\lambda = 1.74$ )	16.57	5.78
$1/\sin 2\theta_b$	1.83	4.99
$1/n_D$	—	1/3
$F_{hkl}^2$ ( $10^{-30} \text{ m}^2$ )	31.25	6.85

Les facteurs de Debye-Waller étant calculés à partir d'une approximation harmonique, le rapport des intensités vaut

$$\frac{I_{011}}{I_{100}} \cong 5$$

L'intensité attendue pour la raie magnétique est donc 5 fois plus faible que pour une raie nucléaire (110). Nous n'avons pas tenu compte de l'absorption qui peut être favorable ou défavorable selon la position de la cellule dans le faisceau.

Pour estimer la contribution du signal magnétique, nous avons construit la maille magnétique qui n'a pas la symétrie cubique et contient quatre atomes par maille. La maille aurait pu être doublée suivant la direction (010) ou (001) pour tenir compte des trois domaines. Dans la suite, par raison de commodité, nous indexerons les réflexions de Bragg par rapport à la maille cubique de  $1^3\text{He}$  contenant deux atomes par maille ; les réflexions magnétiques indexées par rapport à cette maille deviennent  $(1/2, 0, 0)$ ,  $(0, 1/2, 0)$  ou  $(0, 0, 1/2)$ .

1.7. Tableaux de valeurs numériques : diffraction par l'<sup>3</sup>He solide sur la courbe de fusion

a (Å)	$\bar{b}$ ( $10^{-15}$ m)	B ( $10^{-15}$ m)
4.32	5.4	- 2.2

(a)

Réflexions	$e^{-2W}$	$F_N^2$	$F_M^2$	$d_{hkl}$
110	.067	7.8	—	3.05
200	$4 \cdot 10^{-3}$	$4.6 \cdot 10^{-1}$	—	2.16
211	$10^{-3}$	$1.15 \cdot 10^{-1}$	—	1.93
1/200	.708	—	1.37	8.64

$$\lambda = .872 \text{ \AA}$$

(b)

Réflexions	$\theta_b$	$1/\sin 2\theta_b$	P
110	8.20	3.54	18.30
200	11.64	2.53	.77
211	13.04	2.27	.17
1/200	2.89	9.93	9.02

$$\lambda = 1.74 \text{ \AA}$$

(c)

Réflexions	$\theta_b$	$1/\sin 2\theta_b$	P
110	16.57	1.83	75.19
200	23.75	1.35	3.27
211	26.79	1.24	.75
1/200	5.78	4.99	36.0

Le tableau (a) représente, pour les différentes réflexions  $hkl$ , le facteur de Debye-Waller, le carré des facteurs de structure nucléaire ( $F_N$ ) ou magnétique ( $F_M$ ) et la distance  $d_{hkl}$  des plans réticulaires. Les tableaux (b) et (c) spécifient pour 2 longueurs d'onde les angles de Bragg, le facteur de Lorentz et l'intensité des raies correspondantes en unité arbitraire dans l'hypothèse de caractéristiques de faisceaux constants.

## 2. ABSORPTION DES NEUTRONS PAR L'<sup>3</sup>He

La matière est environ 1000 fois moins absorbante aux neutrons qu'aux rayons X. Quelques exceptions toutefois : l'hélium trois, qui est utilisé comme le bore dans les compteurs à gaz pour neutrons, le cadmium, le samarium et le gadolinium pour ne citer que les principaux.

Du point de vue quantitatif, le phénomène d'absorption d'un neutron par un noyau d'<sup>3</sup>He est un processus aléatoire de type Poisson caractérisé par une section efficace  $\sigma_0$  qui varie linéairement avec la longueur d'onde  $\lambda$  des neutrons.

$$\text{Pour l}'^3\text{He, } \sigma_0/\lambda = 2962 \pm 5 \text{ barn/\AA} \quad (1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2)$$

Le coefficient d'absorption  $\alpha$  est défini par la quantité

$$\alpha = \sigma_a n x$$

$n$  est la densité de l'absorbant  $n = N_A/V_M$

$N_A$  est le nombre d'Avogadro

$V_M$  est le volume molaire

$x$  est l'épaisseur de l'échantillon.

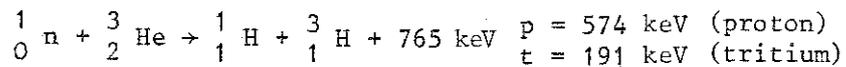
Le nombre de neutrons qui traversent l'échantillon vaut :

$$N = N_0 e^{-\alpha}$$

$N_0$  est le nombre de neutrons incidents.

2.1. Conséquence sur le chauffage de  $^3\text{He}$  à très basse température

Le processus d'absorption d'un neutron par l'hélium trois se fait selon le schéma suivant :



Le chauffage occasionné par les neutrons restreint considérablement le temps pendant lequel le solide reste dans la phase ordonnée. C'est un des problèmes posé par les expériences neutroniques au-dessous du millikelvin.

La chaleur latente de la transition magnétique a été mesurée par Halperin<sup>4</sup> et vaut :

$$Q_0 = 2.52 \text{ mJ/mole}$$

Le temps  $t_0$  que met le solide pour passer la transition en présence d'un flux de neutrons est :

$$t_0 = \frac{Q_0}{q_0} \frac{\alpha}{1 - e^{-\alpha}} \frac{1}{N_A N_0 \sigma_0}$$

$q_0$  : énergie dégagée par réaction nucléaire =  $1.2 \cdot 10^{-13} \text{ J}$

$\alpha$  : coefficient d'absorption  $\alpha \cong 1$

$\sigma_0$  : section efficace d'absorption 3000 barn

$N_0$  : nombre de neutrons/seconde  $\sim 10^4 \text{ n/s}$

On attend, dans les conditions expérimentales réelles, pour  $\lambda \cong 1 \text{ \AA}$

$t_0 \cong 2000 \text{ s}$
----------------------------

## 2.2. Ralentissement des particules chargées

Les produits de fission proton et tritium émis avec une énergie de l'ordre du MeV sont arrêtés sur des distances différentes dans l'argent et l'hélium trois . Pour les protons de 0,6 MeV le parcours de ralentissement  $R_p$  est donné dans le tableau suivant<sup>5</sup> :

	$R_p$ (750 keV) $\mu\text{m}$
$^3\text{He}$ solide	5.7
cuivre	4.7
Argent	4.5

On s'attend donc, par des simples considérations de libre parcours moyen, à ce que l'énergie libérée soit absorbée 10 fois mieux dans l'argent que dans l'hélium trois.

## 2.3. Thermométrie sur $^3\text{He}$ solide par neutrons polarisés

L'idée de base est de vérifier si notre cryogénie est performante et de mesurer pendant combien de temps le solide peut rester dans la phase ordonnée sous irradiation. Nous avons mis au point une méthode originale de thermométrie qui consiste à mesurer la polarisation de l' $^3\text{He}$  en utilisant la transmission de neutrons polarisés. Le principe repose sur le fait que la section efficace d'absorption  $\sigma_{\pm}$  dépend de l'état composite de spin total neutron-noyau. Appelons  $\sigma_{+}$  et  $\sigma_{-}$  les sections efficaces de capture pour l'état de moment cinétique total  $J = 1$  et  $J = 0$ .

Nous allons relier la polarisation du faisceau transmis à la polarisation nucléaire de la cible. La polarisation incidente d'un faisceau de neutrons est définie par la quantité

$$f_n^o = \frac{\omega_+^o - \omega_-^o}{\omega_+^o + \omega_-^o}$$

$\omega_{+,-}^o$  sont les flux de neutrons parallèle et antiparallèle au champ magnétique appliqué sur l'échantillon.

La section efficace d'absorption peut s'écrire sous la forme :

$$\sigma_a = \sigma_o + f_N f_n^o \sigma_p$$

- $f_N$  étant la polarisation de la cible d' $^3\text{He}$   
 $\sigma_o$  étant la section efficace d'absorption pour des neutrons non polarisés et  
 $\sigma_p$  étant le terme qui dépend de la polarisation des neutrons. Ce dernier facteur provient du fait que l'absorption d'un neutron par un noyau d' $^3\text{He}$  dépend de l'état de spin total neutron-noyau.

$\sigma_o$  et  $\sigma_p$  s'expriment en fonction des sections de l'état triplet ( $\sigma^+$ ) et de l'état singulet ( $\sigma^-$ ) composés de la même manière que  $\bar{b}$  et  $B$  dépendent de  $b^+$  et  $b^-$ .

$$\sigma_o = \frac{I+1}{2I+1} \sigma^+ + \frac{I}{2I+1} \sigma^-$$

$$\sigma_p = \frac{I}{2I+1} (\sigma^+ - \sigma^-)$$

La perte de neutrons dans le faisceau transmis s'écrit pour des neutrons polarisés parallèles ou antiparallèles au champ magnétique appliqué.

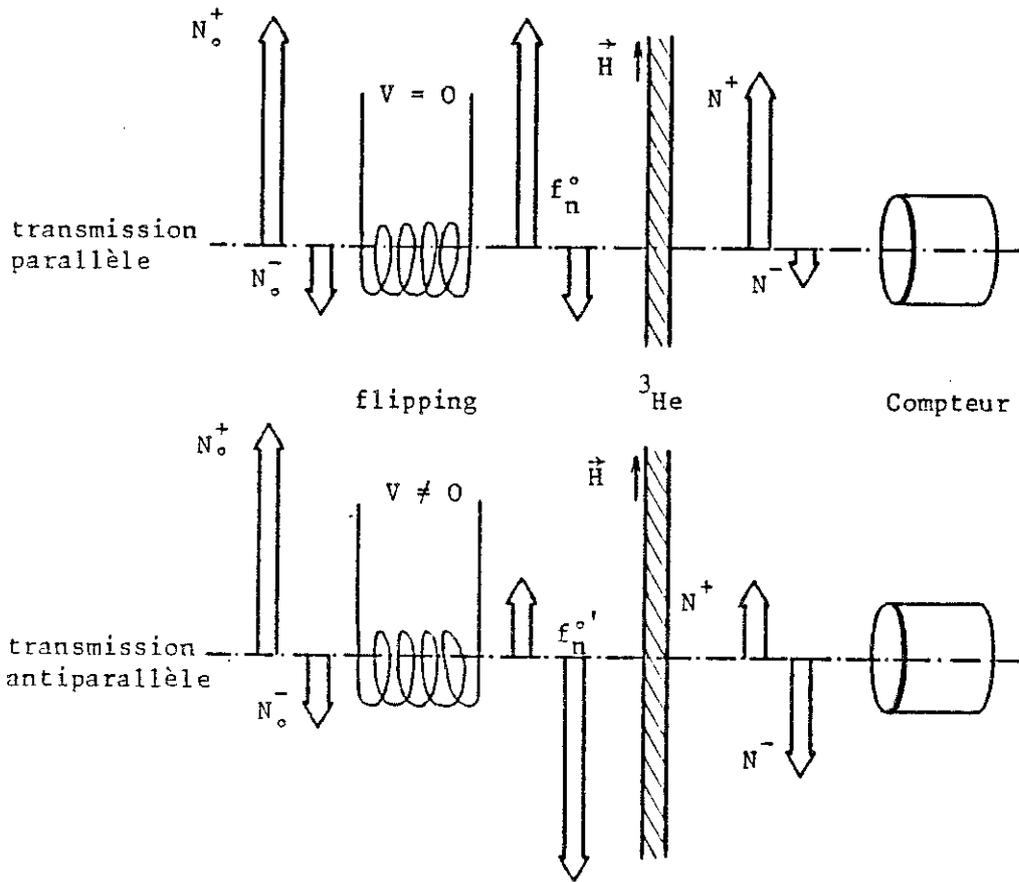


Figure 2.2  
Transmission de neutrons polarisés à travers une cible d' $^3\text{He}$  polarisée

$$dN^+ = -\omega_+ n \sigma_0 (1 + p f_N)$$

$$dN^- = -\omega_- n \sigma_0 (1 - p f_N)$$

avec  $p = \sigma p / \sigma_0$  et  $n$  le nombre de noyaux d' $^3\text{He}$  composant la cible égal à  $n = \frac{N_A}{V_M} \times S \times x$  ( $S$ ,  $x$ ,  $V_M$  et  $N_A$  étant respectivement la surface d'irradiation, l'épaisseur de l'échantillon, le volume molaire et le nombre d'Avogadro).

Si on considère un faisceau incident de neutrons (direction parallèle dans la figure 2.2) comportant  $N_0^+$  nombre de neutrons parallèles à  $H$  et  $N_0^-$  nombre de neutrons antiparallèles à  $H$ , à la traversée de la cible d' $^3\text{He}$ , ces quantités deviennent :

$$N^+ = N_0^+ e^{-\alpha(1 + p f_N)}$$

$$N^- = N_0^- e^{-\alpha(1 - p f_N)}$$

Compte tenu de la polarisation  $f_0$  du faisceau incident, le taux de comptage en *transmission parallèle*

$$\tau_p = \frac{N^+ + N^-}{N_0^+ + N_0^-}$$

est relié à  $f_N$  et  $f_n^0$  par la relation

$$\tau_p = e^{-\alpha} [\text{ch} \alpha f_N + f_n^0 \text{sh} (-\alpha p f_N)]$$

En inversant la polarisation du faisceau avec une efficacité de flipping  $\phi$  ( $\sim 1$  pour notre expérience), on va observer la transmission antiparallèle (figure 2.2). La nouvelle polarisation  $f_n^{01} = -\phi f_n^0$ , la *transmission antiparallèle* s'écrit

$$\tau_a = e^{-\alpha} [\text{ch} \alpha p f_N - \phi f_N^{\circ} \text{sh}(-\alpha p f_N)]$$

L'efficacité de transmission  $\epsilon$ , définie par le rapport

$$\epsilon = \frac{\tau_p - \tau_a}{\tau_p + \tau_a}$$

égale à

$$\epsilon = \frac{(1+\phi) f_N^{\circ} \text{th}(-\alpha p f_N)}{2+(1-\phi) f_N^{\circ} \text{th}(-\alpha p f_N)}$$

est une mesure de la polarisation de la cible. Expérimentalement  $\phi \sim 1$  et la cible est faiblement polarisée.

En 1966, Passel et Shermer<sup>6</sup> ont mesuré la transmission de neutrons polarisés à travers une cible d'hélium trois polarisé. En mesurant simultanément la susceptibilité et l'efficacité en transmission, ils ont pu montrer que  $\sigma_p/\sigma_o \cong -1$ . La section efficace de capture de la réaction nucléaire neutron-hélium trois est due uniquement à l'état de composition des moments cinétiques  $J = 0$

$$\sigma_+ = 0$$

L'état triplet  $J = 1$  est transparent, l'état singulet  $J = 0$  est absorbant.

Nous utiliserons cette transparence des neutrons dans l'état triplet pour réaliser une mesure in situ de la température des noyaux d'<sup>3</sup>He, c'est-à-dire que nous étudierons la transmission d'un faisceau polarisé de neutrons à travers une cible polarisée.

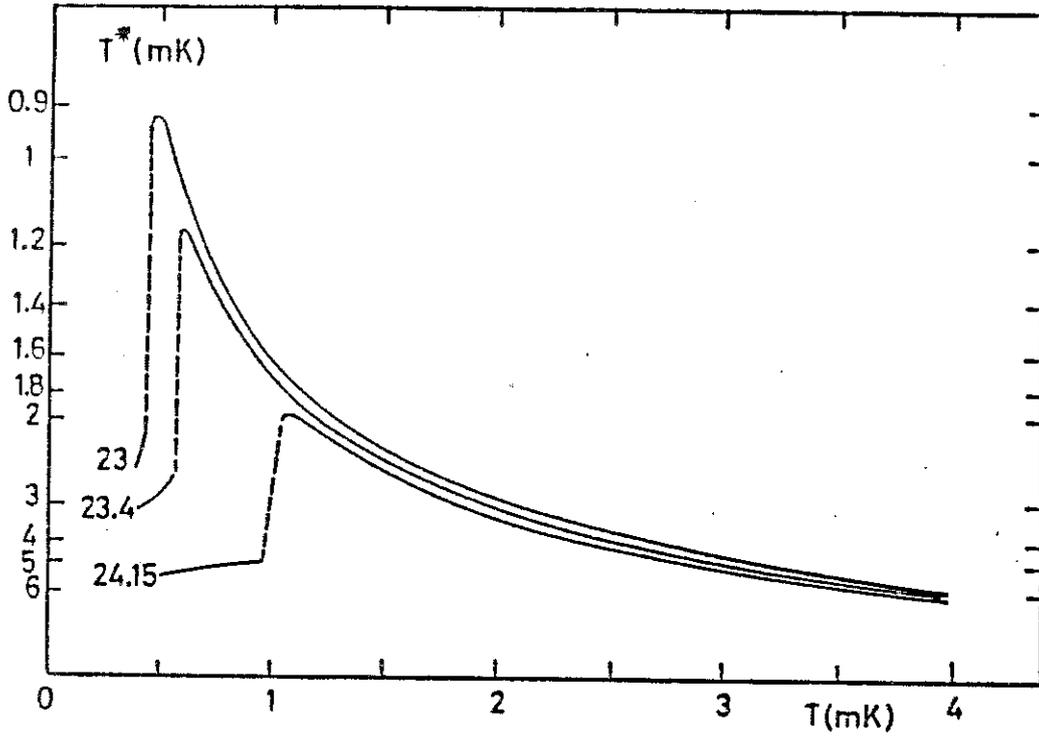


Figure 2.3  
Relation entre la température fictive  $T^*$  et la température absolue pour différents volumes molaires, établie à partir des mesures d'aimantation de Hata<sup>8</sup>.

La mesure aura une interprétation directe dans la phase désordonnée. Pour un système de spin 1/2, la polarisation

$$f_N = \text{th}\left(\frac{\mu B}{k_B T^*}\right)$$

$\mu = g_n I \mu_N$  est le moment magnétique nucléaire égal à  $2.13 \mu_N$  pour l' $^3\text{He}$ .  $T^*$  est une température fictive dite magnétique. La relation entre  $T$  et  $T^*$  est calculée à partir des courbes d'aimantations réalisées par Hata<sup>8</sup> et représentées figure 2.3. La mesure de  $\epsilon$  permet de suivre l'évolution de la température de  $^3\text{He}$  au cours du chauffage occasionné par la capture des neutrons. Dans notre expérience, l'hélium trois est polarisé dans un champ permanent  $H = .08 \text{ T}$ , le facteur  $\frac{\mu H}{kT^*}$  est égal à

$$\frac{\mu H}{kT^*} \cong \frac{6.23 \cdot 10^{-5}}{T^*}$$

l'efficacité de transmission s'écrit donc dans le cas d'une polarisation nucléaire faible :

$$\epsilon(\%) \cong \alpha f_n^0 \frac{6.23}{T^* (\text{mK})}$$

En supposant  $\alpha = 1$  et  $f_n^0 = 1$ , le tableau ci-dessous indique l'efficacité de transmission correspondante à deux températures caractéristiques 10 mK et 1 mK.

T	T*	$\epsilon$ %
10 mK	10 mK	.6 %
1 mK	2 mK	3 %



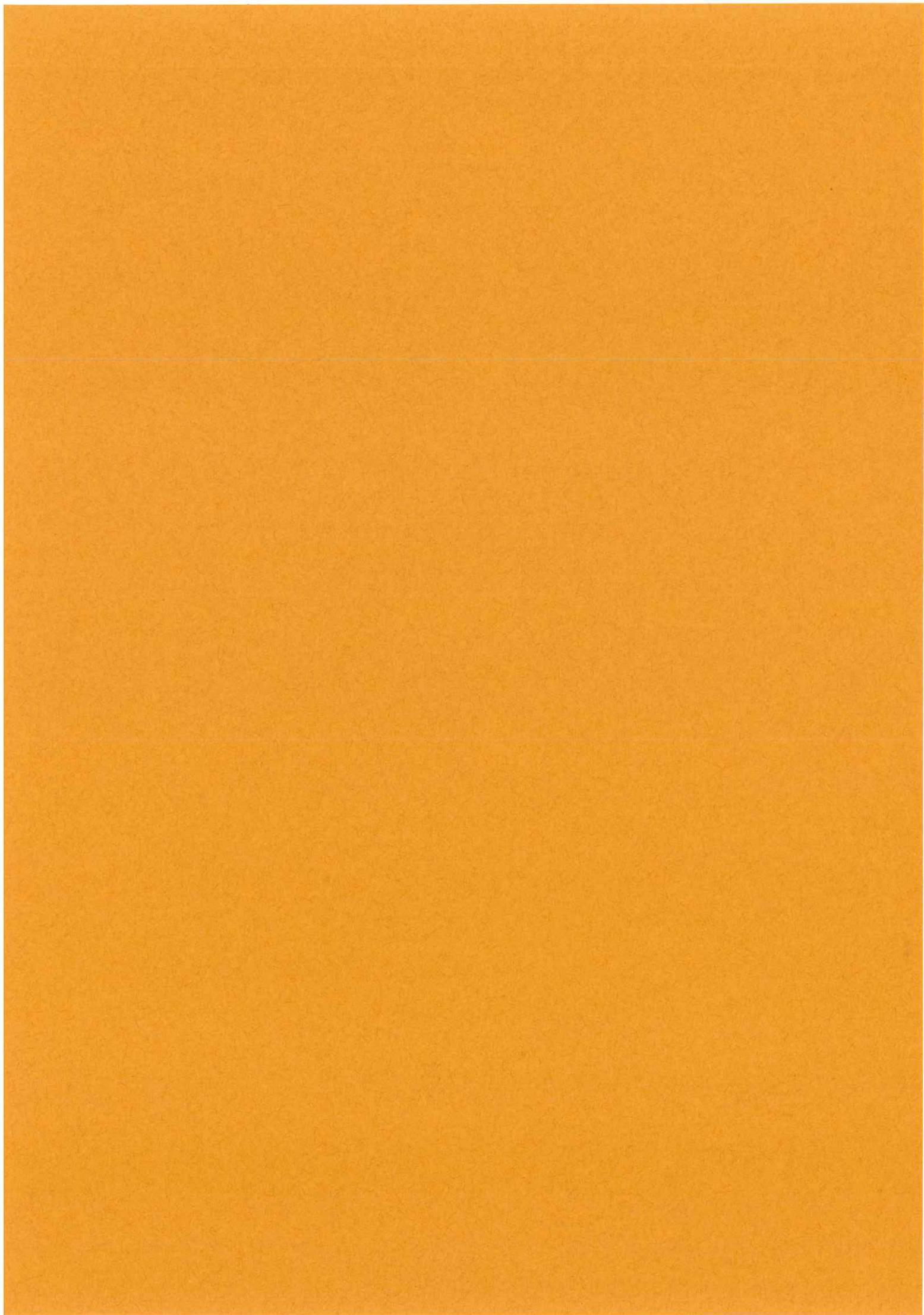
REFERENCES DU CHAPITRE II

- 1 - G.E. BACON : Neutron diffraction, Ed. Clarendon Press, Oxford (1975).
- 2 - G.C. SQUIRES : Introduction to thermal neutron scattering, Ed. Cambridge, University Press London (1978).
- 3 - ALFIMENKOV, Joint Institut of Nuclear Research, Dubna URSS (1980).
- 4 - W.P. HALPERIN, F.B. RASMUSSEN, C.N. ARCHIE, et R.C. RICHARDSON, J. Low Temp. Phys. 31 (1978) 617.
- 5 - W. WHALING, Handbuch der Physik (Spring Verlag) ed. S. Flugge, XXXIV, (1958) 193.
- 6 - L. PASSEL et R.I. SCHERMER, Phys. Rev. 150 (1966) 149.
- 7 - D.S. GREYWALL, Phys. Rev. 15 (1977) 2604.
- 8 - T. HATA, S. YAMASAKI, Y. TANAKA, T. KODAMA et T. SHIGI, J. Magn. Magn. Mat. 737 (1983).



CHAPITRE III

TECHNIQUES EXPERIMENTALES



## 1. MODES OPERATOIRES

Nous décrivons dans ce paragraphe les principales étapes de la réalisation de l'expérience de diffraction de neutrons sur  $^3\text{He}$  au-dessous du millikelvin.

### 1.1. Choix et mesure du volume molaire

La température de transition magnétique varie de manière dramatique avec le volume molaire.

$$T_N \sim V_M^{18}$$

Compte tenu des possibilités cryogéniques, il est impératif que le volume molaire du solide soit très voisin de la courbe de fusion à 0 K, c'est-à-dire

$$V_M = 24.2 \text{ cm}^3/\text{mole}$$

Nous pouvons connaître le volume molaire dans la phase solide en mesurant le coefficient d'absorption  $\alpha$ . Le principe est le suivant : le nombre de neutrons transmis  $N$  à travers la cellule remplie d' $^3\text{He}$  vaut

$$N = N_0 e^{-\alpha} \quad \text{avec} \quad \alpha = \frac{N_a}{V_M} \sigma_0 x$$

$N_0$  est le nombre de neutrons traversant la cellule lorsque la pression d' $^3\text{He}$  est nulle. Il est facile de mesurer le volume molaire avec une précision de 1% en comptant  $10^6$  neutrons.

$$\frac{dN}{N} = \alpha \frac{dV_M}{V_M}$$

car, comme  $\alpha$  est en général voisin de 1,  $\Delta V_M/V_M \sim \frac{1}{\sqrt{N}}$ .

Pratiquement et puisque l'épaisseur d' $^3\text{He}$  n'est pas connue a priori, la cellule est remplie en liquide à très basse température ( $T \sim 20$  mK) par pallier de pression jusqu'à 28 atm., ce qui permet, grâce aux mesures citées par Weathley<sup>1</sup> donnant une relation entre la pression et le volume molaire pour l' $^3\text{He}$  liquide à 0 K (fig. 3.1), de réaliser un étalonnage du coefficient d'absorption  $\alpha$  en fonction du volume molaire  $V_M$  du type de celui de la figure 3.2. Pour une pression supérieure à 28 bar, l'étalonnage est réalisé à plus haute température ( $T \sim 1.8$  K). A basse température, à cause du minimum de la courbe de fusion dans le diagramme de phase, le capillaire de remplissage thermalisé à tous les points froids du cryostat se bouche dès que la pression sur le liquide devient supérieure à 29 atm. (figure 3.4). Nous utilisons alors les mesures des propriétés thermodynamiques de l' $^3\text{He}$  sur la courbe de fusion réalisées par Grilly<sup>2</sup> entre 1.8 K et 0.3 K ; les valeurs numériques sont résumées dans le tableau suivant. D'autres mesures ont été réalisées par Sherman<sup>3</sup> ; la figure 3.3 montre le comportement du volume molaire en fonction de la pression sur la courbe de fusion entre 1 K et 3 K.

Measured Properties of Melting  $^3\text{He}$ , 0.3-1.8 K

T, K	$P_m$ , atm	$dP_m/dT$ , atm/K	$\Delta V_m$ , cm <sup>3</sup> /mole	$V_l$ , cm <sup>3</sup> /mole	$V_s$ , cm <sup>3</sup> /mole	$\alpha_l$ , 10 <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>	$\alpha_s$ , 10 <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>	$\beta_l$ , 10 <sup>-3</sup> atm <sup>-1</sup>	$\beta_s$ , 10 <sup>-3</sup> atm <sup>-1</sup>
1.80	67.68	42.1	0.940	22.425	21.486	5.15	6.12	2.76	2.68
1.70	63.54	40.7	0.961	22.681	21.721	4.58	5.80	2.94	2.86
1.60	59.54	39.1	0.982	22.949	21.967	3.95	5.48	3.13	3.06
1.50	55.72	37.4	1.004	23.225	22.222	3.27	5.16	3.33	3.27
1.40	52.06	35.6	1.026	23.513	22.487	2.50	4.83	3.55	3.50
1.30	48.64	33.6	1.048	23.804	22.756	1.54	4.48	3.77	3.74
1.20	45.44	31.5	1.070	24.100	23.030	0.25	4.10	4.00	4.00
1.10	42.38	29.3	1.092	24.408	23.316	-1.05	3.69	4.25	4.28
1.00	39.58	26.9	1.114	24.712	23.599	-2.32	3.24	4.50	4.57
0.90	36.95	24.1	1.136	25.022	23.886	-3.60	2.76	4.74	4.87
0.80	34.70	21.1	1.157	25.308	24.152	-4.77	2.25	4.99	5.17
0.70	32.76	17.9	1.176	25.573	24.397	-5.77	1.70	5.20	5.46
0.60	31.12	14.3	1.194	25.811	24.618	-6.60	1.15	5.40	5.71
0.50	29.90	10.1	1.212	26.003	24.792	-7.13	0.61	5.56	5.96
0.40	29.13	4.8	1.228	26.135	24.907	-7.47	0.15	5.66	6.26
0.32	28.93	0.0	1.241	26.181	24.939	-7.78	-0.16	5.69	6.38
0.30	28.94	-1.3	1.245	26.183	24.937	-7.95	-0.24	5.69	6.37
0.28	28.99	-2.7	1.249	26.181	24.930	-8.20	-	5.69	6.34

$$\alpha = \frac{1}{V} \left( \frac{\partial V}{\partial T} \right)_P$$

$$\beta = \frac{1}{P} \left( \frac{\partial P}{\partial T} \right)_V$$

$\ell$  : liquide, s : solide, m : "melting"

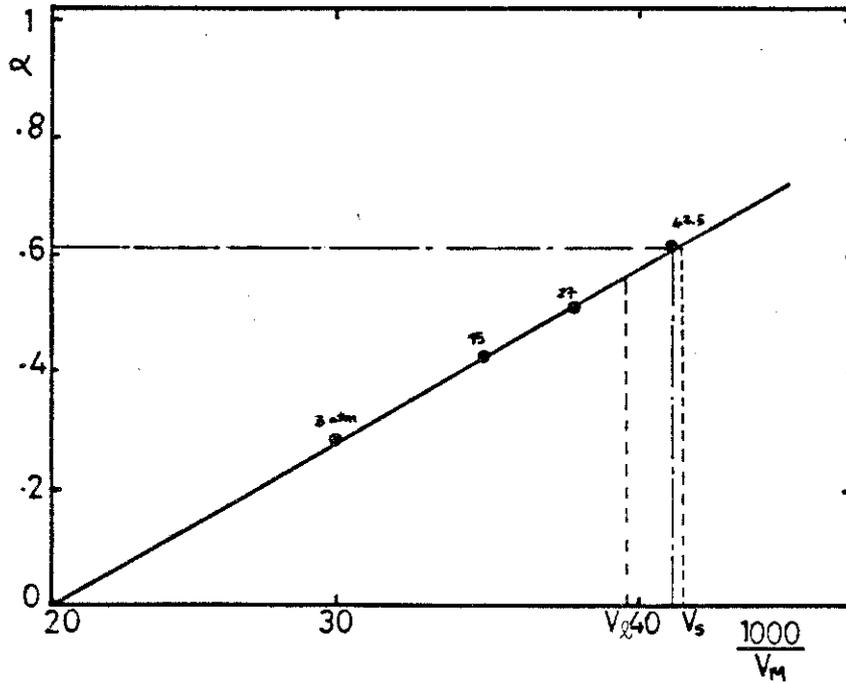


Figure 3-2. Courbe d'étalonnage réalisée dans le liquide ; la mesure du coefficient d'absorption  $\alpha$  permet celle du volume molaire dans la phase solide ;  $V_S$  et  $V_L$  représentent les volumes molaires du solide et du liquide sur la courbe de fusion à 0 K.

La courbe d'étalonnage ainsi réalisée nous permet de suivre l'évolution du volume molaire au cours du processus de solidification. L' $^3\text{He}$  contenu dans le capillaire se solidifie avant celui contenu dans la cellule, ce qui a pour effet d'empêcher toute mesure de pression à l'intérieur de la cellule, d'où l'intérêt des mesures du coefficient  $\alpha$  pour mesurer le volume molaire. On observe en général une légère diminution de  $\alpha$  au cours du processus de solidification, ce qui veut dire que le liquide se détend un peu. Cela s'explique parce que le volume du capillaire ( $\sim 0.1 \text{ cm}^3$ ) est comparable au volume de la cellule  $\sim .1 \text{ cm}^3$ . En effet, l' $^3\text{He}$  contenu

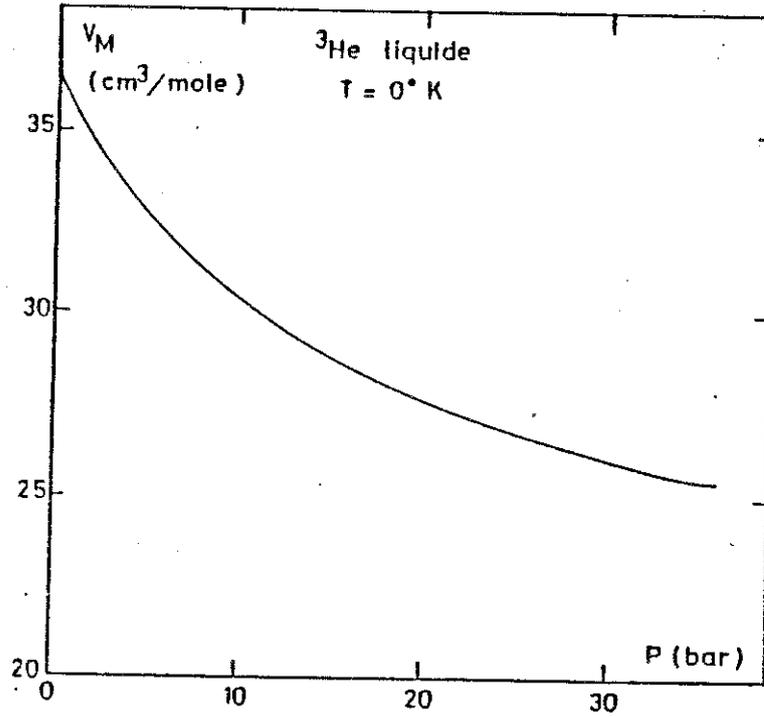


Figure 3-1. Relation pression-volume molaire pour l'hélium trois liquide à 0 K jusqu'à la courbe de fusion d'après Weathley<sup>1</sup>.

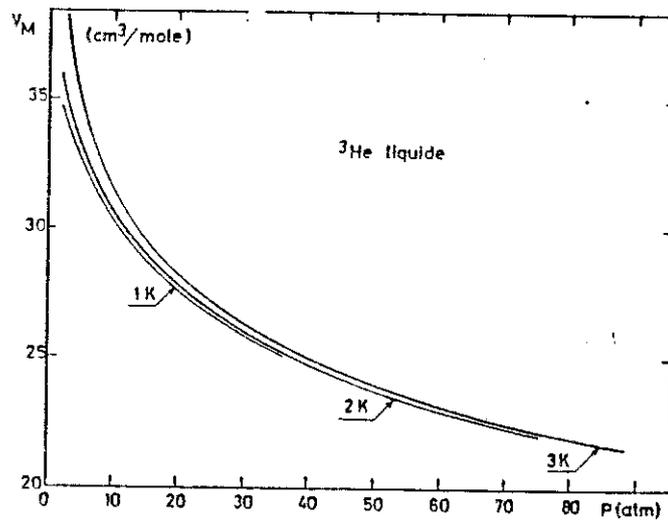


Figure 3.3. Relation pression-volume molaire pour l'hélium trois liquide sur la courbe de fusion d'après Grilly<sup>2</sup>.

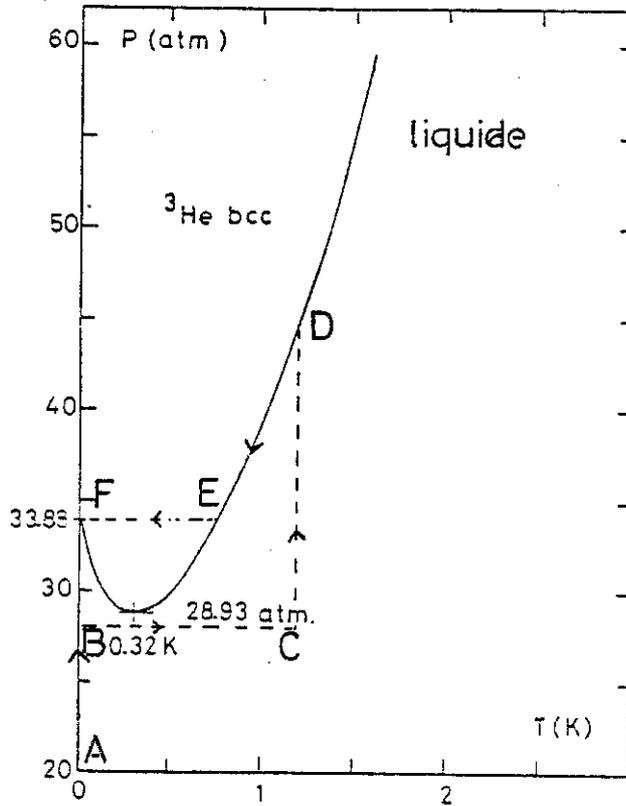


Figure 3.4

Remplissage et solidification de l' $^3\text{He}$  dans le diagramme de phase. Le parcours A-B correspond au remplissage de liquide à 20 mK jusqu'à  $P \sim 28$  atm. ; B-C est le réchauffage nécessaire de tout le cryostat et donc de l' $^3\text{He}$  pour éviter le bouchage des capillaires ; C-D correspond au remplissage à haute température  $T \sim 1.2$  K jusqu'à la pression correspondant au volume molaire du solide sur la courbe de fusion à 0 K ( $V_n = 24.2$  cm<sup>3</sup>/mole). Le parcours D-E correspond à la solidification à volume constant sur la courbe de fusion et E-F le refroidissement à très basse température du solide ainsi fabriqué ; il traverse tout le diagramme de phase pour se retrouver sur la courbe de fusion à 0 K.

dans le capillaire se solidifiant à pression constante, donc avec diminution du volume molaire (cf. tableau ci-dessus) pour équilibrer la pression, le liquide va un peu sortir vers le capillaire. Compte tenu des volumes (capillaire et cellule), la variation relative de volume molaire  $\frac{\Delta V_M}{V_n}$  est de l'ordre de 0.5 %, d'où l'intérêt essentiel de pouvoir mesurer le volume molaire à la fin de la solidification.

### 1.2. Cristallisation - Orientation du cristal

La technique de cristallisation consiste à refroidir  $1^3\text{He}$  lentement de la phase liquide vers la phase solide. La cristallisation de  $1^3\text{He}$  dans le type de cellule que nous avons mis au point a posé un certain nombre de problèmes qui seront abordés en détail au chapitre V.

### 1.3. Refroidissement du cristal au millikelvin

L'hélium trois ou quatre ne se refroidit pas à très basse température au contact d'une masse métallique aussi facilement qu'un métal. L'obstacle majeur réside dans la grande résistance de contact  $R_K$  appelée résistance de Kapitza, qui existe entre l'hélium liquide ou solide et une paroi métallique. Cette résistance est due à un très mauvais couplage acoustique des phonons à l'interface. Le transfert d'une puissance  $\dot{Q}$  s'accompagne d'un écart de température  $\Delta T$ .

$$\Delta T = \frac{R_K}{A} \dot{Q}$$

A est la surface d'échange en  $\text{m}^2$ .

Le seul moyen de refroidir l'hélium trois avec des constantes de temps raisonnables est d'augmenter la surface d'échange en confinant l' $^3\text{He}$  dans une poudre métallique ; ceci est réalisé avec succès depuis une dizaine d'années dans les échangeurs très basses températures des réfrigérateurs à dilution. Nous refroidissons notre  $^3\text{He}$  solide confiné à l'intérieur d'une poudre métallique frittée (argent ou cuivre). Le comportement de la résistance de Kapitza pour l'hélium trois confiné dans une géométrie de poudre vaut<sup>4</sup> :

$$R_K \cong \frac{2 \cdot 10^3}{T} \text{ m}^2\text{K/W}$$

La surface d'échange dans nos expériences est de l'ordre de  $1 \text{ m}^2$ . La cellule est refroidie en dessous du millikelvin par désaimantation nucléaire adiabatique de 10 moles de cuivre.

#### 1.4. Recherche des réflexions de surstructure

La recherche des réflexions de surstructure magnétique nous impose, puisque nous travaillons avec un monocristal, d'orienter complètement le cristal. Pour déterminer l'orientation du cristal, il est nécessaire de trouver expérimentalement deux réflexions (110). Cette recherche se fait de manière systématique en explorant pas à pas le réseau réciproque. Le cristal est ensuite orienté suivant une des directions pour lesquelles on attend un signal magnétique, puis refroidi à ultra basse température par désaimantation nucléaire adiabatique. Dans cette expérience, nous utilisons simultanément deux détecteurs : un recherche la raie de structure magnétique (la raie (1/2 00) dans l'hypothèse d'Osheroff) et l'autre mesure la polarisation du flux transmis pour savoir si l' $^3\text{He}$  est dans la phase ordonnée.

## 2. APPAREILLAGE

### 2.1 Techniques de réfrigération

En évitant l'effet Pomeranchuk pour des raisons évidentes, le seul moyen à l'heure actuelle d'atteindre des températures inférieures au millikelvin est d'utiliser la technique du refroidissement par désaimantation nucléaire adiabatique. Notre réfrigérateur à désaimantation a été fabriqué à partir d'un réfrigérateur à dilution ; l'étage à désaimantation est simplement connecté à la boîte à mélange par un interrupteur thermique.

#### 2.1.1. La réfrigération par dilution

Nous rappelons d'abord le principe du refroidissement par dilution. Le principe repose sur le diagramme de phase des mélanges  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  à basse température présenté à la figure 3.6 en coordonnées  $T/X_3$  ;  $X_3$  est la concentration d' $^3\text{He}$  sous pression de vapeur.

Pour  $T < .84 \text{ K}$ , il y a coexistence de deux phases,

- l'une très concentrée en  $^3\text{He}$ ,
- l'autre diluée en  $^3\text{He}$  avec  $X_3 < 0.064$  à  $T = 0$ .

Les deux phases n'ont pas la même enthalpie donc il existe une chaleur latente  $L = 82 T^2 \text{ J/mole}$  qui est absorbée par l' $^3\text{He}$  lorsqu'il passe du concentré au dilué. C'est dans ce phénomène que réside le principe du refroidissement par dilution.

La puissance disponible  $\dot{Q}$  sur la source froide vaut

$$\dot{Q} = \dot{n} \cdot 12T_c^2 \left[ 9 \left( \frac{T_D}{T_c} \right)^2 - 1 \right]$$

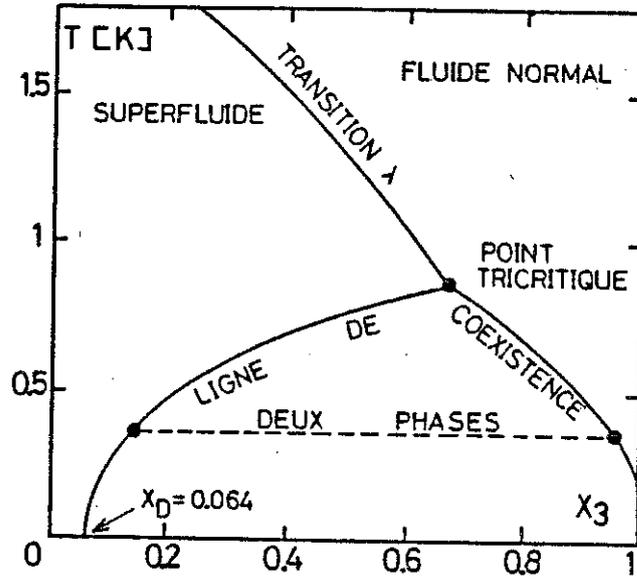


Figure 3-5. Diagramme de phase du mélange  $^3\text{He}$  -  $^4\text{He}$ .  $X_3$  est la concentration en  $^3\text{He}$ .

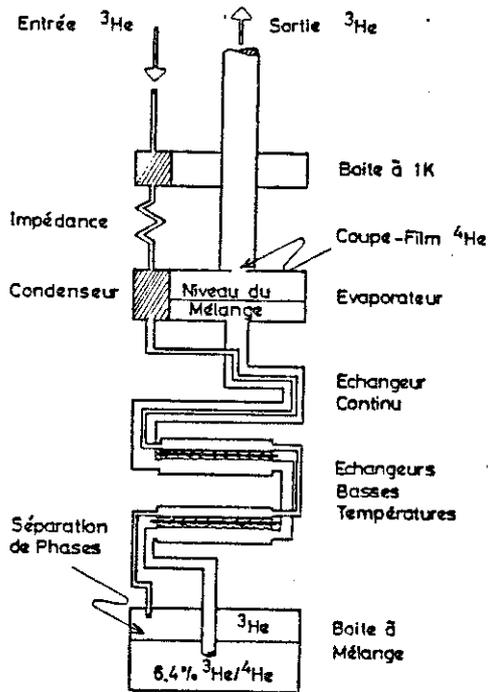


Figure 3-6

Schéma de principe d'un réfrigé-  
rateur à dilution.

$T_C$  et  $T_D$  sont les températures des phases concentrées et diluées.  $\dot{n}$  est le débit d' $^3\text{He}$  en mole/s. La puissance usuelle est de l'ordre de  $100 \mu\text{W}$  à  $100 \text{ mK}$  pour  $100 \mu\text{mole/s}$ .

Le fonctionnement est schématisé par la figure 3.6. L' $^3\text{He}$  est en circuit fermé. Partons du début du circuit d'injection de  $^3\text{He}$  concentré. L' $^3\text{He}$  arrive à  $4.2 \text{ K}$  ; il est pré-refroidi à  $1.2 \text{ K}$  sur une "boite à  $1 \text{ K}$ " à  $^4\text{He}$  pompé ; il est ensuite détendu dans une impédance, ce qui le refroidit encore. A partir de ce stade commence le circuit thermique d'échange avec  $^3\text{He}$  dilué qui, lui, remonte à contre courant. L' $^3\text{He}$  pur est thermalisé à  $0.6 \text{ K}$  sur l'évaporateur où  $^3\text{He}$  dilué est évaporé de  $^4\text{He}$ . Le concentré passe dans une série d'échangeur de chaleur où il croise  $^3\text{He}$  dilué (donc froid). Il arrive enfin à la boîte à mélange où il est dilué. C'est dans la boîte à mélange qu'est dégagée la puissance frigorifique. Le problème majeur pour obtenir un réfrigérateur à dilution performant repose dans la conception des échangeurs basses températures. Les travaux de Frossati<sup>7</sup> ont conduit à la mise au point d'échangeurs très performants, construits à partir de poudre d'argent fritté, ce qui augmente considérablement la surface d'échange. La température minimum obtenue à l'heure actuelle en refroidissement continu est  $T \sim 1.9 \text{ mK}$ .

### 2.1.2. Refroidissement par désaimantation nucléaire adiabatique

Le principe est le même que celui de la désaimantation de sels paramagnétiques tels que le nitrate de cérium magnésium CMN [ $2\text{Ce}(\text{NO}_3)_3, 3\text{Mg}(\text{NO}_3)_2, 24\text{H}_2\text{O}$ ] utilisé depuis longtemps dans les laboratoires de basses températures (Giauque 1933). Dans les deux cas, il s'agit d'un ensemble de moments magnétiques sans

interactions, plongés préalablement dans un champ magnétique pour diminuer son entropie. Le processus de désaimantation consiste à faire décroître le champ magnétique à entropie constante. Ce processus a une limitation théorique qui est la température d'ordre magnétique du matériau utilisé : quelques millikelvin pour les sels, 0.1 microkelvin pour les moments nucléaires, 2000 fois plus petit que les moments électroniques.

L'entropie  $S$  d'un système de spins nucléaires  $I$  sans interaction et faiblement polarisé dans un champ  $B$  est :

$$S = nR \log(2I+1) - \frac{\Lambda(B^2+b^2)}{2\mu_o T^2}$$

où  $\Lambda$  est la constante de Curie des noyaux d' $^3\text{He}$ ,  $n$  le nombre de moles et  $b$  le champ dipolaire. Les courbes théoriques de l'entropie en fonction de la température sont représentées à la figure 3.7 pour les spins nucléaires du cuivre ( $J = 3/2$ ). Le parcours XY correspond au prérefroidissement sous champ avec la "dilution" ; YZ'Z représente le cycle de désaimantation adiabatique ; .3 mT est le champ dipolaire du cuivre. Lounasmaa et al.<sup>6</sup> ont réussi par cette technique à ordonner les spins nucléaires du cuivre à  $T \sim 30 \cdot 10^{-9}$  K. Nous repérons par les indices  $i$  et  $f$  les valeurs initiales et finales du champ et de la température. Si l'entropie reste constante au cours du processus de désaimantation, on a la relation entre les températures initiales et finales

$$T_f = \sqrt{\frac{B_f^2 + b^2}{B_i^2 + b^2}} T_i$$

Le champ  $b$  dans nos expériences est toujours négligeable devant  $B_f$  qui doit être assez élevé pour que notre système garde une importante chaleur spécifique  $C$  donnée par la relation

$$C = T \left. \frac{\partial S}{\partial T} \right|_{B_f} \approx \frac{\Lambda B_f^2}{\mu_o T^2}$$

La désaimantation nucléaire abaisse la température des spins nucléaires du cuivre à  $T_n$  ; le transfert thermique entre les noyaux de cuivre et les noyaux d' $^3\text{He}$  est réalisé par les électrons du cuivre qui se thermalisent à une température  $T_e$  par couplage spin-réseau avec un temps de relaxation  $\tau_1$  donné par la loi de Korringa  $\tau_1 T_e = K_o$  ;  $K_o$  est la constante de Korringa qui vaut 1,1 sK pour le cuivre, ce qui conduit, pour une température électronique  $T_e \sim .3$  mK, à un temps de relaxation  $\tau_1$  de l'ordre d'une heure. En présence de pertes thermiques  $\dot{Q}$  la relation entre  $T_e$  et  $T_n$  est donnée par la formule :

$$\frac{T_e}{T_n} - 1 = \frac{\mu_o K_o \dot{Q}}{(B^2 + b^2)}$$

Le champ final optimum est celui qui permet d'atteindre la température électronique la plus basse ; il est donné par la relation :

$$B_f(\text{opt}) = \left( \frac{\mu_o K_o \dot{Q}}{\Lambda} \right)^{1/2}$$

Le temps  $\Delta t$  au bout duquel la température se réchauffe de la température finale  $T_{fn}$  à une température  $T_n$ , vaut :

$$\Delta t = \frac{\Lambda B_f^2}{\dot{Q} \mu_o} \left[ \frac{1}{T_{fn}} - \frac{1}{T_n} \right]$$

Cette dernière relation permet de mesurer les pertes thermiques  $\dot{Q}$ . Elles sont de l'ordre de  $0.5 \cdot 10^{-9}$  W pour notre appareillage. Le

champ final optimum vaut  $B(\text{opt}) \approx 10^{-2}$  T ; ce champ est trop faible pour maintenir le système froid pendant un temps suffisamment long pour assurer la thermalisation de  $1^3\text{He}$ . La valeur finale du champ est en pratique  $B_f \approx .15$  T. La température minimale des noyaux de cuivre vaut donc  $T_{nf} \approx .4$  mK en prenant comme conditions initiales  $T_i = 15$  mK et  $B_i = 5.5$  T. La température électronique, compte tenu des pertes thermiques, vaut  $T_e = 0.55$  mK. La source froide reste entre 0.5 mK et 1 mK pendant un temps  $\Delta t$  de l'ordre de 48 heures à partir de la fin de la désaimantation. Dans nos expériences, nous désaimantons le cuivre de 6 T à .15 T en douze heures. Ce temps, assez long, peut entraîner des effets d'irréversibilité que nous n'avons pas pris en compte.

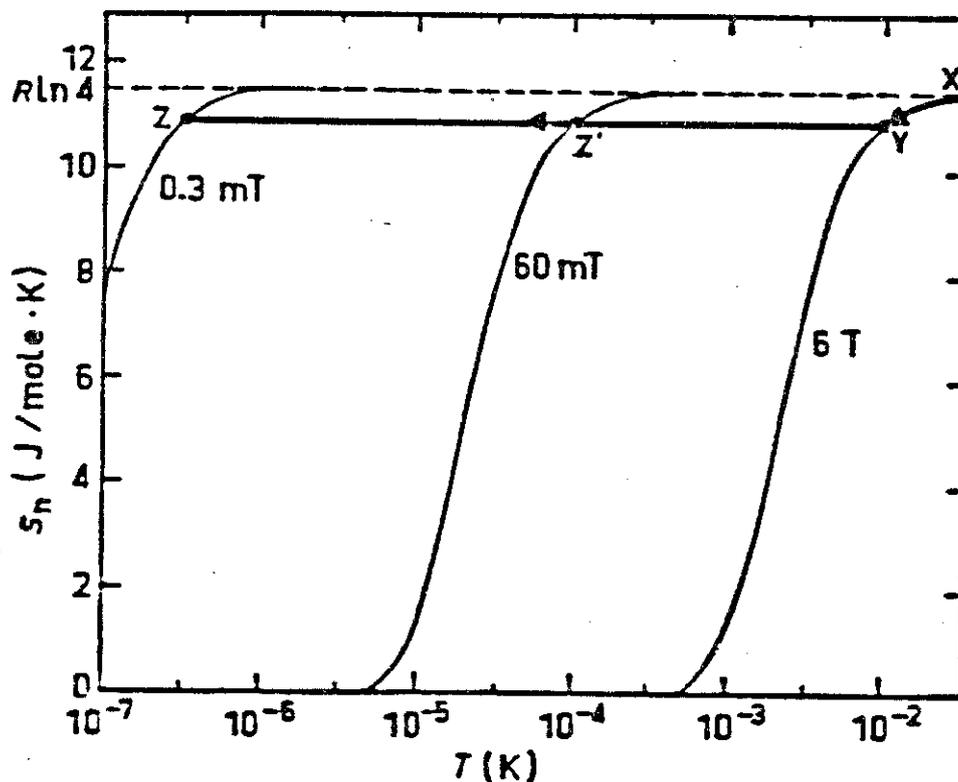


Figure 3-7. Diagramme d'entropie du cuivre.

## 2.2 Cryogénie

### 2.2.1. Réfrigérateur à dilution

Un schéma de notre cryostat est représenté à la figure 3.8. Les vases cryogéniques (azote et hélium) ont été conçus afin d'éviter que les neutrons traversent les liquides. La boîte à mélange a été réalisée en laiton (métal peu conducteur) pour limiter les pertes thermiques par courant de Foucault ; elle contient 100 g de poudre d'argent frittée sur un substrat de cuivre argenté. Des entailles radiales ont été ménagées à l'intérieur ; les pertes thermiques  $\dot{Q}_f$  apportées sur un volume cylindrique de hauteur  $h$ , de rayon  $R$  et de résistivité  $\rho$  pour une variation de champ  $\dot{B}$  sont données par la formule :

$$\dot{Q}_f = \frac{\pi}{8} \frac{hR^4 \dot{B}^2}{\rho} .$$

Le réfrigérateur à dilution comporte un jeu de quatre échangeurs argent et fonctionne avec un débit de 300  $\mu\text{mole/s}$ . La température minimale est 5 mK.

Deux problèmes nous ont considérablement ralentis mais qui, cependant, font partie du "pain quotidien" des très basses températures méritent un moment d'attention ; il s'agit des problèmes de fuite et de bouchage.

Une fuite extrêmement faible s'est déclarée sur la dilution au point de paralyser l'expérience pendant plusieurs mois. La fuite n'apparaissait qu'au bout de quelques jours de fonctionnement du réfrigérateur à dilution. Elle n'a pu être décelée qu'en testant tous les éléments un par un dans le superfluide. Nous avons finalement trouvé une fuite ne se déclarant qu'au superfluide dans un échangeur argent.

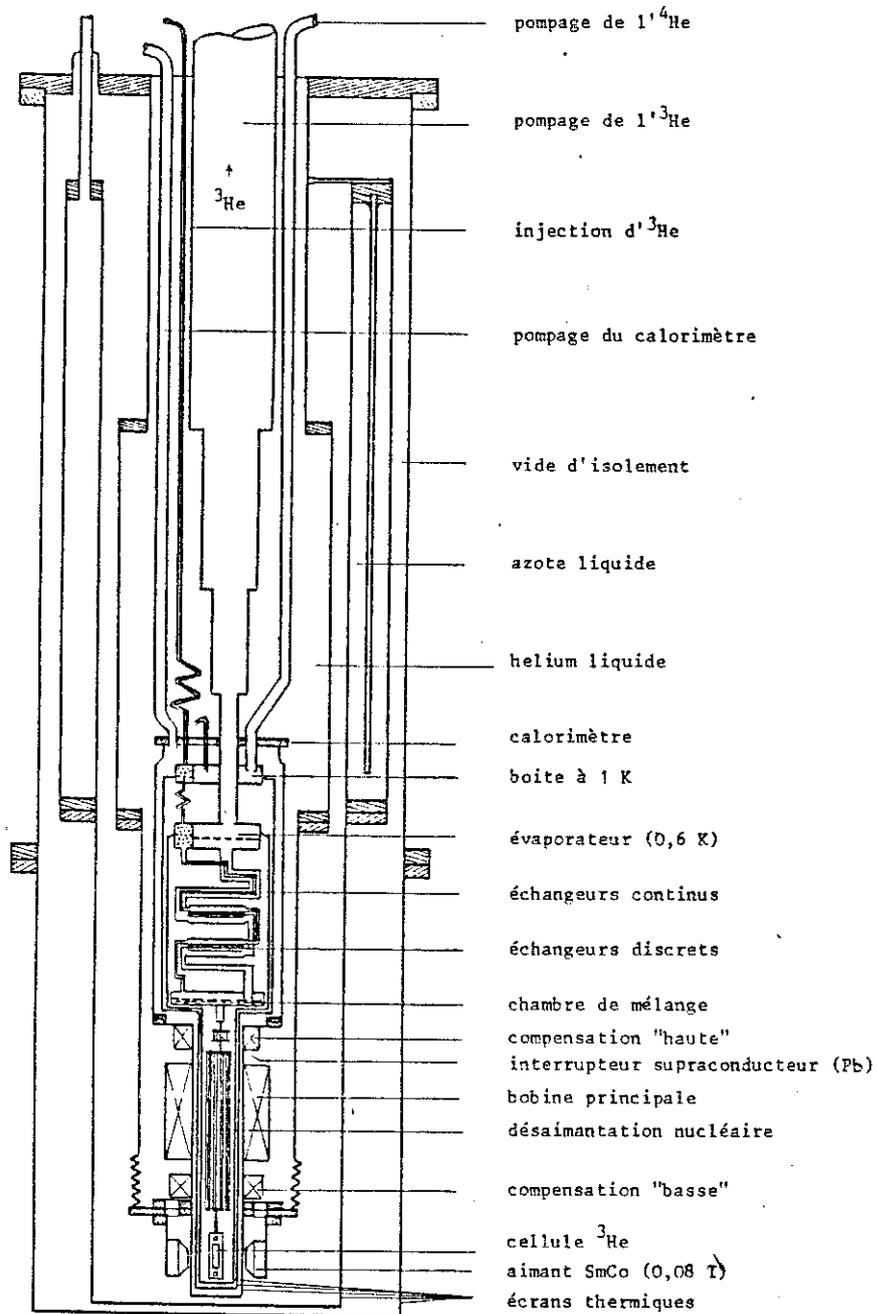


Figure 3-8. Schéma d'ensemble cryostat à dilution et désaimantation nucléaire.

Le deuxième problème est celui du bouchage de la "boîte à 1 K". Celle-ci est alimentée en  $^4\text{He}$  à partir du bain par un capillaire de .1 mm de diamètre ; ce capillaire est régulièrement bouché au bout de quinze jours, ce qui entraîne l'arrêt des expériences. Nous avons apporté à ce problème, qui touche de plus en plus de monde sans doute à cause de la présence d'hydrogène que les liquéfacteurs n'arrivent pas à éliminer, une solution originale. Le capillaire est doublé sur toute sa longueur par du "thermocoax" soudé à l'étain sur le capillaire, et relié à un générateur de courant qui permet d'envoyer des pulses commandés par une minuterie. Ce dispositif permet le débouchage momentané du capillaire ; il n'affecte pas les performances de la dilution.

### 2.2.2. La désaimantation

L'étage à dilution est relié à la désaimantation nucléaire par l'intermédiaire d'un interrupteur thermique dont la fonction est d'isoler thermiquement les deux étages dès que le cycle de désaimantation démarre. Le principe repose sur la transition supraconductrice du plomb dans le champ de fuite de la bobine de désaimantation, le rapport des conductivités thermiques (normal et supra) étant égal à  $K_n/K_s = 50/T^2$ . Les pertes thermiques, interrupteur fermé s'élèvent à  $10^{-10}$  W. L'interrupteur a été réalisé par 50 fils de plomb (99.999 %), de diamètre .5 mm et de longueur 7 mm qui sont soudés étain sur deux couronnes de cuivre reliées par une vis en Kapton graphité de 4 mm de diamètre. La rigidité de l'ensemble est assurée par un tube en Kapton graphité vissé à la périphérie des deux couronnes de cuivre. Cet "interrupteur" est dans l'état normal pour un champ  $\geq .1$  T. La conduction thermique du plomb pur vaut à 15 mK

$$K_n = 5 \text{ W/K}_m ; \dot{Q}/\Delta T = K_n \frac{S}{L} \Delta T \text{ avec } \frac{S}{L} = \frac{1}{700} \text{ m}$$

$$\dot{Q}_n / T = 7 \mu\text{W/mK}$$

La désaimantation construite par D. Rufin<sup>8</sup> et décrite en détail dans sa thèse est constituée de 10 moles de fils de cuivre sertis par magnétoformage et vissés sur l'interrupteur thermique. Une bobine supraconductrice équipée de compensations permet d'établir un champ voisin de 6 T sur 5 moles de cuivre.

La figure 3.9 représente le montage expérimental très basse température avec le profil du champ magnétique sur l'axe de symétrie vertical.

### 3. LE GONIOMETRE DN2

Le goniomètre DN2 est installé sur le site du réacteur Mélusine au CENG ; c'est un appareil spécialement conçu pour la diffraction sur des monocristaux. Il est équipé d'un dispositif qui permet l'utilisation des neutrons polarisés.

#### Les neutrons polarisés

On obtient des neutrons polarisés monochromatiques en utilisant comme monochromateur un composé ferromagnétique installé dans un champ magnétique suffisamment intense pour aligner les domaines et ayant une propriété singulière vis à vis de la diffusion des neutrons : la diffusion nucléaire doit être égale à la diffusion magnétique  $\gamma = \frac{F_N}{F_M} = \pm 1$ . Nous avons utilisé la réflexion (200) d'un alliage de fer et de cobalt où 8 % de fer stabilisent la forme cubique du cobalt et servent à ajuster le rapport  $\gamma$  à 1 ; donc, seuls les spins parallèles au champ sont diffractés et constituent

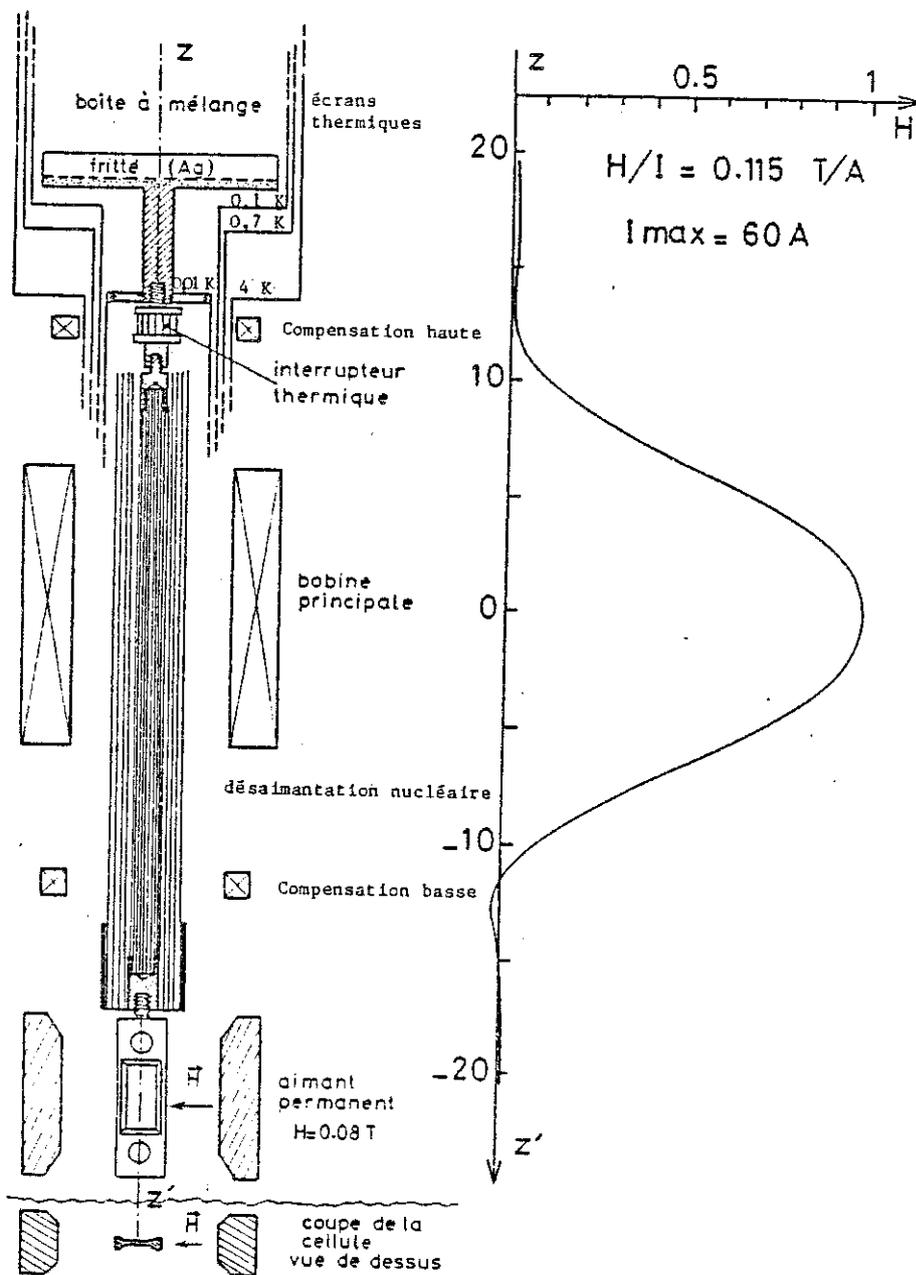


Figure 3-9. Variation du champ magnétique sur l'axe de symétrie vertical du système de désaimantation.

le faisceau incident. L'inconvénient du  $\text{Fe}_{0.08}\text{Co}_{0.92}$  est de produire un flux trop faible pour rechercher rapidement les raies nucléaires des cristaux d' $^3\text{He}$ . La recherche des réflexions était réalisée alors en utilisant un monochromateur cuivre. Nous avons monté sur le goniomètre un alliage d'Heussler  $\text{Cu}_2\text{MnAl}$  qui permet d'utiliser en même temps dans le faisceau direct la réflexion (111) qui est polarisée et la (222) à longueur d'onde moitié qui n'est pas polarisée. Ce dispositif permet de rechercher les raies nucléaires de  $^3\text{He}$  avec la longueur d'onde  $\lambda/2 = .872 \text{ \AA}$  avec un flux de l'ordre de  $10^5 \text{ n/scm}^2$ , et d'utiliser les neutrons polarisés simplement en intercalant dans le faisceau un filtre en samarium de .1 mm d'épaisseur. Pour conserver la polarisation de leurs spins, les neutrons sont guidés par des champs magnétiques réalisés avec des aimants permanents (.01 T). La polarisation peut être tournée à volonté à condition que le spin du neutron puisse suivre le champ de manière adiabatique. Le monochromateur fournit des neutrons polarisés dans une direction de l'espace. Pour mesurer l'efficacité de transmission  $\epsilon$  définie au chapitre précédent, il est nécessaire de disposer alternativement des deux états de spin. Pour cela, nous employons une bobine radiofréquence qui induit une transition résonnante entre ces deux états. La bobine est placée dans un champ guide  $B_0$ . Pour un champ  $B_1(+)$ , de fréquence  $\omega = \omega_0$  ( $\omega_0$  est la fréquence de Larmor dans le champ  $B_0$ ), il existe une probabilité  $\mathcal{P}(t)$  de renversement des spins égale à 1 au bout d'un temps  $t = \frac{\pi}{\omega_1}$ ;  $\omega_1 = \gamma |B_1(t)|$ , l'efficacité de la bobine de "flipping" est définie par  $\phi$ .

En agissant simultanément sur la fréquence  $\omega$  et sur l'intensité du champ  $B_1(t)$ , l'efficacité  $\phi$  est ajustée à une valeur voisine de 100 %. Un schéma du dispositif de mesure à neutrons polarisés est représenté à la figure 3.10. Un aimant permanent SmCo

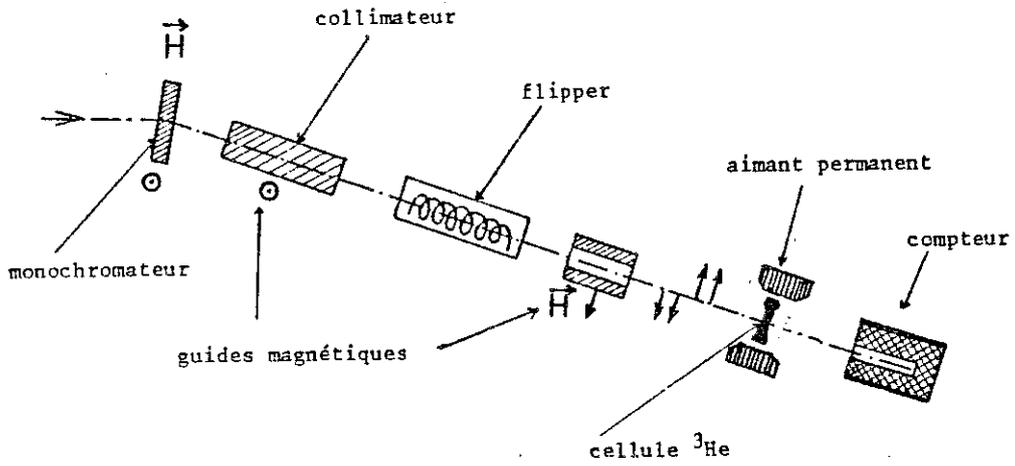


Figure 3-10. Dispositif de mesure en neutrons polarisés.

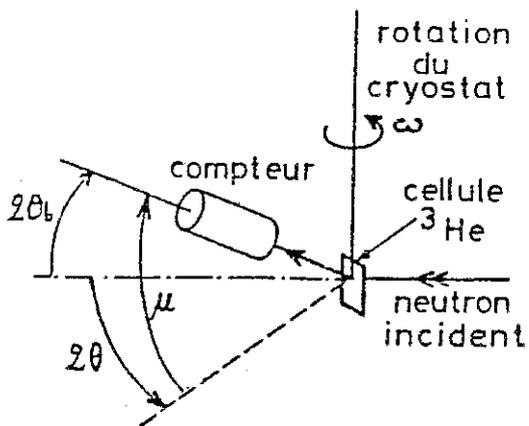


Figure 3-11.  
Goniomètre "bras levé".

polarise l' $^3\text{He}$  ; le champ appliqué doit être parallèle au champ du guide pour éviter la dépolarisation des neutrons. Le détecteur placé en transmission est insensible à la polarisation des neutrons ; il est synchronisé avec le flipper. En pratique, l'inversion de la polarisation a lieu "instantanément" toutes les deux secondes et le nombre de coups obtenus dans chaque configuration est mémorisé. Le détecteur à  $^3\text{He}$  gazeux, qui sert à la diffraction, est monté sur un "bras levant" illustré par la figure 3.11. Les angles d'asservissement  $\theta$ ,  $\mu$  et  $\omega$  sont commandés par un ordinateur pdp85. Le cryostat à désaimantation est monté sur une dalle en béton, isolée des vibrations par de grosses rondelles de caoutchouc. La rotation du cryostat en  $\omega$  est assurée par un moteur pas à pas commandé par un micro-ordinateur Apple II. Toute l'infrastructure de l'expérience est concentrée sur la photo présentée à la figure 3.12.

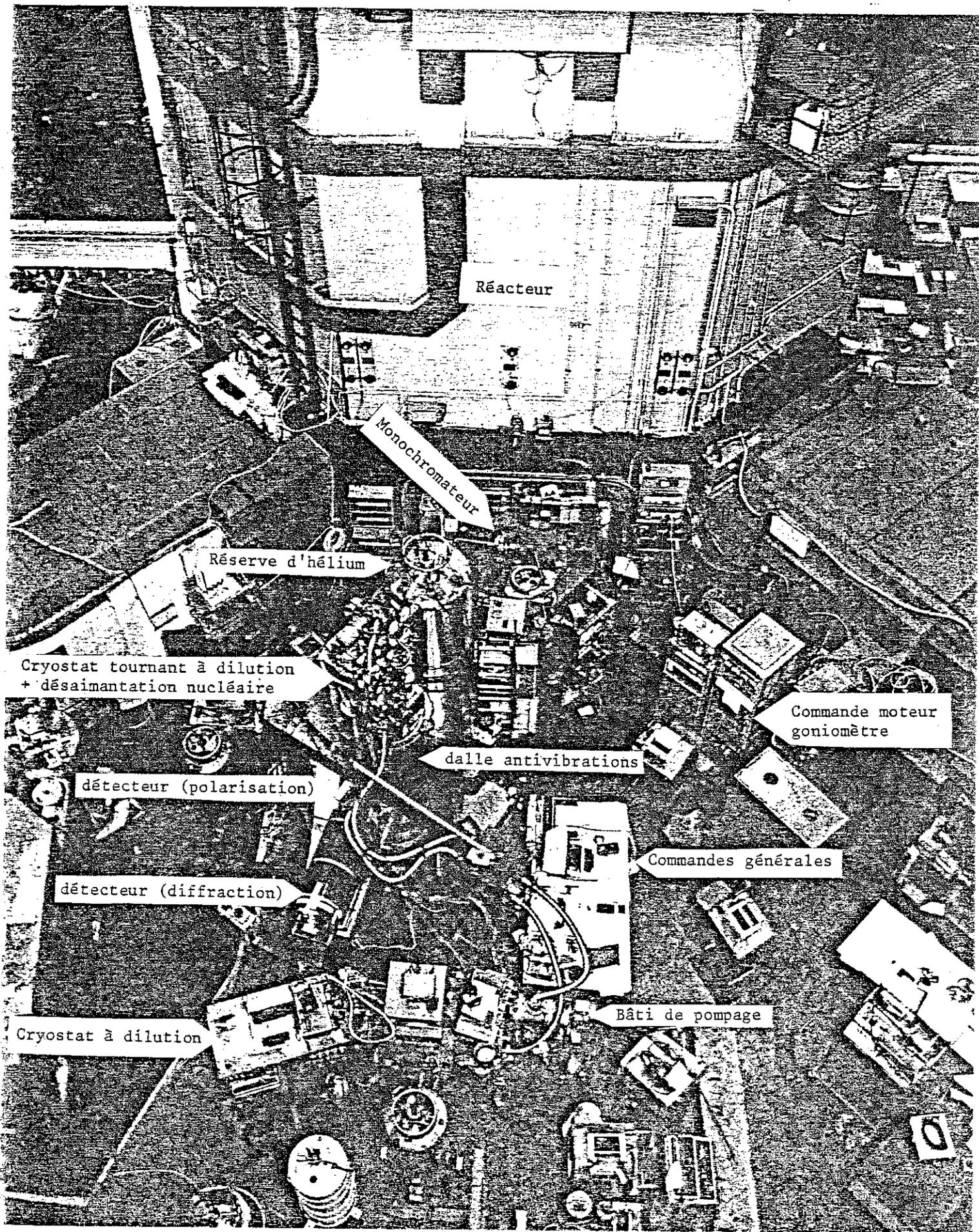


Figure 3-12. Implantation de l'expérience dans le site du réacteur Mélusine au C.E.N.G.

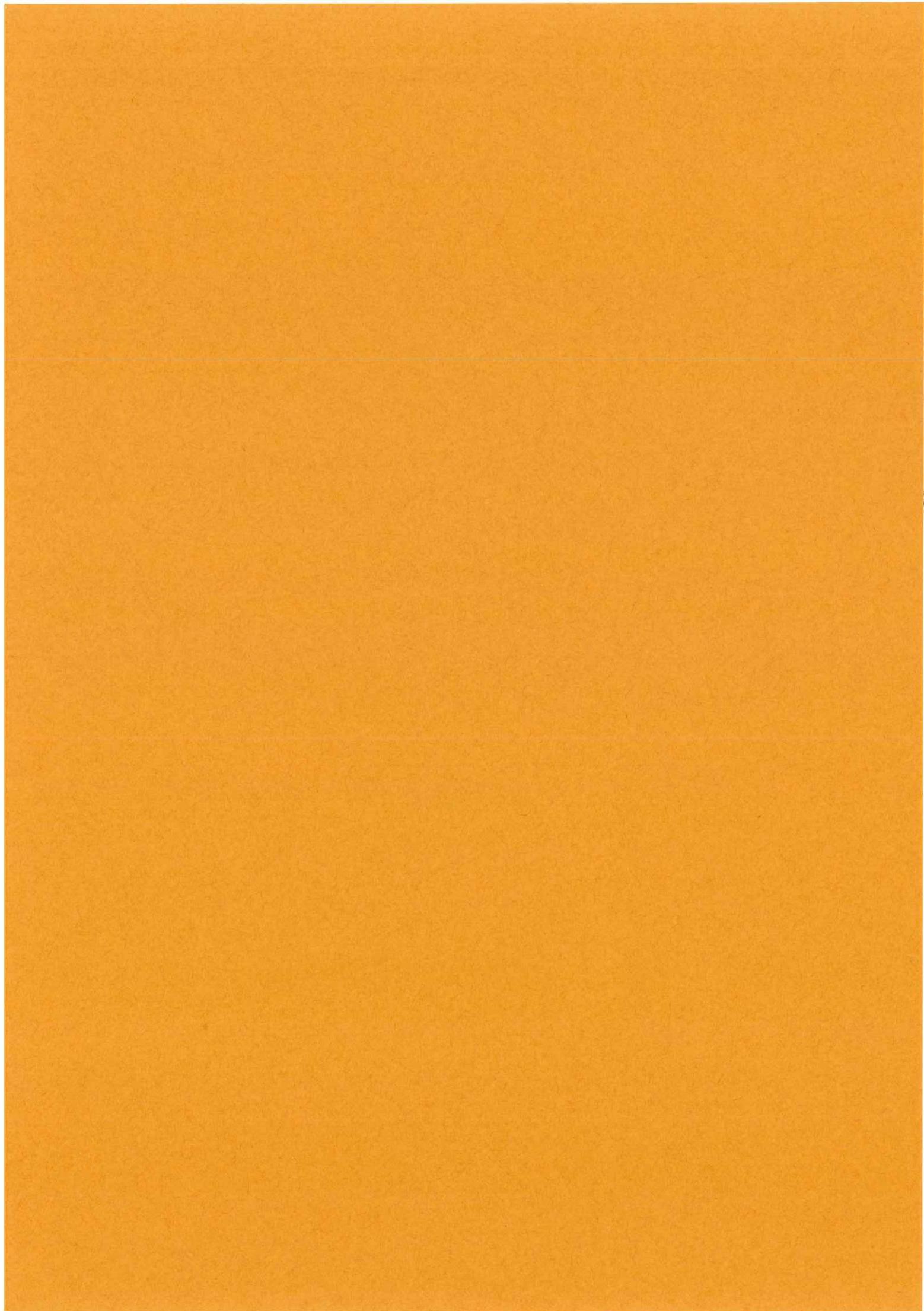
REFERENCES DU CHAPITRE III

- 1 - J.C. WEATHLEY : The Helium Liquids, Ed. Academic Press 308 (1985).
- 2 - E.R. GRILLY, J. Low Temp. Phys. 4 (1971) 615.
- 3 - SHERMAN et F.J. EDESKUTY, Annals of Physics 9 (1960) 522.
- 4 - T. MAMIYA, A. SAWADA, H. FUKUYAMA, K. IWAHASHI, and Y. MASUDA, AIP Conference Proceedings Series Editor : Hugh C. Wolfe, N° 103 (1983).
- 5 - LOUNASMAA, Experimental principles and Methods Below 1 K.
- 6 - M.T. HUIKU, T.A. JYRKKIÖ, M.T. LOPONEN, and O.V. LOUNASMAA, AIP Conference Proceedings Series Editor : Hugh C. Wolfe, N° 103 (1983).
- 7 - G. FROSSATI, Thèse Grenoble 1978.
- 8 - D. RUFIN, Thèse Grenoble 1982.



CHAPITRE IV

LES CELLULES EXPERIMENTALES



## 1. LES IMPERATIFS

Trois conditions essentielles doivent être réalisées dans la mise au point des cellules expérimentales :

- 1°) une surface d'échange maximale
- 2°) une épaisseur optimum
- 3°) une bonne tenue mécanique

### 1.1. Surface d'échange

Nous avons déjà souligné que la résistance de Kapitza  $R_K$  entre l'hélium et un métal est inversement proportionnelle à la surface d'échange  $A$ . C'est la raison pour laquelle l'hélium est confiné au sein d'une poudre métallique (argent, cuivre ou platine) dans les échangeurs très basse température des réfrigérateurs à dilution<sup>1</sup>. La poudre japonaise de 700 Å a donné, jusqu'à présent, les meilleurs résultats<sup>2</sup> ; c'est celle que nous employons dans nos cellules. Deux configurations possibles de cellules se présentent :

- a) Un type de cellule illustré par la figure 4.1 dans laquelle de  $1^3\text{He}$  en géométrie massive coexiste avec de  $1^3\text{He}$  confiné dans la poudre. Il faut alors "parier" sur la bonne conductivité thermique de  $1^3\text{He}$  pour le refroidir en dessous de  $T_N$ . Certains auteurs prétendent qu'elle est bonne dans un monocristal à cause du fort coefficient de diffusion de spin<sup>3</sup>. Une équipe américaine essaie de réaliser l'expérience dans ce type de cellule<sup>4</sup>.

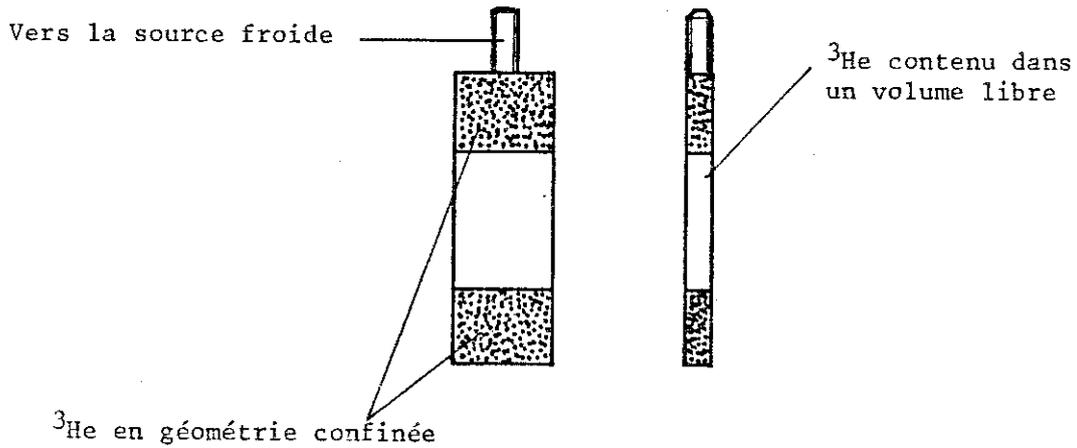


Figure 4.1

*Expérience en géométrie massive découplant thermalisation et l'observation aux neutrons .*

- b) Un autre type de cellule pour lequel il n'existe pas de volume libre ; l' $^3\text{He}$  est confiné intégralement dans la poudre. C'est ce type de cellule que nous avons adopté après les premiers résultats obtenus sur la cristallisation dans la poudre de cuivre.

### 1.2. Epaisseur

Les conditions expérimentales nous imposent de travailler en géométrie de transmission, c'est-à-dire que les neutrons traversent la totalité de la cellule. L'épaisseur du cristal est limitée avant tout par la forte absorption des neutrons. Le signal de diffraction est proportionnel à la quantité :

$$\lambda^2 x e^{-\sigma_a n x}$$

Le produit est optimisé pour une épaisseur  $x = \frac{1}{\sigma_a n}$  avec  $\sigma_a/\lambda = 2992 \text{ barn}/\text{Å}$  ; l'intensité du signal varie comme  $\lambda^2$ , donc il est

avantageux de travailler à grande longueur d'onde. Cependant, plus la longueur d'onde est grande et plus l'épaisseur doit être faible, ce qui impose des contraintes technologiques pour réaliser des échantillons très minces. La longueur d'onde utilisée vaut  $\lambda = 1.74 \text{ \AA}$ , ce qui conduit pour un volume molaire  $V_n = 24.2 \text{ cm}^3/\text{mole}$  à une épaisseur  $x$  de l'ordre de  $80 \text{ }\mu\text{m}$ .

### 1.3. Tenue mécanique

A la différence des échangeurs frittés des cryostats à dilution dont s'inspirent ces techniques et qui fonctionnent à basse pression, notre cellule doit supporter une pression intérieure très élevée (45 atm.) pour solidifier l' $^3\text{He}$  à haute température (1,2 K). Nous avons rencontré des difficultés pour éviter le décollement du fritté sous l'effet de la pression lorsque l'adhésion n'est pas parfaite, notamment au niveau de la paroi mince formant le couvercle. Certains paramètres comme l'état de surface des parois, l'homogénéité du remplissage et le serrage de la poudre sont difficilement contrôlables. Un serrage important de la poudre ( $> 10 \text{ tonnes/cm}^2$ ) favorise l'adhésion du fritté aux parois (au niveau du couvercle notamment) comme un traitement thermique plus poussé. Mais, ces conditions entraînent, soit le bouchage définitif du fritté par déformation plastique, soit une perte considérable de la surface d'échange. Actuellement, nous fabriquons des cellules qui supportent une pression de 80 atmosphère.

Les courbes de la figure 4.2 illustrent les difficultés rencontrées avec les cellules frittées ; en (a), il s'agit de la courbe d'étalonnage d'une cellule argent. La courbure observée montre que la cellule se déforme avec la pression, ce qui entraîne une augmentation d'épaisseur avec la création d'une poche de volume

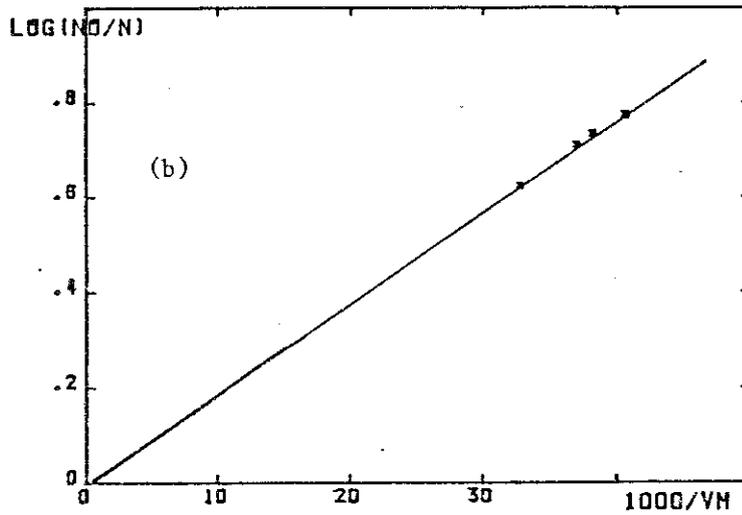
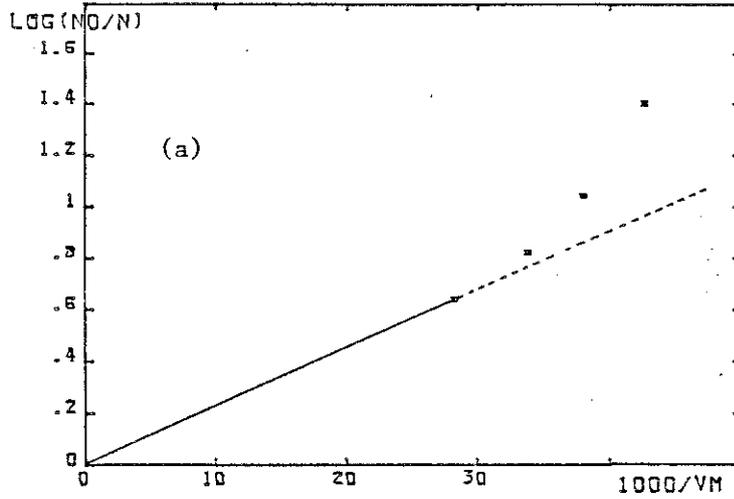


Figure 4.2

Courbes d'étalonnage réalisées dans des cellules frittées illustrant les problèmes de tenue mécanique ; en (a) la cellule se déforme avec la pression ; en (b) la cellule en poudre de cuivre ne se déforme pas.  $\alpha = \text{Log}(W_0/W)$

libre entre les parois internes de la cellule et la poudre frittée ; par contre, en (b) l'étalonnage d'une cellule réalisée en poudre de cuivre montre la bonne rigidité mécanique de la cellule.

## 2. TECHNOLOGIE DE FABRICATION

### 2.1. Les cellules argent

Les cellules sont réalisées à partir d'une barquette de cuivre de type (OFHC), dont l'épaisseur a été réduite au minimum de matière possible pour atténuer le rayonnement incohérent. Deux capillaires sont soudés sur les flancs latéraux qui serviront au remplissage d'hélium trois. Les parois internes sont argentées par procédé électrochimique pour favoriser le contact et le collage de la poudre d'argent sur le cuivre. La poudre (typiquement 0.7 g) est installée dans la barquette en prenant soin de la répartir de manière homogène. Elle est ensuite compactée à la presse (environ 45 % de la densité d'argent pur), ou à l'aide d'une clé dynamométrique serrant les 2 boulons en laiton avec un couple d'environ 1 m/kg. L'homogénéité et le compactage sont des paramètres qui interviennent sans doute dans les processus de cristallisation. Néanmoins, le compactage de la poudre ne doit pas être inférieur à 40 % si l'on veut une bonne conductivité thermique entre grains<sup>5</sup>. La poudre subit ensuite une opération de frittage qui consiste à chauffer la poudre compactée à une température voisine de 200°C. La cellule est fermée avec du clinquant de cuivre de 5/100 mm serré dans deux mâchoires en zycral ; ce métal est employé pour sa transparence aux neutrons ainsi que pour sa bonne tenue mécanique. L'étanchéité est réalisée grâce à une soudure étain. La figure 4.3 illustre les différentes étapes de fabrication d'une cellule argent.

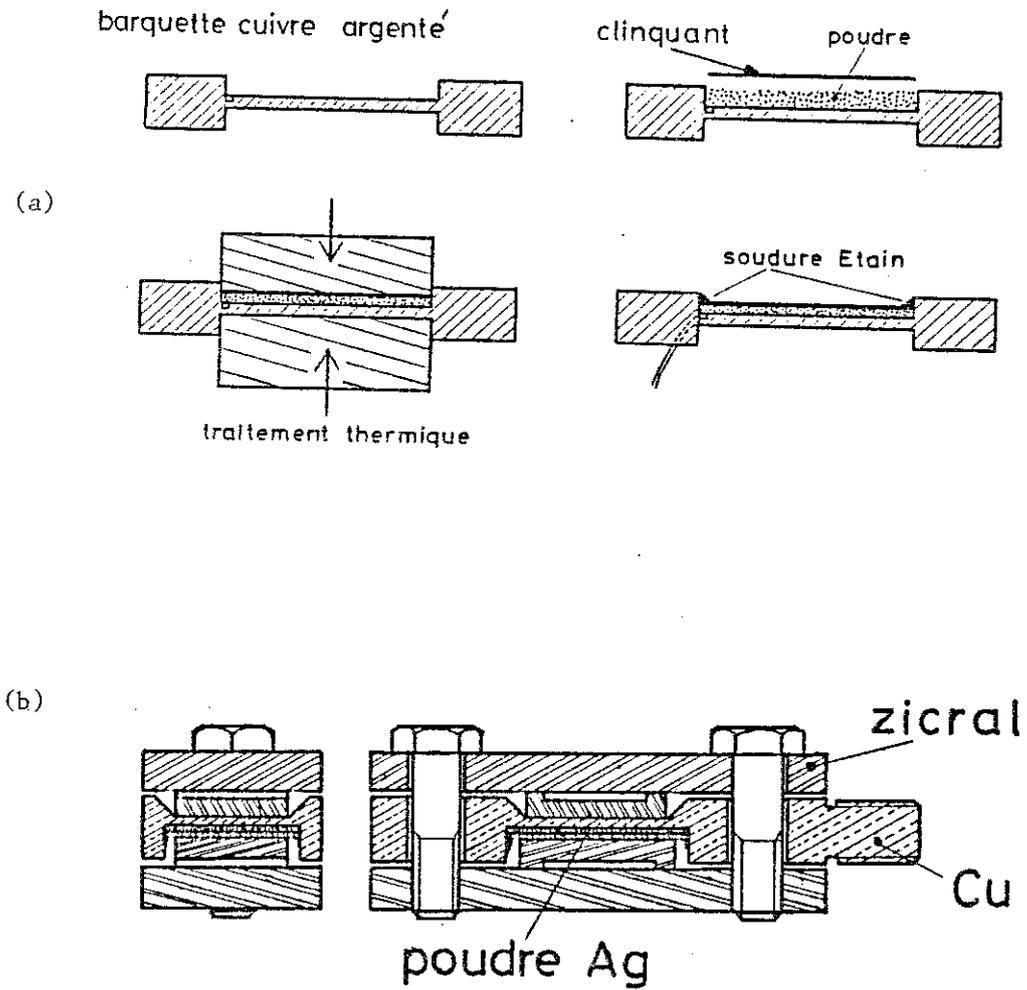


Figure 4.3

Les différentes étapes de la fabrication d'une cellule (a) ;  
en (b) l'allure définitive d'une cellule argent.

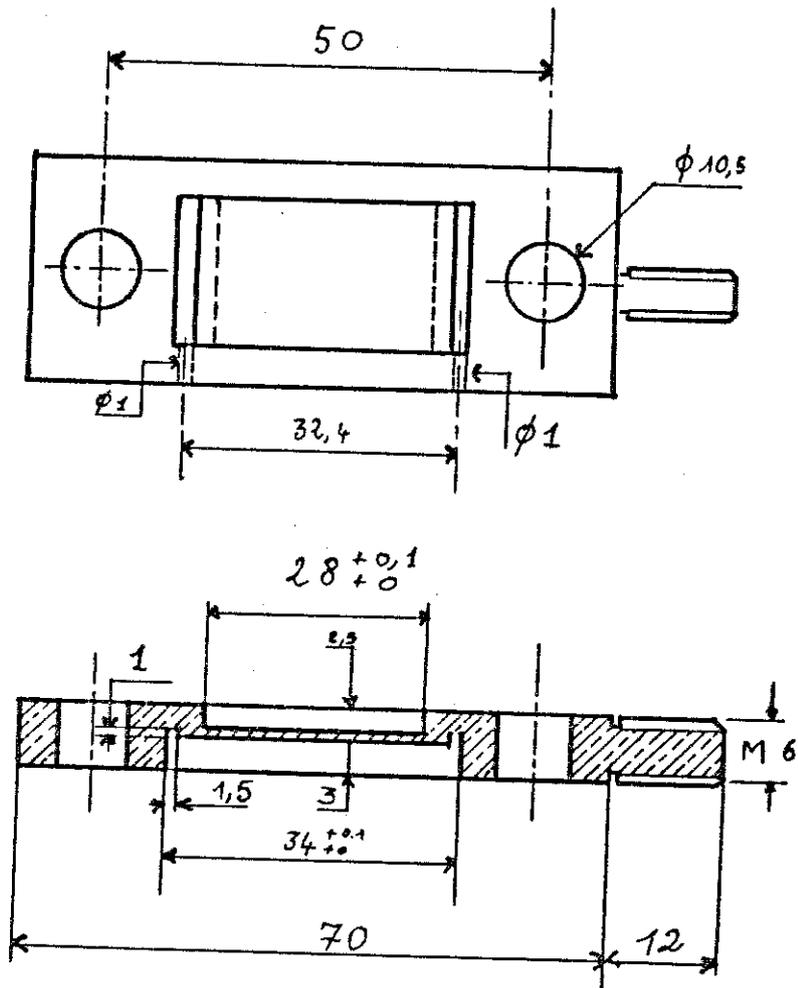


Figure 4.4  
Schéma d'une cellule

Les dimensions de la cellule sont définies par la collimation du faisceau ( $30 \times 10 \text{ mm}^2$ ) ainsi que le diamètre de l'écran thermalisé sur la boîte à mélange. Un schéma de la cellule est présenté à la figure 4.4.

Il s'est avéré aisé d'obtenir une portion de volume libre dans les cellules à poudre d'argent par le positionnement d'un clinquant "fantôme" visualisant l'espace libre et par son enlèvement après compactage. La poudre d'argent pressée reste dans sa configuration de compactage après relâchement du serrage initial. Il est ainsi possible à l'aide de masques d'envisager de sculpter dans la poudre différentes configurations.

## 2.2. Cellule en cuivre

La cellule en cuivre utilisée dans les expériences de cristallisation, relatées au chapitre suivant, et refroidie à très basse température sans pouvoir observer la transition magnétique de l' $^3\text{He}$ , a été fabriquée suivant la même procédure que les cellules argents ; la poudre d'argent de  $700 \text{ \AA}$  est remplacée par de la poudre de cuivre de  $1 \text{ }\mu\text{m}$ . La poudre est frittée pendant six heures à  $560^\circ\text{C}$  sous atmosphère d'hydrogène. Les cellules en cuivre ont une bonne tenue mécanique, ce qui dispense de l'utilisation des moules en zycral. Cette bonne tenue mécanique est sans doute reliée à la forte température de frittage de cette poudre à relativement gros grains. A cette température, on réalise déjà un recuit non négligeable des parties massives de la cellule (clinquant, barquette). Ce ramolissement favorise la bonne adhésion du fritté.

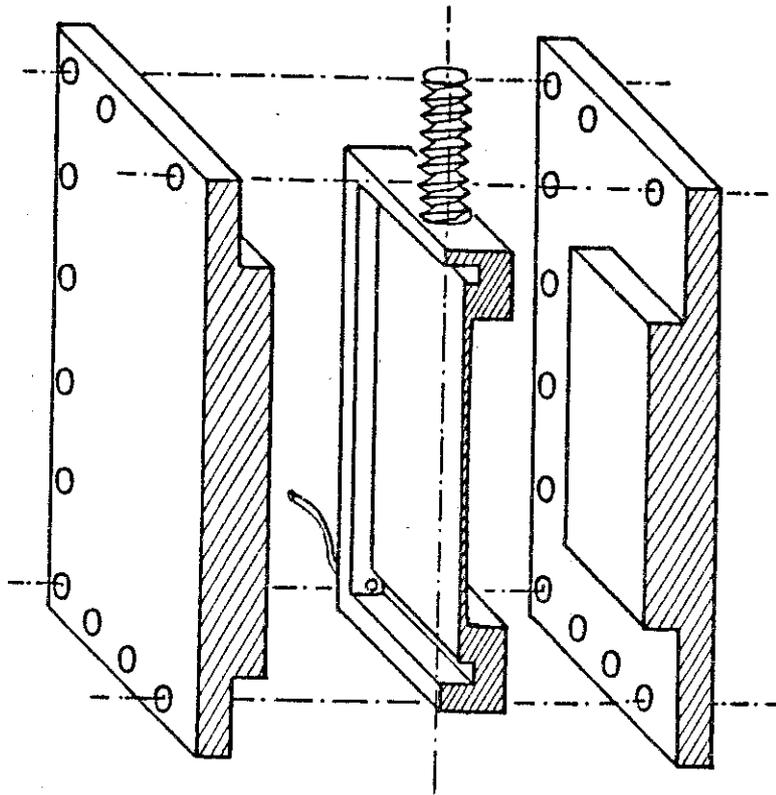


Figure 4.5  
Coupe de la cellule "joint indium".

### 2.3. Cellule "joint indium"

Cette cellule a été élaborée à l'origine pour contenir de la poudre compactée sans traitement thermique. Nous l'avons utilisée en fait pour étudier la cristallisation dans une géométrie massive ; sa caractéristique essentielle est d'assurer l'étanchéité de l' $^3\text{He}$  par un joint indium. Une coupe de la cellule est schématisée à la figure 4.5. L'ajustement à la bonne épaisseur se fait par usinages successifs du couvercle de la cellule.

### 2.4. Cellule quadrillée

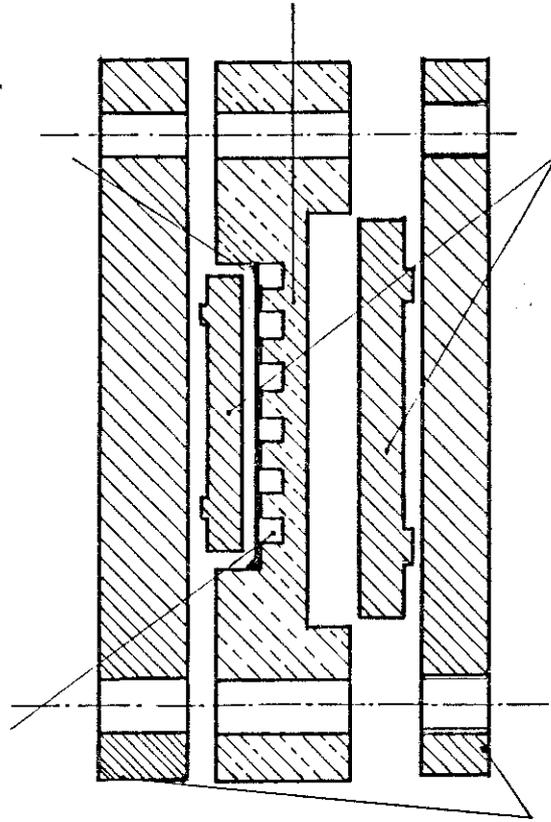
La cellule "quadrillée" est une cellule sans poudre réalisée également pour étudier la cristallisation dans un volume libre. La cellule est réalisée à partir d'une barquette de cuivre utilisée pour les cellules argent dont l'intérieur a été creusé d'un quadrillage (voir figure 4.6). Le clinquant vient s'appuyer sur les picots et est soudé à l'étain. Deux moules en zycral assurent la rigidité de l'ensemble.

## 3. LE FRITTAGE

Le frittage est l'opération qui consiste à chauffer la poudre compactée. La diffusion de surface soude les grains les uns aux autres, ce qui assure d'une part une meilleure conductivité électrique et thermique, et d'autre part une meilleure rigidité mécanique. Nous avons étudié l'évolution de la poudre en fonction de la température de frittage pour la poudre japonaise de  $700 \text{ \AA}$  en utilisant deux techniques : la microscopie à balayage réalisée au LETI et les mesures de surface d'échange<sup>6</sup> réalisées au CRTBT, dont les résultats sont rapportés à la figure 4.7 ; le trait

Volume libre d' $^3\text{He}$

Clinquant de cuivre soudé étain



Cellule en cuivre dans laquelle  
le quadrillage a été fraisé

Moules en Zircal

Contre moules pour limiter les  
déformations mécaniques

Figure 4.6  
Cellule "quadrillée" réalisée à partir d'une cellule du type de la  
figure 4.4 dans laquelle un quadrillage de .1 mm de profondeur a  
été fraisé.

plein représente la mesure de la surface d'échange de la poudre brute, le trait interrompu la surface de la poudre compactée ; la surface d'échange passe par un maximum pour une température de frittage de 200°C ; les échantillons ont tous été chauffés pendant 45 minutes. Sur la figure 4.8 nous présentons une photo de la poudre telle qu'elle se présente à la livraison, l'échelle est mentionnée en bas à droite de la photo (.1  $\mu\text{m}$ ) ; le grossissement est de 60 000. Les particules sont plutôt sphériques avec une taille de l'ordre de .1  $\mu\text{m}$  de diamètre ; on aperçoit aussi des amas plus gros, d'une taille de .5  $\mu\text{m}$ , que nous attribuons à la présence de paraffine agglomérée dans la poudre au moment de la fabrication. A la figure 4.9, on peut voir le "fritté" d'argent tel qu'il se présente dans nos cellules. L'échelle est de 1  $\mu\text{m}$  et le grossissement 4 000. La taille des grains est de l'ordre de .3  $\mu\text{m}$  et est devenue homogène. Pour une étude plus approfondie, voir l'article de H. Franco, J. Bossy et H. Godfrin (référence 6) annexé en appendice, ainsi que l'article de Robertson et al.<sup>6</sup>.

Lors du soudage à l'étain du clinquant, la cellule est portée pendant quelques minutes à une température pouvant atteindre 300°C, ce qui entraîne un court frittage de la poudre. Nous n'avons pas pris de précautions particulières en effectuant cette opération, qui pouvait se passer sous atmosphère inerte dans une boîte à gants. On peut observer cependant, après cette opération, une forte oxydation pour le fritté de cuivre, et pas de détérioration observable pour le fritté d'argent. Pour comprendre la difficulté de thermalisation de l'<sup>3</sup>He à très basse température dans la cellule de cuivre, il faudrait opérer une étude systématique, notamment en évitant toute oxydation et en réalisant une désorption complète de l'hydrogène après frittage car il est maintenant bien montré que la conversion d'hydrogène absorbé d'ortho en para peut être une source importante de chauffage parasite à très basse température.

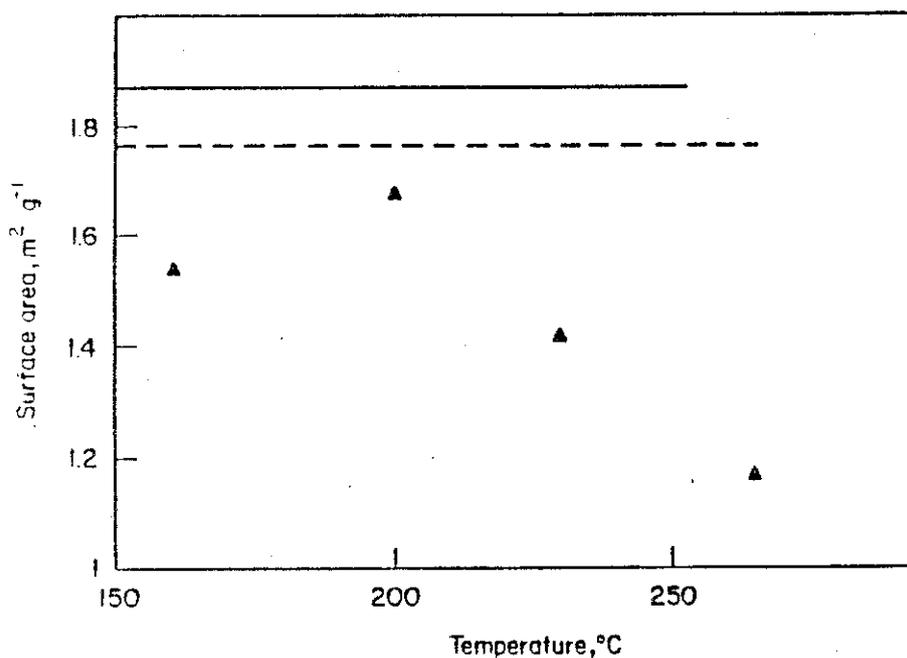
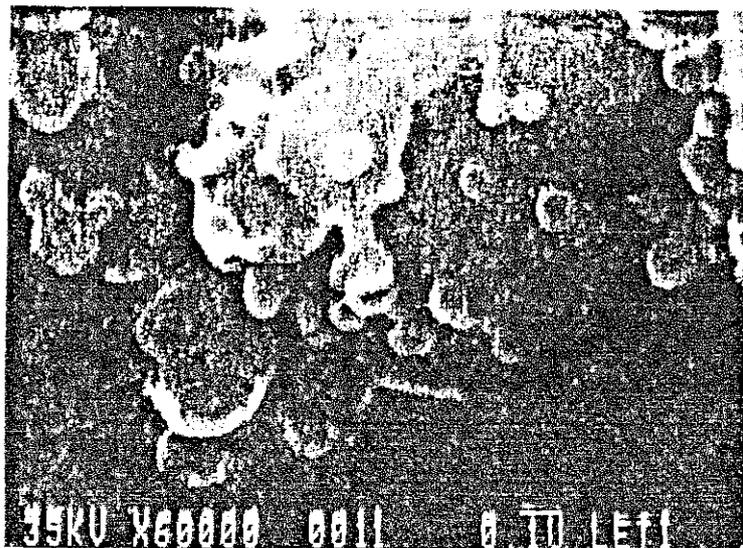
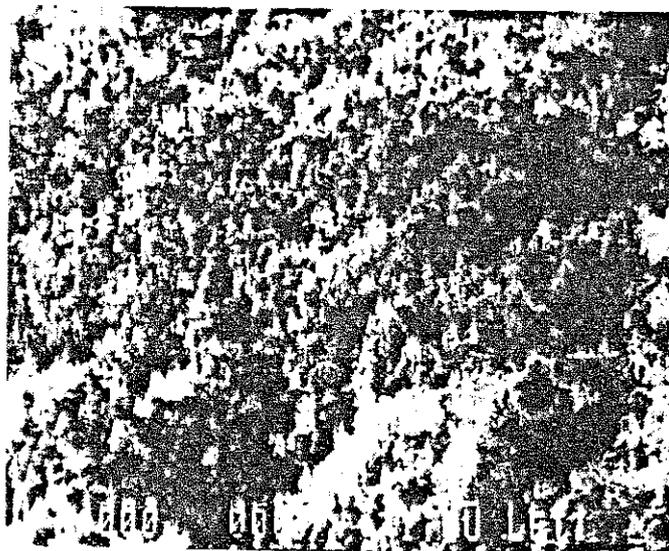


Figure 4.7  
Evolution de la surface d'échange en fonction de la température de frittage pour la poudre d'argent japonaise de 700 Å (référence 6).



échelle 0.1  $\mu$

*Figure 4.8*  
Photographie de la poudre d'argent par microscopie à balayage.



*Figure 4.9*  
Poudre d'argent frittée telle qu'elle se présente dans nos cellules photographiées par microscopie à balayage.

Enfin, il faut souligner que le choix d'opérer à relativement grande longueur d'onde a rendu plus difficile la préparation des cellules par la diminution corollaire de leurs épaisseurs. Cette faible épaisseur a rendu plus délicates toutes les opérations de fabrication.

### CONCLUSION

Le but a été la réalisation de cellules fiables, correspondant aux impératifs spécifiques d'expériences neutroniques sur l' $^3\text{He}$ . Technologiquement, nous savons maintenant préparer ces cellules cibles avec de larges variantes possibles (compactage, espace libre). Les différentes opérations mettent en jeu de nombreux facteurs. Nous avons réalisé en partie une étude systématique : microscopie électronique, mesure de surface d'échange. Il reste à étudier d'autres facteurs, notamment celui de l'atmosphère choisie dans les opérations de frittage et de soudage, celui de la conduction thermique brute du frittage qui peut être approché par la mesure de sa résistivité électrique.



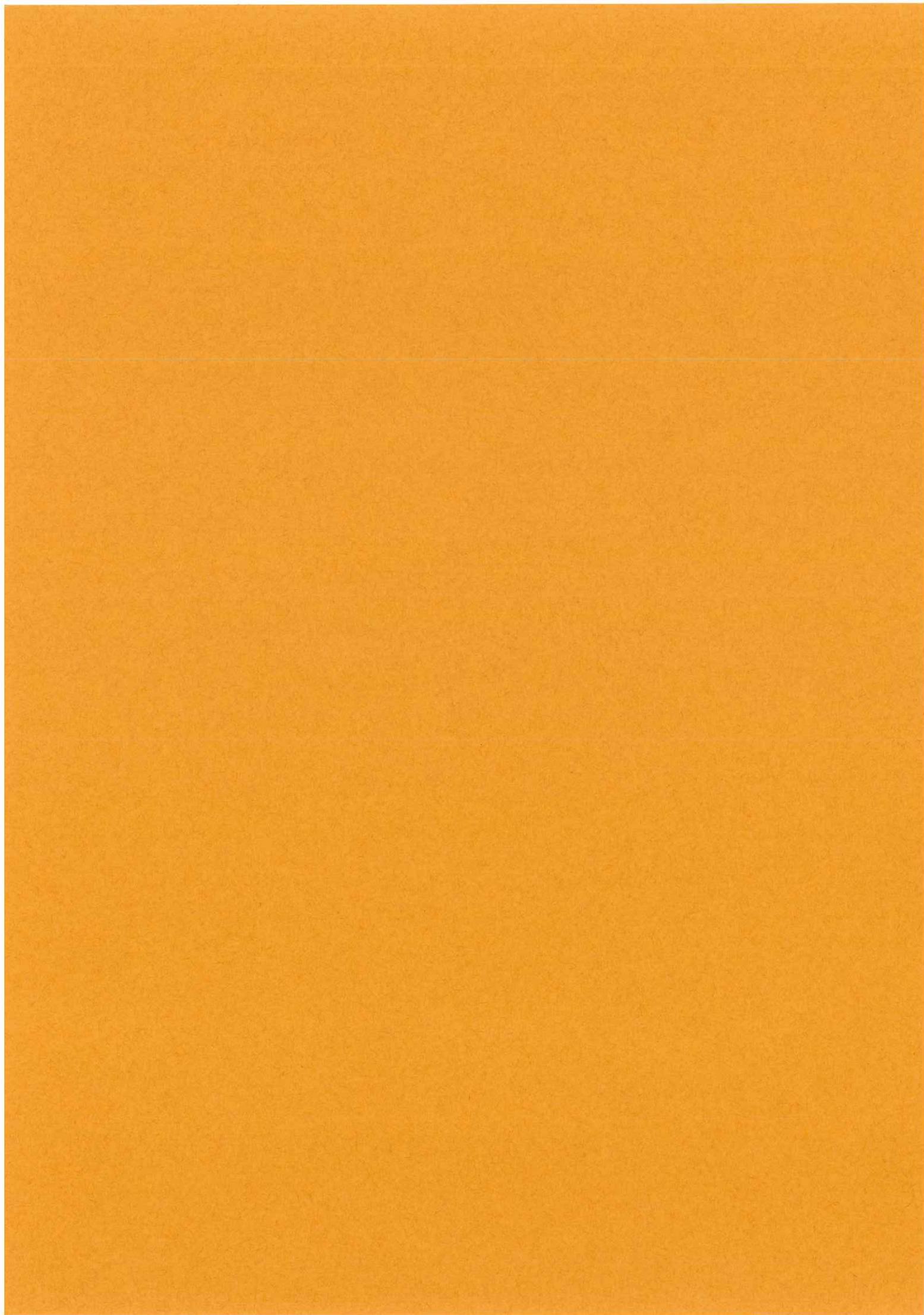
REFERENCES CHAPITRE IV

- 1 - O.V. LOUNASMAA, Experimental Principles and Methods Below 1 K, Academic Press : London and New York 1974.
- 2 - G. FROSSATI, Thèse Grenoble 1978.
- 3 - R.A. GUYER, R.C. RICHARDSON, L.I. ZANE, Rev. of Mod. Phys. 43 (1971) 532.
- 4 - P.R. ROACH, S.K. SINHA, B.K. SARMA, M. URTIS, Y. TAKANO, M. MISAWA, K. SKÖLD, R. KLEB and Z. SUNGAILA and J.B. KETTERSON and W.P. HALPERIN, AIP Conf. Proc. N° 103 : Quantum Fluids and Solids 1983.
- 5 - R.J. ROBERTSON, F. GUILLON, and J.P. HARRISON, Can. J. Phys. 61 (1984) 164.
- 6 - H. FRANCO, J. BOSSY and H. GODFRIN, Cryogenics September (1984) 477.



CHAPITRE V

CRISTALLISATION DE L' $^3\text{He}$  DANS DIFFERENTES CELLULES



A priori, on pourrait penser qu'il est impossible de faire croître un monocristal d' $^3\text{He}$  dans une cellule qui ressemble à une éponge métallique dont les pores sont de l'ordre de  $0,1 \mu\text{m}$ , mais qu'on obtient toujours une assemblée de microcristaux orientés de manière aléatoire les uns par rapport aux autres. Si le nombre de cristaux est suffisant ( $\sim 10^4$ ), il y en a toujours en position de réflexion, quelle que soit l'orientation de l'échantillon dans un faisceau de neutrons monochromatique et on peut directement observer les anneaux de Debye-Sherrer. Cela n'a jamais pu être observé aussi bien dans l' $^3\text{He}$  que dans l' $^4\text{He}$  (expériences à l'Institut Laue-Langevin (ILL) sur l'appareil D1B avec de l'hélium confiné dans de la poudre de  $1 \mu$ ). Cela nous a conduit à penser qu'il se forme toujours des cristaux relativement gros par rapport aux grains de la poudre métallique, et en trop petits nombres pour nous permettre d'observer un diagramme de poudre.

Cet important résultat nous a conduit à envisager la possibilité d'obtenir de gros cristaux dans ce type de cellule et de les observer directement sur un diffractomètre.



### 1. METHODE DE CRISTALLISATION

Comme souligné au chapitre III, dans les cellules utilisées, remplies de poudre métallique frittée, il s'est avéré impossible de réaliser une solidification à pression constante. En effet, un tel processus nécessite une circulation de liquide vers le point où s'effectue la solidification. Dans la poudre frittée, cette circulation entraîne un gradient de pression qui solidifie le liquide à l'entrée de la cellule et bouche le capillaire. L'application d'un gradient thermique ne suffit pas à éviter ce phénomène. La solidification a donc lieu à volume constant dans la cellule suivant le chemin indiqué sur le diagramme P,T de la figure 5.1.

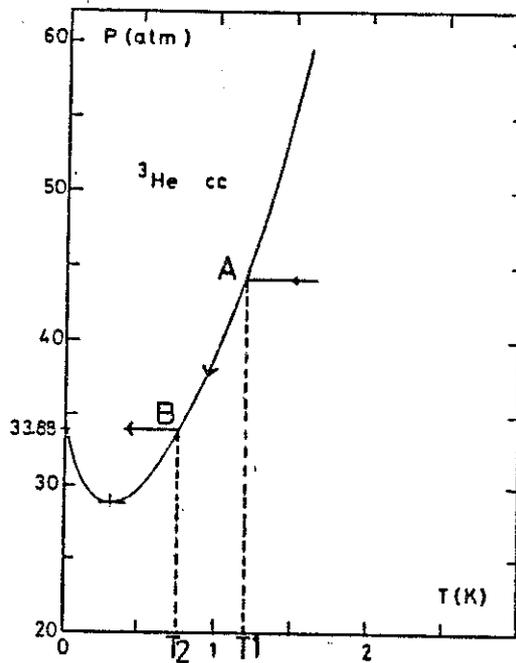


Figure 5.1  
Solidification de  $^3\text{He}$  le long du diagramme de phase

Au point A (température  $T_1$ ), le liquide commence à se solidifier et la cellule se bouche. De A à B (température  $T_2$ ), une variation de l'ordre de 400 mK produit une chute de pression de l'ordre de 10 bar au fur et à mesure que le solide se forme. Ensuite, la pression varie peu car la dilatation thermique du solide est très faible devant sa compressibilité. L'inconvénient de cette technique est qu'il peut rester, dans le solide une fois formé, des gradients de volume molaire.

En géométrie massive, ces gradients se recuisent bien. Vos et al.<sup>1</sup> ont mesuré des temps de recuit efficaces de 3 à 30 minutes pour l'hélium quatre en géométrie massive. Pour l'hélium trois, en géométrie confinée, on ne connaît pas les cinétiques de recuit. Un gros gradient de pression produirait un gradient de température de transition magnétique, ce qui serait très gênant pour observer la transition. Cependant, les mesures d'aimantation réalisées par Hata et al. dans la poudre d'argent en utilisant la même technique (cf. Figure 1.9) montrent une transition bien verticale, ce qui n'aurait pas été le cas s'il y avait eu un gradient de volume molaire.

La vitesse de cristallisation dépend de la capacité du milieu à évacuer la chaleur latente dégagée à l'interface liquide-solide, donc de la conductivité thermique, ainsi que de la forme de l'interface. La quantité qui contrôle la croissance du cristal est

$$\frac{\Delta S}{k_B} = \frac{H_F}{T_m}$$

où  $H_F$  est la chaleur latente en Kelvin et  $T_m$  la température du mélange liquide-solide,  $\Delta S$  le saut d'entropie et  $k_B$  la constante de Boltzman.

La nature rugueuse de l'interface liquide-solide de l' $^3\text{He}$ , récemment mise en évidence<sup>2</sup> jusqu'à une température  $T \sim 30$  mK, favorise aussi une croissance rapide du cristal. L'étude la plus complète sur la croissance de l' $^3\text{He}$  en géométrie massive a été réalisée par Simmons<sup>3</sup>. Cette étude montre que la formation d'un monocristal n'est pas obtenue de façon absolument systématique

Nous verrons que la croissance en géométrie massive a été plus difficile à obtenir que dans la poudre, sans doute parce que l'argent fritté évacue plus rapidement la chaleur latente vers la source froide.

## 2. ORIENTATION DES CRISTAUX : RECHERCHE EXPERIMENTALE DES REFLEXIONS (h, k, l)

L'orientation des cristaux d' $^3\text{He}$  obtenue après solidification étant aléatoire, il est nécessaire d'explorer pas à pas toute une partie du réseau réciproque pour pouvoir observer des réflexions de Bragg dans un faisceau de neutrons.

Les réflexions les plus intenses correspondent aux raies de type  $[110]$ , ce qui correspond à 12 points répartis sur une sphère dans l'espace réciproque, comme indiqué figure 5.2.

Les contraintes géométriques qui limitent l'observation de réflexions sont :

- Le faisceau de neutrons incident ainsi que sa longueur d'onde ( $\lambda = 0.87 \text{ \AA}$ ) sont fixes : vecteur  $\vec{k}$ .

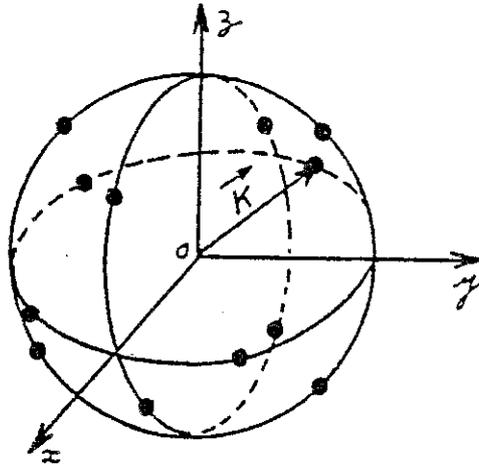


Figure 5.2

Répartition relative des points  $(1,1,0)$  du réseau réciproque par rapport au centre de symétrie du goniomètre.

- Le seul mouvement possible de l'échantillon (et du cryostat) consiste en une rotation autour de l'axe vertical, limité à un débattement de  $100^\circ$  (angle  $\omega$ ).
- Le compteur peut se déplacer dans le plan horizontal (angle  $\theta$ ) et s'élever en dehors de ce plan (angle  $\mu$ ). Ce dernier angle est limité à  $15^\circ$ , ce qui limite les orientations possibles du vecteur diffusé  $\vec{k}'$ .

Sur la figure 5.3, on a construit, compte tenu des contraintes géométriques exposées précédemment, l'ensemble des vecteurs de diffraction  $\vec{\kappa} = \vec{k} - \vec{k}'$  de module fixé (réflexion  $[110]$ ) susceptible d'être observés.

En replaçant sur cette figure les 12 points correspondant aux réflexions  $[110]$  pour une orientation quelconque, on peut calculer numériquement la probabilité d'observer des réflexions :

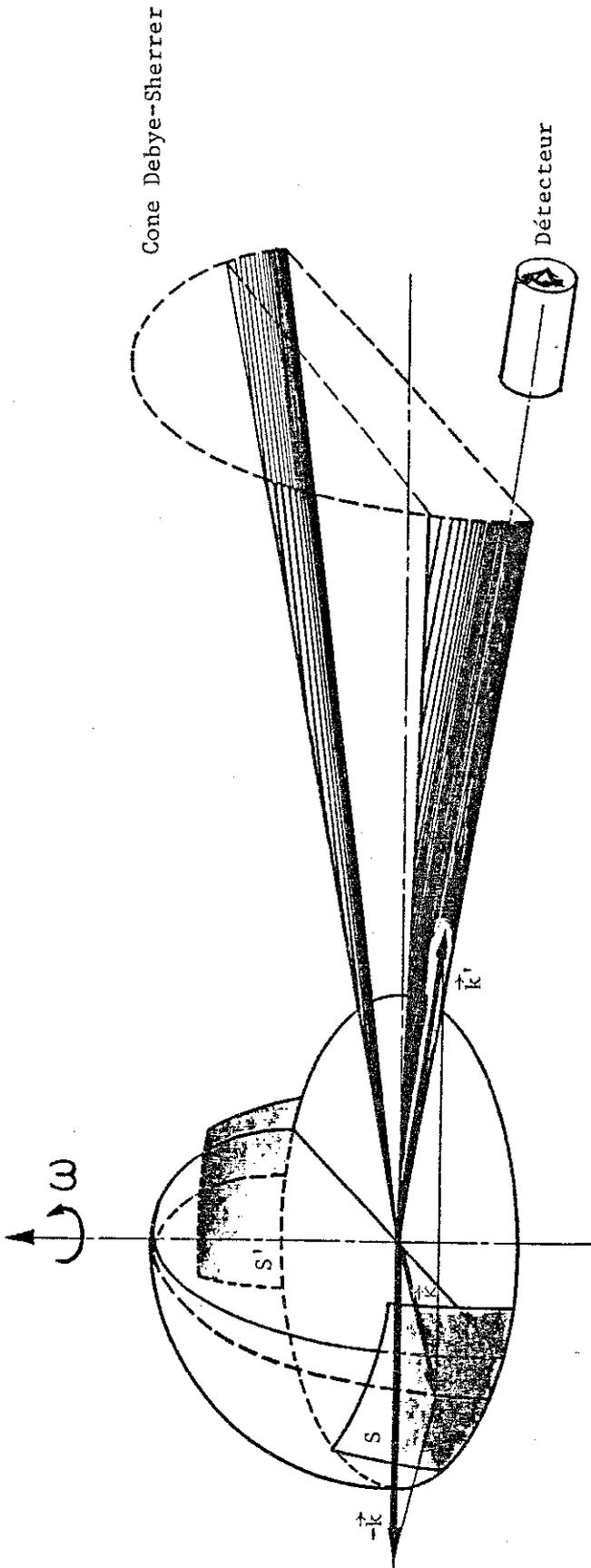


Figure 5.3

Le faisceau incident a une direction fixe  $\vec{k}$ . Le détecteur parcourt la région accessible expérimentalement du cône de Debye-Scherrer, qui correspond à la partie hachurée. Cette région est limitée à cause de l'encombrement qui représente la dalle en béton anti-vibration que l'on distingue sur la figure 3.10.  $\vec{k}$  est le vecteur de diffusion  $\vec{k} = \vec{k}' - \vec{k}$ . La sphère  $|\vec{k}|$  représente le cristal ; elle contient tous les vecteurs (110) du réseau réciproque. Le cristal est positionné au centre du goniomètre et n'a comme degré de liberté que la rotation  $\omega$ . Les coordonnées des raies (110) par rapport aux axes du goniomètre sont inconnues puisque le cristal pousse dans des directions aléatoires. La rotation en  $\omega$  possible est de  $100^\circ$ . Si, pour chaque position du détecteur sur le cône, on effectue une rotation  $\Delta\omega$  de  $100^\circ$ , le vecteur de diffusion  $\vec{k}$  balaye les surfaces S et S' à l'intérieur desquelles se trouve avec certitude un point du réseau réciproque.

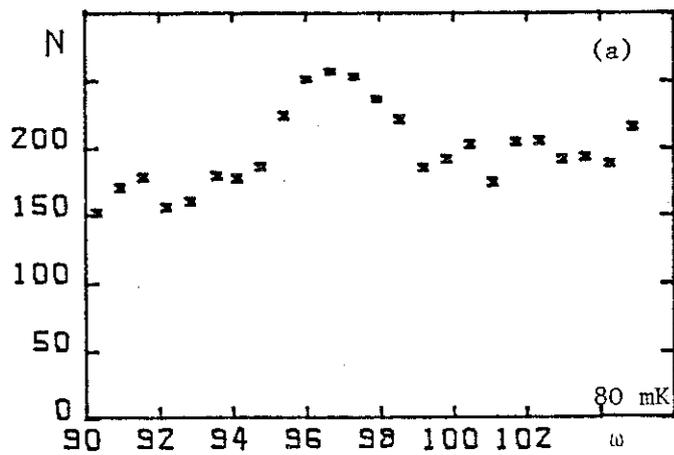
1 réflexion : 100 %  
2 réflexions : 70 %  
3 réflexions : 40 %

Compte tenu du flux dont on dispose ( $10^4 \text{ ncm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ), un temps de comptage de 60 s est nécessaire pour chaque point. L'ensemble de la recherche des réflexions correspond à 4000 points, compte tenu des pas effectués sur chaque angle : 0,5 degré pour  $\Omega$  et 1,5° pour l'angle  $\mu$ . L'orientation d'un cristal nécessite donc plusieurs jours.

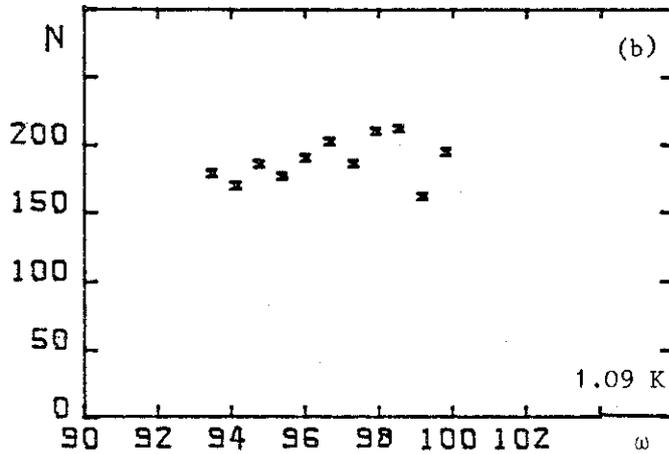
### 3. RESULTATS EXPERIMENTAUX SUR LA CRISTALLISATION

#### 3.1. Premiers résultats en géométrie confinée

Les expériences décrites par D. Rufin dans sa thèse ont montré que de gros monocristaux d' $^3\text{He}$  sont obtenus dans la poudre de cuivre de 1  $\mu\text{m}$  frittée. Par la suite, nous n'avons jamais réussi à observer le passage de la transition magnétique dans une cellule en cuivre. Les raisons de cet insuccès sont encore obscures. Par contre, la transition magnétique a été observée dans des cellules contenant de la poudre d'argent. Cependant, le cristal observé dans cette cellule s'est avéré être de mauvaise qualité. Nous montrons, à la figure 5.4, le nombre de neutrons observés,  $N$ , en fonction de l'angle de rotation  $\omega$  pour des temps de comptage de 120 secondes par point. En (a), la "rocking curve" correspond à la raie (110) d'un cristal d' $^3\text{He}$  à  $T = 80 \text{ mK}$  fabriqué par refroidissement lent (40 mK/heure) ; le volume molaire est  $V_M = 24,2 \text{ cm}^3/\text{mole}$ . Nous avons essayé de recuire ce cristal en le réchauffant progressivement ; nous suivons en même temps l'évolution du nombre de neutrons sur le maximum du pic de Bragg jusqu'à le voir complètement



# Fusion



# Recuit

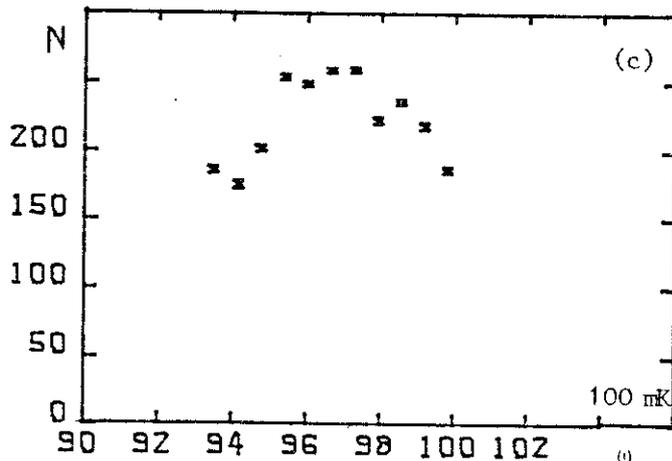


Figure 5.4

Balayage en  $\omega$  : à 80 mK (a) ; après avoir atteint la courbe de fusion pour  $T = 850$  mK à 1.09 K (b) et après un recuit avec une vitesse de refroidissement de 10 mK/h , à 100 mK - courbe (c).

disparaître dans le bruit de fond ; ceci se passe dans notre cas à  $T = 1,09$  K, donc bien en dessus de la température  $T = .85$  K où on a atteint la courbe de fusion. Sur la figure 5.4b, nous présentons la "rocking curve" faite à  $T = 1,09$  K : le signal de diffraction a disparu. La procédure de recuit que nous avons employée consiste en un refroidissement très lent (10 mK/heure). A la fin du recuit, à  $T = 100$  mK, la "rocking curve" de la figure 5.4c est obtenue. Le signal restant sensiblement le même que celui de la figure 5.4a, il semble que le cristal ne se recuise pas par cette technique.

### 3.2. Expériences systématiques dans la poudre de cuivre

Par suite du manque de maniabilité du cryostat à désaimantation nucléaire, nous avons réalisé nos mesures avec un cryostat à dilution d'un type nouveau, conçu et réalisé par MM. Benoit et Pujol. Ce cryostat est spécialement étudié pour les expériences de neutrons à très basse température. Il permet d'atteindre 50 mK depuis l'ambiante en quatre heures et présente l'avantage de changer d'échantillon très rapidement.

Les expériences décrites dans ce paragraphe sont réalisées avec une cellule faite avec de la poudre de cuivre française frittée, de taille de grains de  $1 \mu\text{m}$ . La température est mesurée avec une résistance au germanium, préalablement étalonnée et vissée sur la cellule.

Nous avons cherché les réflexions (1,1,0) sur huit solides fabriqués avec des volumes molaires voisins et des vitesses de cristallisation différentes. Nous résumons dans le tableau suivant les résultats obtenus ; les solides sont numérotés de 1 à 8 :  $V_M$  est le volume molaire en  $\text{cm}^3/\text{mole}$ ,  $\Delta T/\Delta t$  la vitesse de descente en température,  $P$  l'intensité intégrée dans le pic de Bragg en neutrons

Solide	$v_M$ cm <sup>3</sup> /mole	$\Delta T/\Delta t$ mK/h	Nombre de cristaux	P n/s	$\lambda$
C1	22.7	50	2	1.7	1.06
C2	24.2	100	1	2.6	.872
C3	24.4	100	0	—	.872
C4	24.4	100	0	—	.872
C5	24.4	1000	0	—	.872
C6	24.2	50	1	1.52	.872
C7	24.4	10	2	1.36	.872
C8	24.2	80	2	—	.872

par seconde,  $\lambda$  la longueur d'onde des neutrons. On constate à la vue des résultats du tableau ci-dessus que la formation de gros cristaux n'est pas systématique ; 100 mK par heure apparait comme une vitesse "critique" de cristallisation.

Nous montrons sur la figure 5.5 deux raies de Bragg observées sur le 7ème solide (C7, C10 mK/heure) appartenant au même cristal ; les temps de comptage sont de 200 s par point, les coordonnées de la [110] sont  $\theta = 8.00^\circ$ ,  $\mu = 5.60^\circ$ , celles de la [101] sont  $\theta = -6.5^\circ$ ,  $\mu = 9.80^\circ$ .

Le cristal observé avec une rampe en température de 100 mK par heure (solide C2) présente une largeur de raie plus grande que les autres ; la "rocking curve" correspondante est présentée à la figure 5.6 pour une température de .3 K. Nous avons essayé de recuire ce cristal. Sur la figure 5.6, nous montrons également la "rocking curve" obtenue à .95 K et, à la figure 5.7, la courbe obtenue après un refroidissement lent (10 mK/heure), à .4 K ; elle confirme que la technique de recuit employée ne marche pas en géométrie confinée.

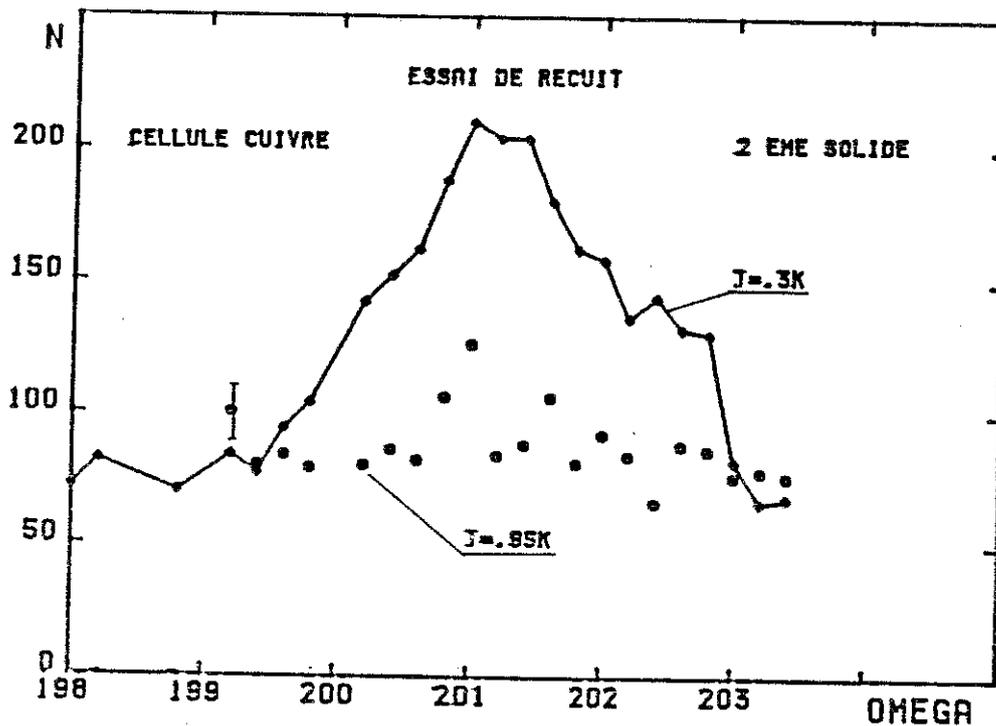


Figure 5.6  
Balayage en  $\omega$  pour le cristal C2 à  $T = 0.3$  K et à  $T = .95$  K.

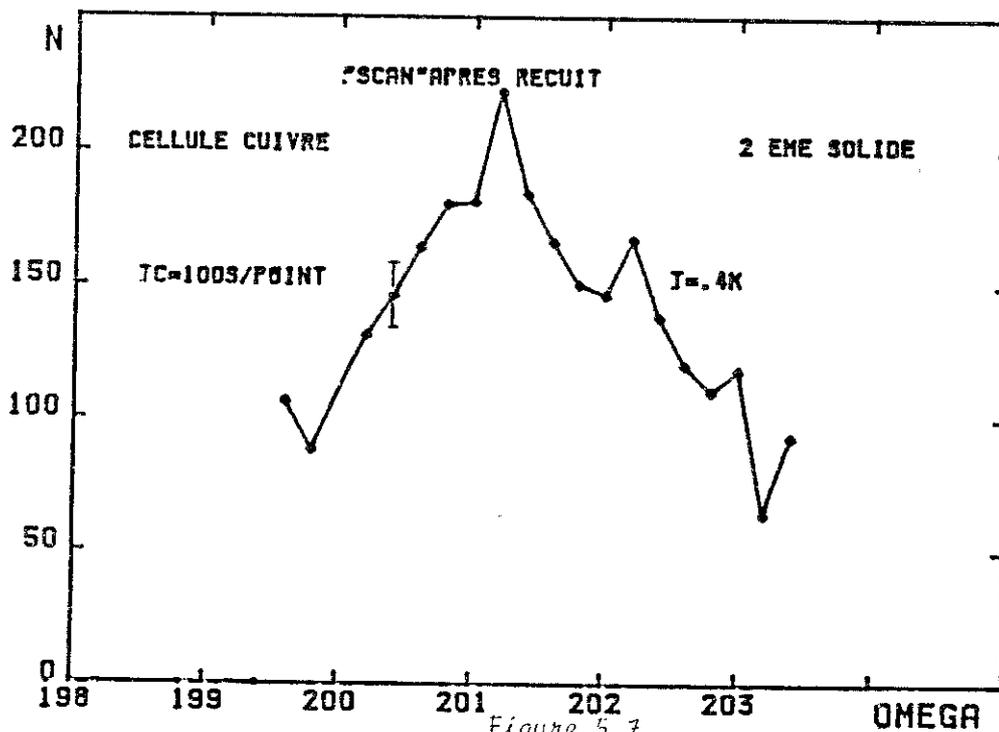


Figure 5.7  
Balayage en  $\omega$  pour le cristal C2 après un recuit ;  
observation à  $T = 0.4$  K.

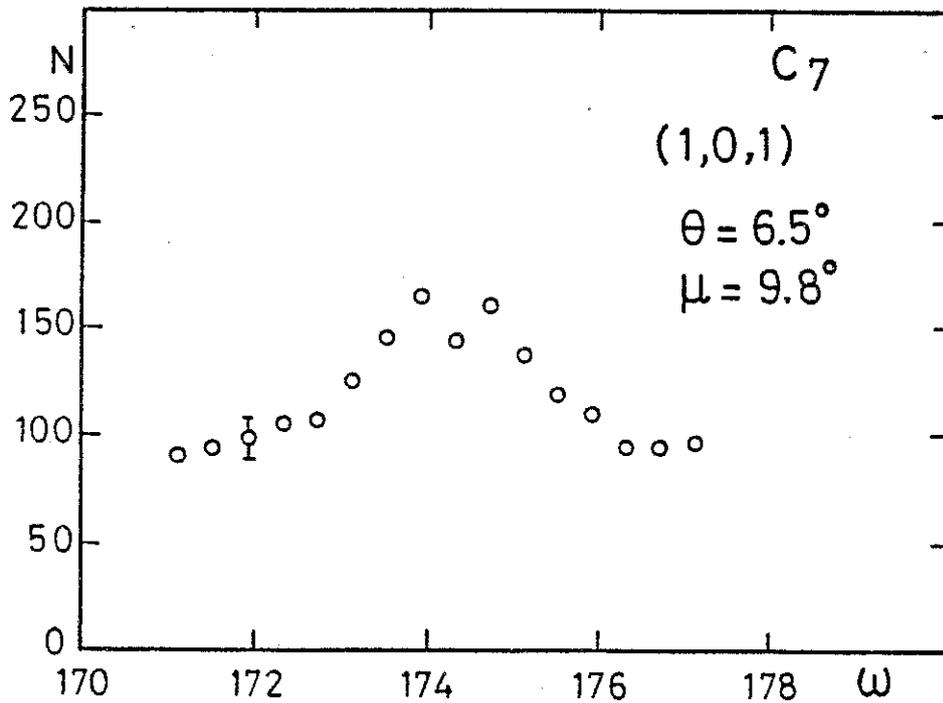
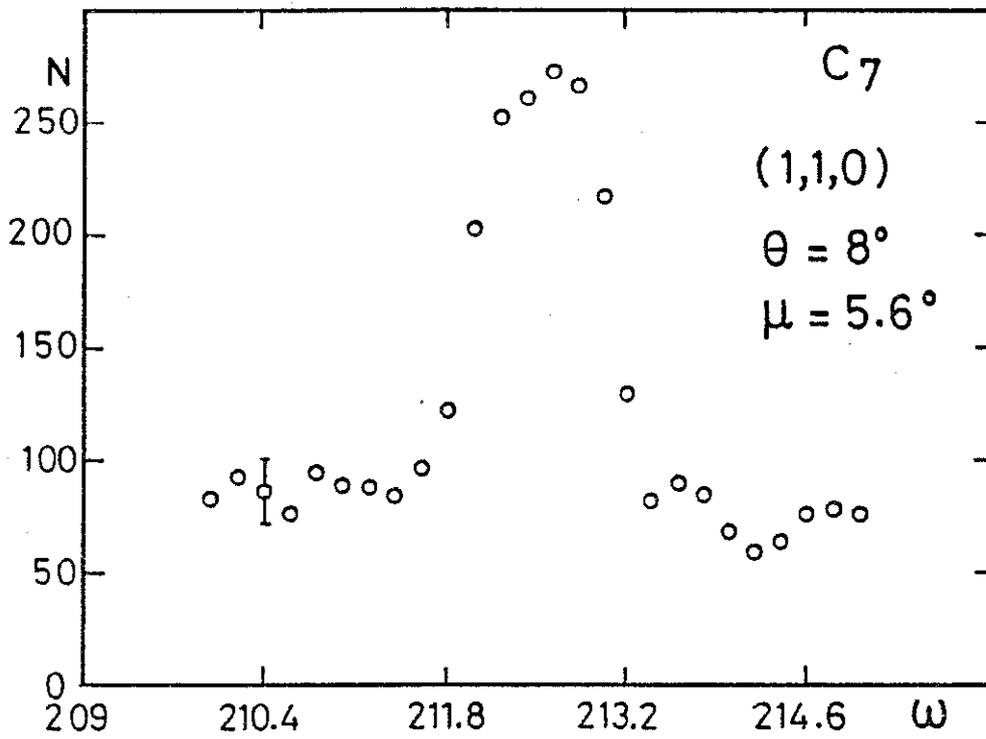


Figure 5-5 : Balayage en  $\omega$  des raies 110 (en haut) et 101 (en bas) pour le solide C7 ; temps de comptage : 200 s. par point.

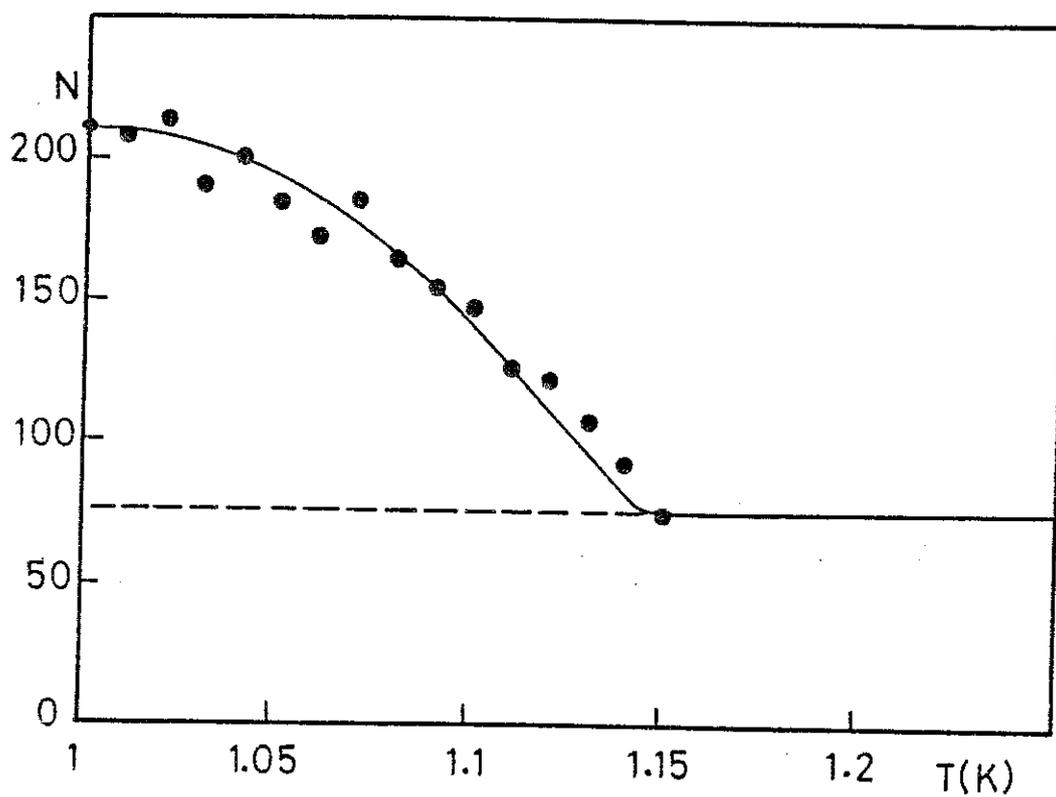


Figure 5.8

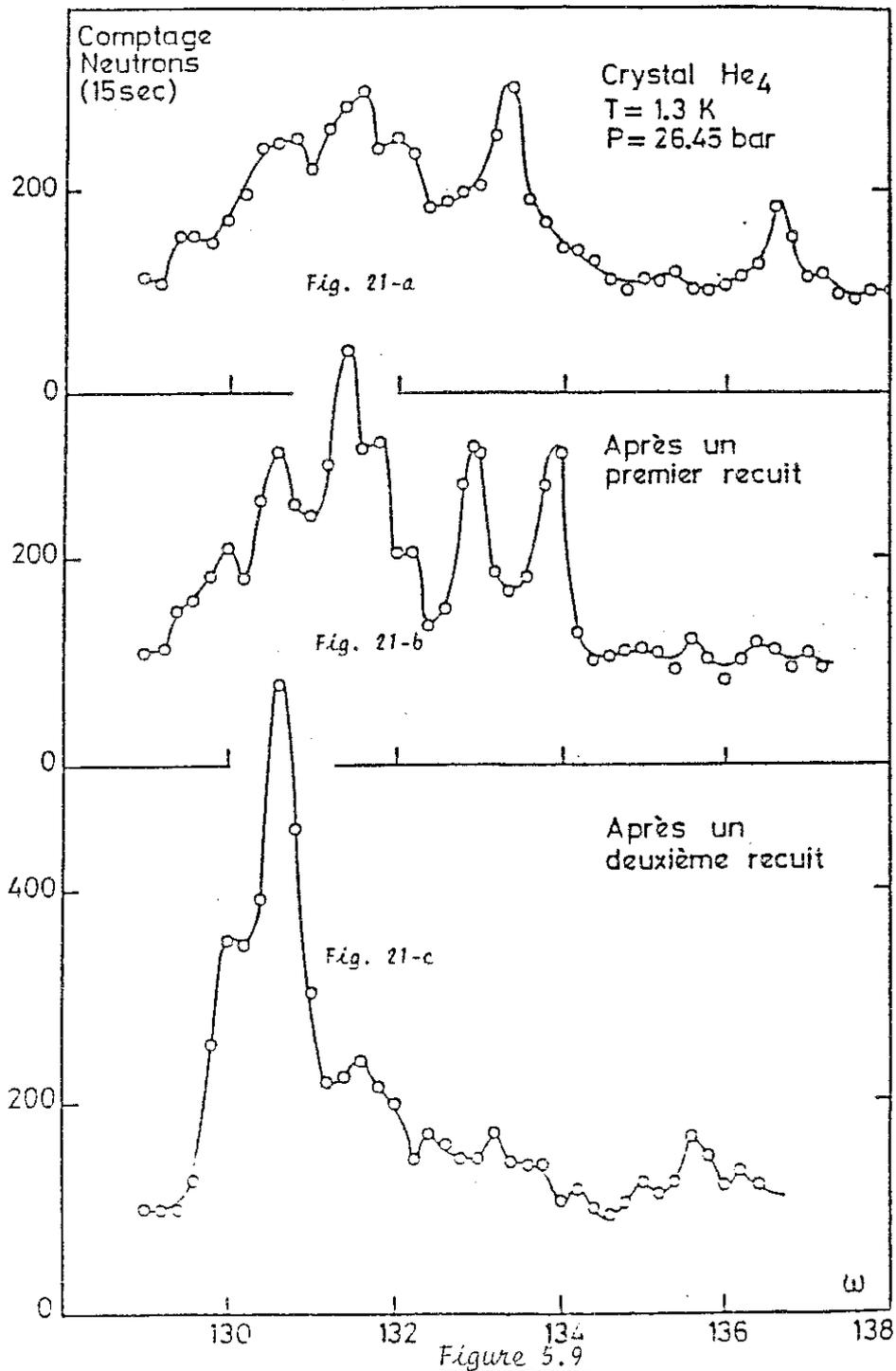
Observation de la fusion d'un cristal d' $^3\text{He}$  confiné dans la poudre de cuivre ; la fusion est progressive.

De même, nous avons essayé de recuire le solide C6 (50 mK/h). Sur la figure 5.8, nous suivons l'évolution du maximum du pic de Bragg en fonction de la température. A 1.03 K, le signal disparaît dans le bruit de fond. Nous avons constaté que, *quelle que soit la vitesse de descente en température, le signal de Bragg repousse de la même manière*. Ce qui est étonnant, c'est la rapidité avec laquelle le cristal repousse à partir du mélange liquide-solide, ce qui peut se comprendre en considérant la facilité avec laquelle la chaleur latente est évacuée dans le milieu. Nous avons recommencé l'expérience plusieurs fois et constaté que, si au lieu de 1.03 K le cristal est chauffé à 1.05 K, le cristal ne repousse plus lorsqu'on redescend à basse température, comme si le germe avait été détruit par cette opération. La qualité du cristal est sans doute liée à la formation du germe qu'il est très difficile de recuire, vraisemblablement à cause de la géométrie complexe de la poudre frittée.

Il semble donc que les techniques de recuit, qui avaient été utilisées avec succès dans les cristaux d' $^4\text{He}$  fabriqués à partir du superfluide comme en témoigne la figure 5.9, ne marchent plus pour  $^3\text{He}$ .

### 3.3. Cristallisation en géométrie massive

Nous avons voulu comparer les mécanismes de croissance de  $^3\text{He}$  dans la poudre frittée avec ce que l'on obtiendrait dans un volume libre, toujours en cristallisant à volume constant. Un problème se pose pour mettre au point une cellule de .1 mm d'épaisseur. Nous avons utilisé la cellule à "quadrillage" décrite au chapitre IV. Nous avons fabriqué deux solides et cherché les réflexions. Alors que nous pensions observer des réflexions plus in-



Expérience de recuit sur <sup>4</sup>He dans la poudre de cuivre frittée.  
Le solide se recuit facilement au contact du superfluide.

tenses que dans la poudre, nous n'avons rien vu du tout. Le premier solide a été fabriqué sans faire de rampe en température. Le volume molaire est  $V_M = 23.0 \text{ cm}^3/\text{mole}$  ; aucun signal n'a été observé dans toute la région expérimentale accessible. Le deuxième solide a été fabriqué avec une vitesse de 80 mK/heure ; aucun signal n'a été observé. Nous avons refait l'expérience avec une autre cellule vide décrite également au chapitre IV et répertoriée sous le titre "cellule joint indium". Nous avons fait quatre solides dans des conditions différentes ; les résultats sont résumés dans le tableau suivant.

$\phi = 10^4 \text{ n/s}$	$\alpha$	$\Delta T/\Delta t \text{ mK/heure}$	$V_M \text{ cm}^3/\text{mole}$	Cristaux	P n/s
M 1	1.4	Solidification brutale	23.7	Pas de signal	—
M 2	1.4	80	22.2	Pas de signal	—
M 3	.75	40	22.2	1	1.7
M 4	.75	30	23.7	1	

Un monocristal en géométrie massive n'est obtenu que pour une vitesse de cristallisation plus faible que dans la poudre d'argent ( $\Delta T/\Delta t = 40 \text{ mK/heure}$ ). L'intensité des signaux observés est du même ordre de grandeur que ceux observés dans la poudre. Les cristaux ont en général des dimensions qui sont comparables aux dimensions de la cellule. Le faisceau a une dimension ( $30 \times 10 \text{ cm}$ ) ; nous l'avons collimaté avec une fenêtre en cadmium de ( $10 \times 10$ ), que nous pouvons déplacer, pour observer indépendamment le haut, le milieu et le bas de la cellule. Sur la figure 5.10, nous montrons une raie de Bragg observée sur le 3ème solide. Ce cristal est caractérisé par une mosaïque importante. Comme le montre la figure 5.11, nous avons observé localement, en haut, au milieu et en bas, la forme des raies de Bragg ; cette observation montre que la mosaïque du cristal n'est pas homogène dans tout le volume.

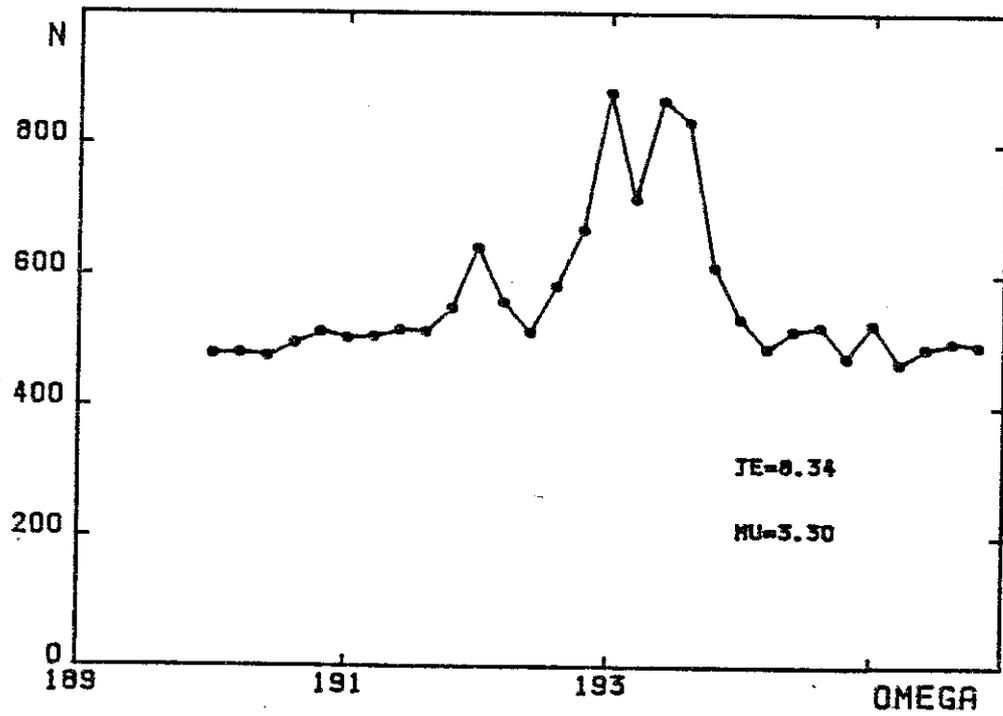


Figure 5.10

Balayage en  $\omega$  pour le cristal  $M_3$   
Le temps de comptage est de 600 s. par point à  $T = 300$  mK.

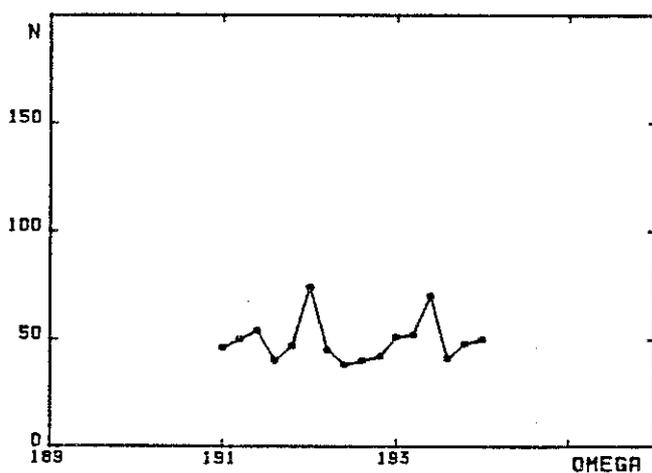
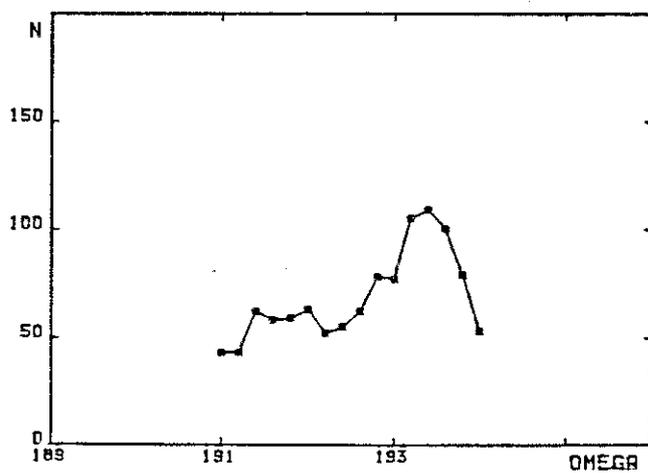
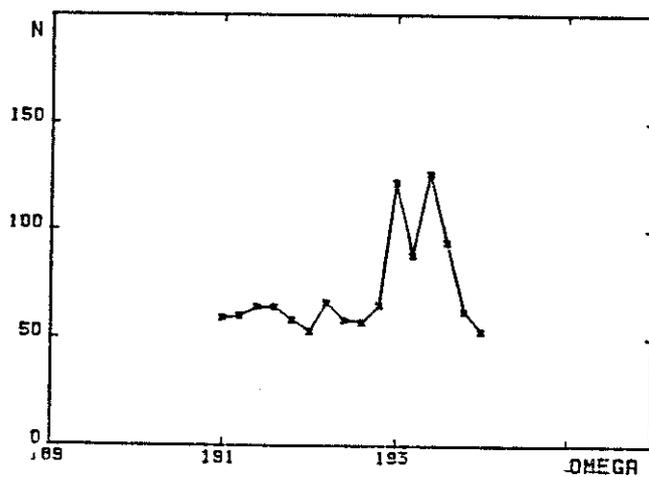


Figure 5.11

Balayage en  $w$  du solide  $M_3$  à différentes hauteurs correspondant au bas, milieu et haut de la cellule.

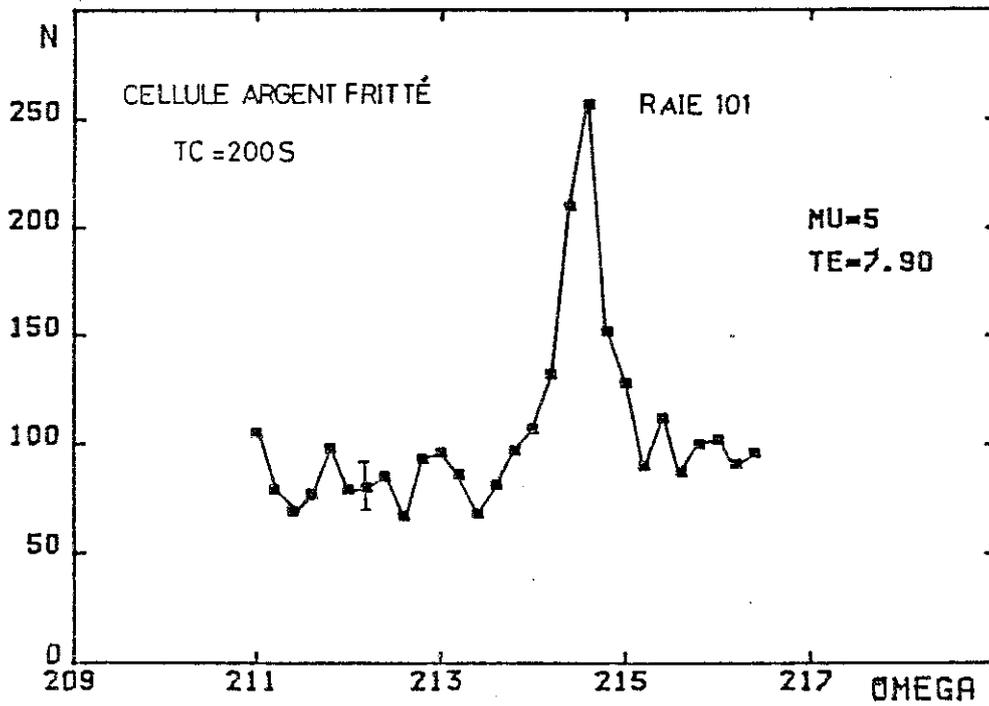
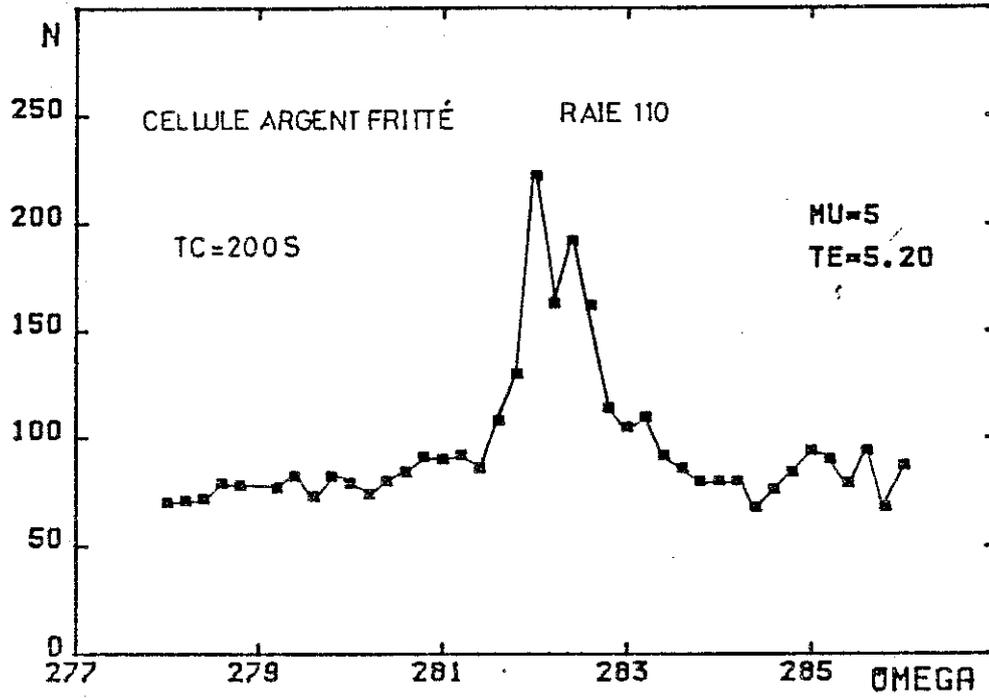


Figure 5-12 : Balayage en Omega sur les raies de Bragg 110 et 101 pour le cristal A1.

### 3.4. Cristallisation dans la poudre d'argent

Nous présentons dans ce paragraphe les résultats sur la cristallisation obtenus dans deux cellules réalisées avec de la poudre d'argent japonaise de 700 Å. La cellule A1 contient de la poudre compactée à 45 % et chauffée pendant une demi-heure à 200°C sous atmosphère d'argon. La cellule A2 est fabriquée selon la même procédure mais n'a pas reçu de traitement thermique autre que celui occasionné par le fer à souder pour la soudure du clinquant de cuivre. Nous résumons les résultats dans le tableau ci-dessous. Pour le 1er solide observé dans la cellule A1, nous avons effectivement observé la cristallisation sans pouvoir mesurer l'intensité des pics de Bragg par suite de problèmes cryogéniques. Les vitesses de cristallisation sont faibles.  $\Delta T/\Delta t \sim 40$  mK/heure. Un monocristal a été observé dans chaque expérience. Sur la figure 5.12, nous présentons les pics de Bragg observés pour le deuxième solide fait dans la cellule A2.

Cellule	Solide	$V_M$	$\Delta T/\Delta t$	$\alpha$	Nb de cristaux	P n/s
A1	1	24.2	40	1	1	—
	2	24.2	40	1	1	0.5
A2	1	24.2	25	.77	1	0.48

La cristallisation de  $1^3\text{He}$  dans la poudre d'argent est maintenant réalisée avec succès. C'est dans le même type de cellules que  $1^3\text{He}$  a été refroidi au-dessous de la transition magnétique.

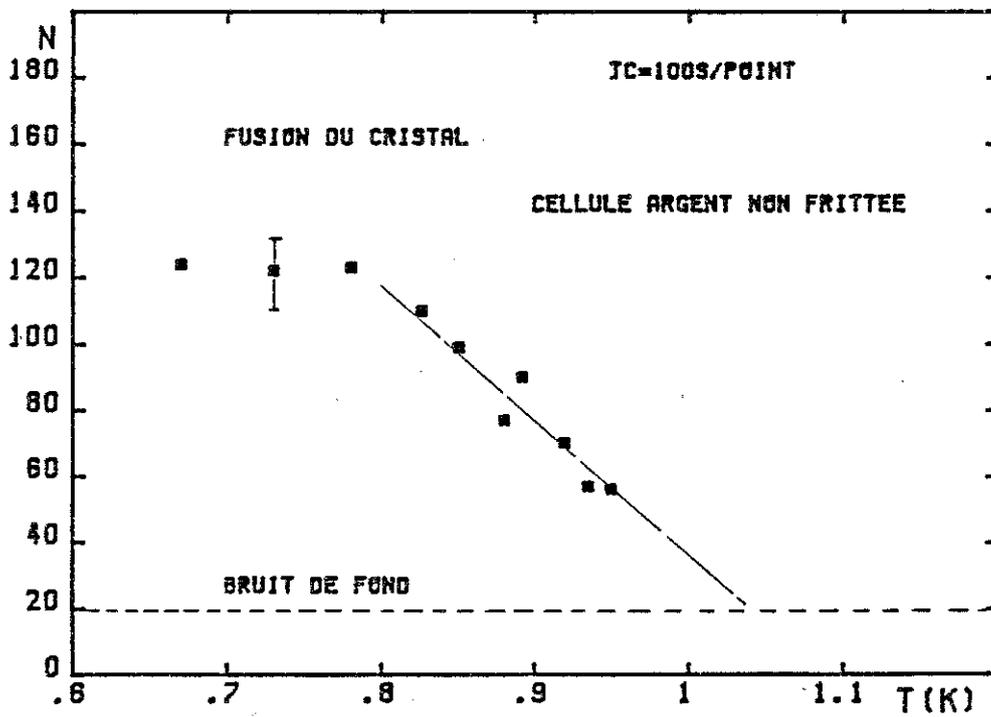


Figure 5.13

Variation de l'intensité de la réflexion (110) au cours de la fusion d'un cristal confiné dans la poudre d'argent (A1) ; le point frappant est la persistance de l'orientation sur une large gamme de température.

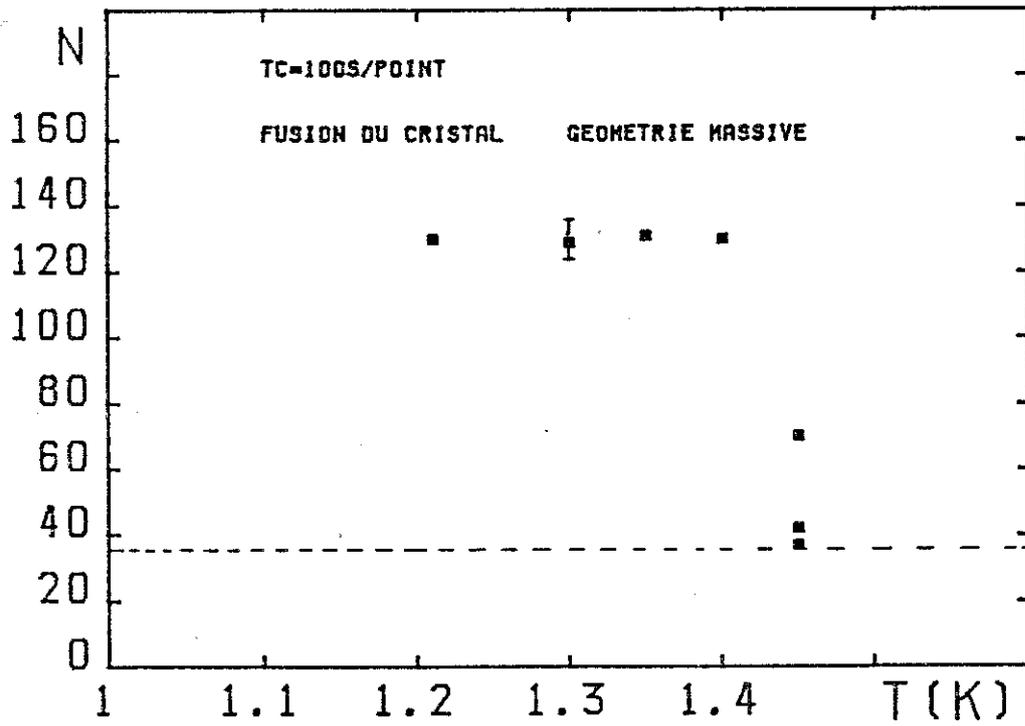


Figure 5-14 : Disparition brutale de l'orientation du cristal formé dans une géométrie massive : variation de l'intensité de la raie 110 en fonction de la température.

### 3.5. Remarque sur la fusion des cristaux

Nous avons déjà souligné dans les paragraphes précédents, lorsqu'il était question de recuits, qu'on observait la fusion des cristaux en mesurant l'évolution du nombre de neutrons au sommet du pic de Bragg avec la température. Dans la poudre de cuivre, l'intervalle de température entre le début de la fusion et la disparition du signal dans le bruit de fond est  $\Delta T \sim 100$  mK. Ce résultat est confirmé par la fusion d'un cristal dans la cellule A2 ( $V_M = 24.2$  cm<sup>3</sup>/mole). Comme représenté sur la figure 5.13, le signal diminue progressivement à partir du point de fusion ( $T \sim .8$  K) sur un intervalle  $\Delta T = 200$  mK correspondant à la fusion progressive du cristal.

Par contraste, nous observons sur la figure 5.14 la fusion d'un cristal en géométrie massive. Il s'agit du 1er cristal observé dans la cellule "indium". Le volume molaire est  $V_M \cong 22.4$  cm<sup>3</sup>/mole ; le signal disparaît dès que le point de fusion est atteint. Nous avons vu que ce cristal était caractérisé par une mosaïque importante, à partir de l'observation d'une raie de Bragg (fig. 5.10). Nous ne pouvons pas savoir si, dans le cadre de cette expérience, il n'y a pas plusieurs cristaux dans la cellule. Il semble qu'en géométrie massive, dès que la courbe de fusion est rejointe, les cristaux se recuisent ; dans le cas présent, les cristaux se sont recuits dans une direction autre que celle d'observation, ce qui explique la disparition immédiate du signal.

### 4. MESURE DU FACTEUR DE DEBYE-WALLER

Nous avons observé pour la première fois aux neutrons la réflexion (200) de l'<sup>3</sup>He. Le rapport des intensités des réflexions (110) et (200) permet de mesurer le facteur de Debye-Waller de l'<sup>3</sup>He que nous écrivons sous la forme

$$e^{-2W} = \exp\left[2B_{DW} \frac{\sin^2\theta_b}{\lambda^2}\right]$$

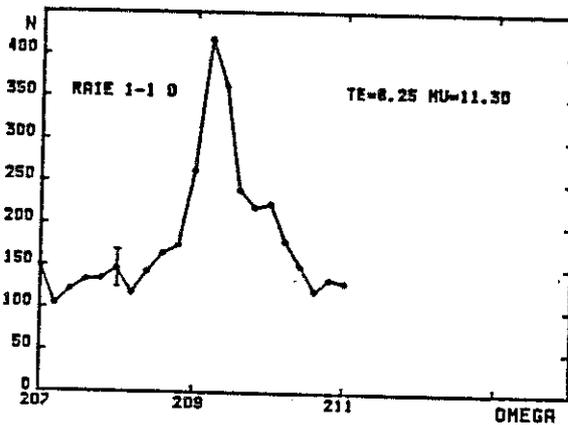
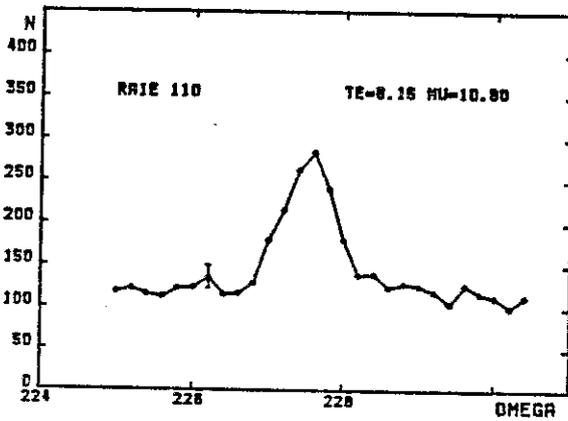
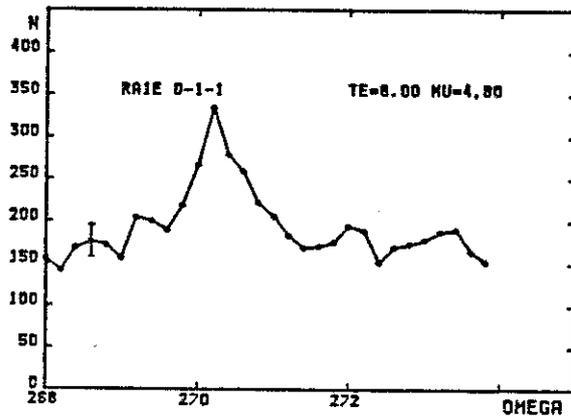


Figure 5.15

Affinement de l'orientation du cristal  $M_4$  par la détermination des raies (110) (110) et (011), pour se positionner sur la (200)

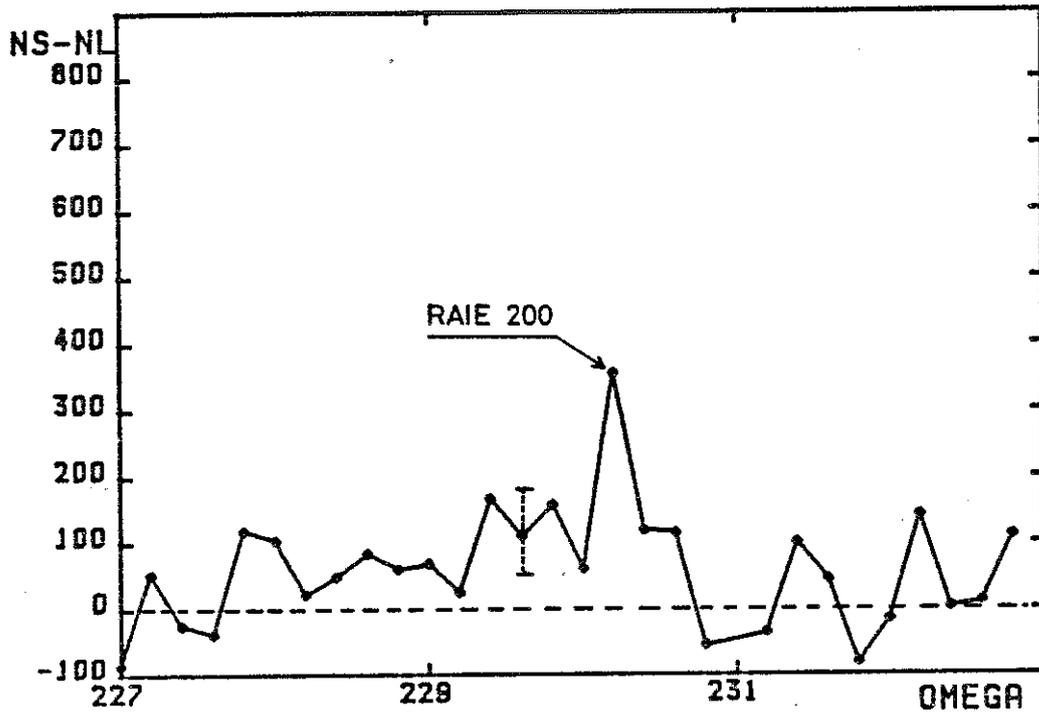


Figure 5.16

Balayage en  $\omega$  sur la première réflexion (200) observé sur le cristal  $M_4$ .

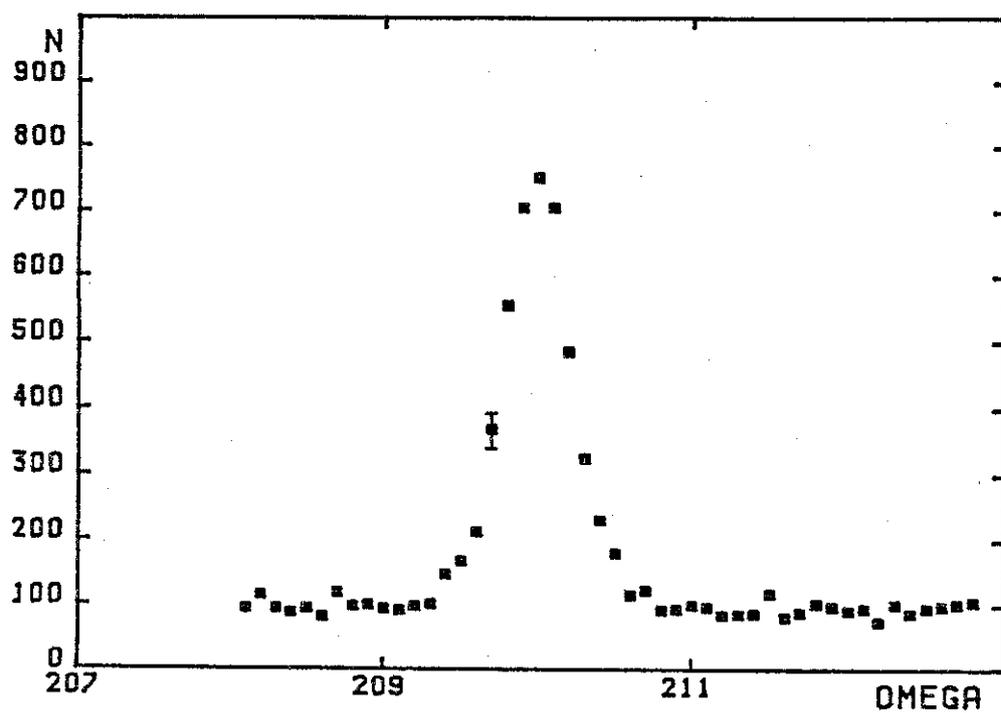


Figure 5.17

Raie de Bragg (110) observée dans la cellule A2,  
le temps de comptage est de 600 s. par point.

Pour un solide harmonique,  $B_{DW}$  ne dépend pas de  $K$ .

La première observation de la raie (200) a été réalisée sur un des cristaux observés dans la cellule "joint indium" (4ème solide). Trois réflexions (110) sont nécessaires pour déterminer complètement l'orientation du cristal. Nous présentons à la figure 5.15 les réflexions  $(1\bar{1}0)$ , (110) et  $(0\bar{1}\bar{1})$  ; les temps de comptage sont de 300 s par point. La mesure de la réflexion (200) s'est effectuée de la manière suivante : le cristal est placé en position de réflexion pour la (200) et nous faisons une "rocking curve" autour de la valeur calculée de  $\omega$ . L'observation est difficile à cause d'un bruit de fond important causé par la cellule expérimentale. Nous voyons à la figure 5.16 la première observation de la raie (200). Le temps de comptage est de 2000 s par point ; le signal assez faible n'a pu être réellement observé qu'en faisant la différence des comptages dans le solide ( $N_S$ ) et dans le liquide ( $N_L$ ).

Nous avons fait une deuxième expérience en orientant de la même façon le cristal observé dans la cellule 12. Pour diminuer le bruit de fond, nous avons intercallé un tube gainé de cadmium entre le cryostat et le détecteur. Ce tube est pompé pour éviter l'absorption et la diffusion des neutrons par l'air. Nous avons comparé les intensités intégrées des raies (110) et (200). La figure 5.17 représente une "rocking curve" de la raie (110) pour un temps de comptage de 600 s/point. La figure 5.18 présente la raie (200) observée. Le temps de comptage est de 2000 s/point. ( $N_S - N_L$ ) est la différence des comptages dans le solide et dans le liquide.

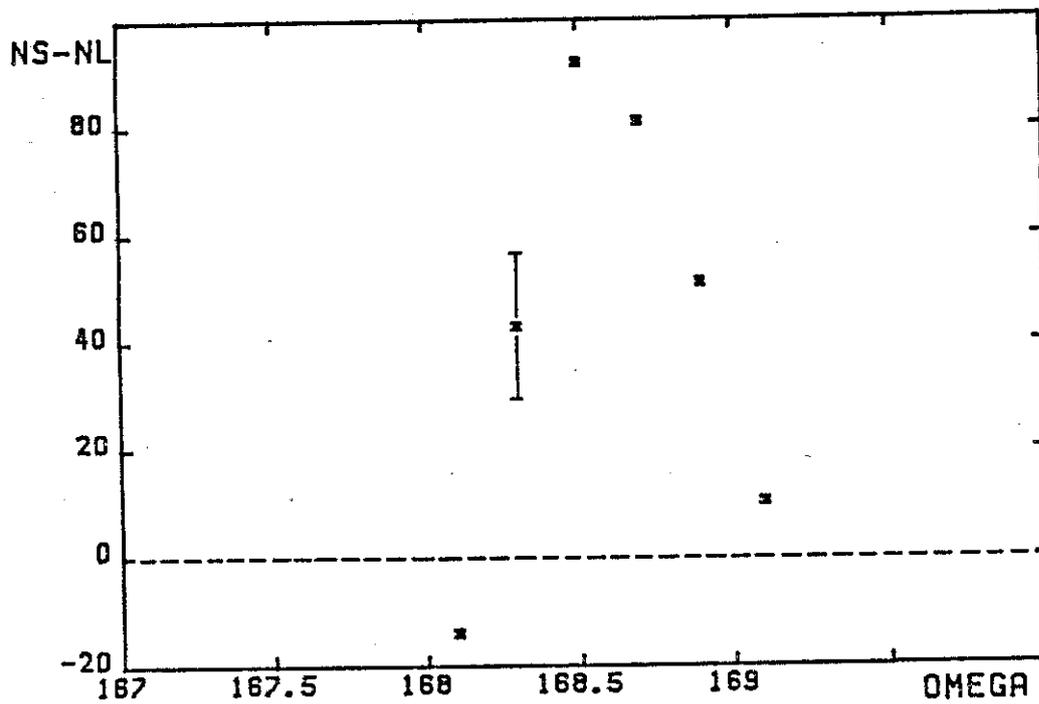


Figure 5.18

Observation de la raie (200) dans la cellule A2 ;  
NS-NL est la différence du nombre de coups dans le  
solide et dans le liquide après fusion du cristal ;  
le temps de comptage est de 2 000 s. par point.

Les coordonnées des raies ainsi que les valeurs des différents paramètres expérimentaux sont données dans les tableaux suivants.

Raies	$1/\sin^2 \theta_b \times A(hk\ell)$	Absorption	$\sin^2 \theta_b / \lambda^2$	P (2000 s)	$2\theta$	$\mu$	$\theta_b$
110	3.67	.967	.0283	5015±155	15.90	5.70	8.43
200	2.49	.895	.0561	276±60	23.70	2.60	11.92

La valeur de  $B_{DW}$  calculée à partir de ces résultats expérimentaux est :

$$B_{DW} = 44 \pm 5 \text{ \AA}^2$$

La valeur expérimentale de  $B_{DW}$  est en bon accord avec un calcul de  $B_{DW}$  à partir de l'approximation harmonique qui donne  $B = 50.1 \text{ \AA}^2$  ; en utilisant une température de Debye  $\theta_D = 19 \text{ K}$  obtenue par des mesures de chaleur spécifique réalisées par Grewall<sup>7</sup>.

La chaleur spécifique de réseau de l'<sup>3</sup>He solide est bien représentée par une loi en  $T^3$  c'est-à-dire par des excitations dues aux phonons à très basses températures. Lorsqu'on monte en température on observe en chaleur spécifique des déviations importantes par rapport à l'approximation harmonique.

La mesure de  $B_{DW}$  est reliée au déplacement moyen des atomes  $\Delta x$  par la relation

$$(\Delta x)^2 = \frac{3B}{8\pi^2}$$

$$\Delta x = 1.30 \text{ \AA}$$

le déplacement atomique représente donc  $\sim 35\%$  de la distance entre les premiers voisins qui vaut  $3.74 \text{ \AA}$ , pour une volume molaire  $V_m = 24.2 \text{ cm}^3/\text{mole}$ .

L'anomalie de chaleur spécifique observée<sup>7</sup> prévoit une variation importante de la température de Debye  $\theta_D$  à haute température ( $\sim .5\text{K}$ ). Cette variation de  $\theta_D$  impliquerait une perte de signal sur les raies de Bragg ; cette perte serait de l'ordre de 50% lorsque la température passe de 80 mK à .5K. Or nous n'avons jamais observé de baisse de signal dans cette gamme de température. Ce résultat semble prouver que l'anomalie de chaleur spécifique fait intervenir d'autres excitations que les phonons telles que les lacunes.

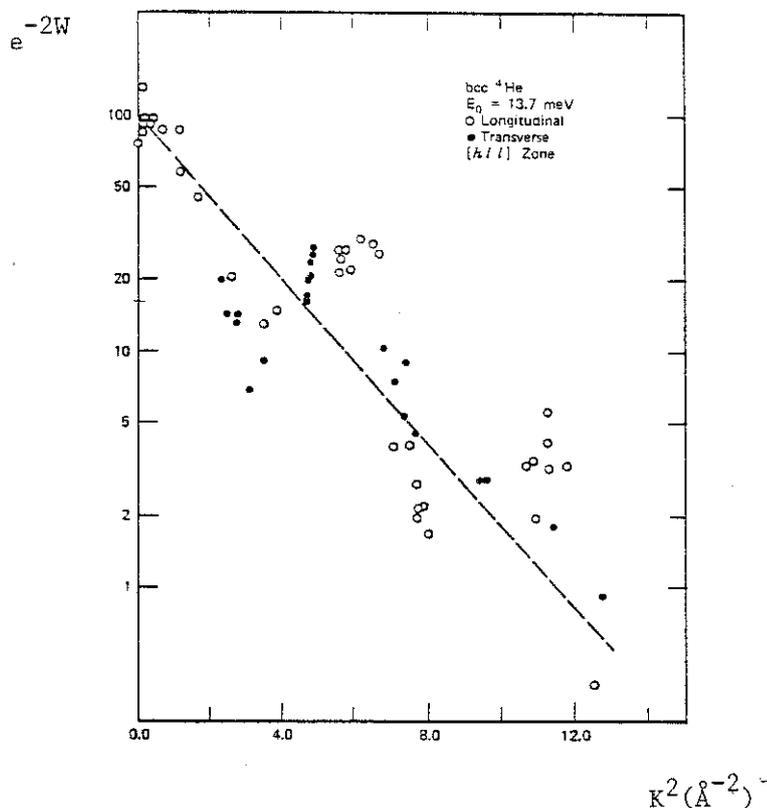


Figure 5.19  
 Mesure du facteur de Debye-Waller pour l'<sup>4</sup>He cubique centré, d'après Minkiewicz<sup>5</sup>. La courbe en pointillé représente la valeur calculée à partir de l'approximation harmonique.

Des mesures ont été réalisées par Minkiewictz<sup>5</sup> sur  $1^4\text{He}$  dans la phase cubique centrée par diffusion inélastique de neutrons. Le résultat représenté à la figure 5.19 montre, pour  $1^3\text{He}$ , un comportement oscillant de  $B_{\text{DW}}$  en fonction de  $K^2$ . Il serait intéressant d'accroître la précision de nos mesures en améliorant la statistique et de les étendre à d'autres réflexions (hkl).

## 5. CONCLUSION

Les points majeurs de cette étude sont :

- Observation systématique de signaux de diffraction en géométrie confinée d'amplitude comparable à ceux observés en géométrie massive.
- Existence de vitesse critique de refroidissement, 100 mK/h pour la géométrie confinée, 40 mK/h pour la géométrie massive.
- Facilité de faire recroître le cristal dans sa même orientation et échec des recuits après une fusion incomplète du cristal en géométrie confinée.
- Première observation par diffraction des raies (200) de  $1^3\text{He}$  bcc et possibilité ainsi donnée de déterminer le facteur Debye-Waller.
- Parallèlement, ces expériences nous ont permis d'optimiser les performances du goniomètre pour la recherche ultérieure des raies magnétiques.

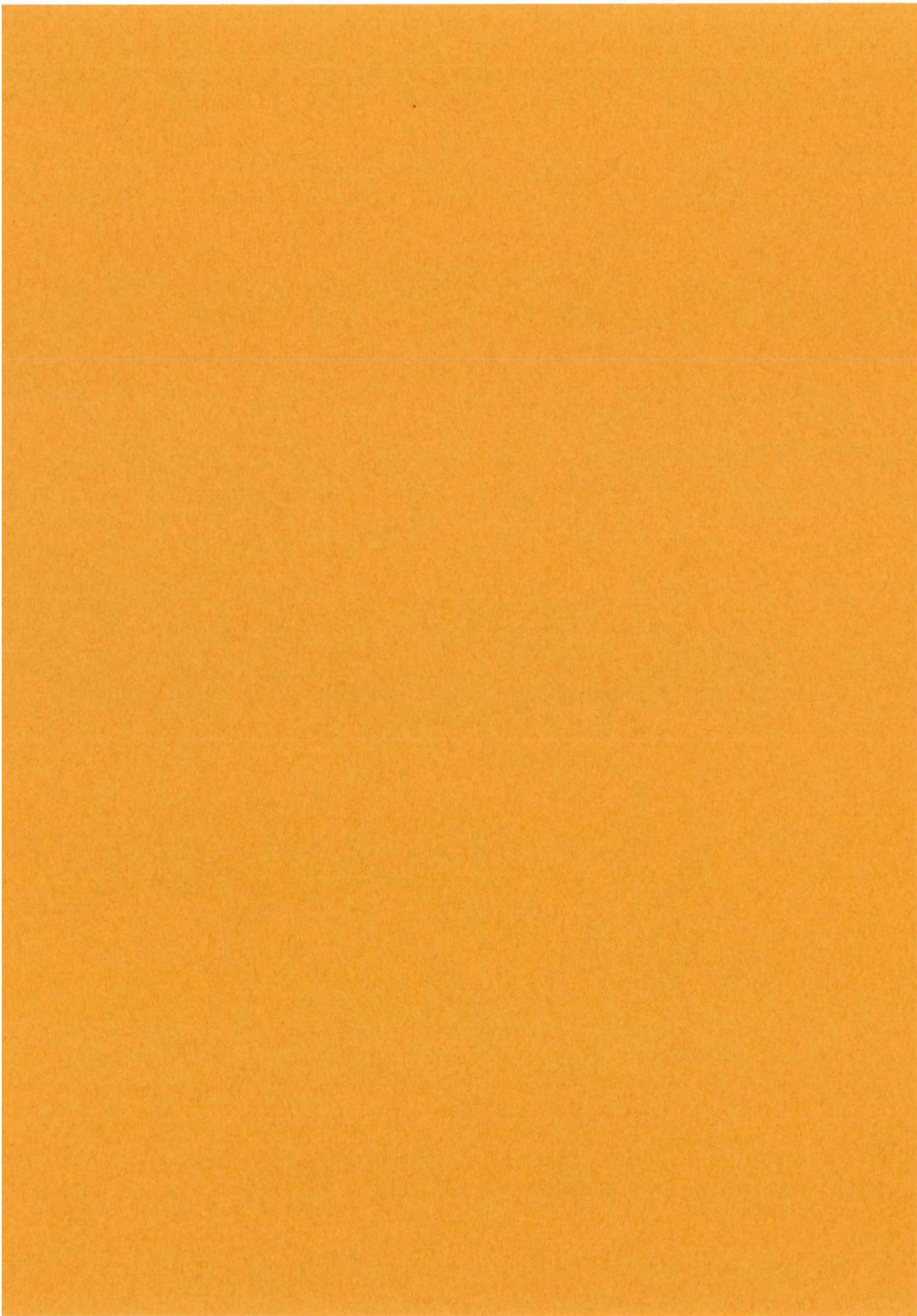
REFERENCES CHAPITRE V

- 1 - J.E. VOS, B.S. BLAISSE, D.A.E. BOON, W.J. VAN SCHERPENZEEL and  
R. KIWGMA  
Physica 37 (1967) 51.
- 2 - B. CASTAING  
Communication privée.
- 3 - B.A. FRASS, S.M. HEALD and R.O. SIMMONS  
Journal of Crystal Growth 42 (1977) 370.



CHAPITRE VI

REFROIDISSEMENT DE L'<sup>3</sup>He SOLIDE  
A TRES BASSE TEMPERATURE



La transition magnétique de l' $^3\text{He}$  solide à  $T \sim 1$  mK a été observée aux neutrons pour la première fois par Benoit et al. ; cette expérience a démontré la faisabilité de l'expérience de diffraction de neutrons sur l' $^3\text{He}$  solide pour l'observation de la structure magnétique en champ nul<sup>1,2,3,4</sup>. Nous avons vu que, pour obtenir un signal de diffraction suffisamment intense, il fallait être capable de contrôler la cristallisation de l' $^3\text{He}$  dans une géométrie confinée, ce qui est maintenant acquis. Nous nous consacrons dans ce chapitre au refroidissement de l' $^3\text{He}$  solide dans différents types de géométries.



## 1. POUDRE DE CUIVRE, POUDRE D'ARGENT

La figure 6.1 décrit les résultats obtenus pour le refroidissement de l' $^3\text{He}$  solide à ultra basse température. La cellule réalisée avec de la poudre d'argent frittée est en contact thermique avec la désaimantation nucléaire ; elle est refroidie au minimum de température, faisceau de neutrons fermé ; nous laissons l' $^3\text{He}$  se thermaliser environ 24 h après la fin de la désaimantation. Le faisceau est ensuite ouvert et la capture des neutrons par l' $^3\text{He}$  provoque le chauffage ; nous suivons alors l'évolution de l'efficacité de transmission  $\epsilon$  au cours du temps. Le passage de  $\epsilon$  par un maximum témoigne de la transition de l'état ordonné vers l'état désordonné. Les courbes montrent clairement la dépendance de la température de transition en fonction du volume molaire.

Pour un solide sur la courbe de fusion ( $V_M \cong 24.2 \text{ cm}^3/\text{mole}$ , cercles noirs), la transition est franchie à  $T_N \sim 1 \text{ mK}$  alors que, dès que l'on s'écarte de la courbe de fusion ( $V_M = 23.1 \text{ cm}^3/\text{mole}$ , cercles blancs), la transition, repoussée vers les très basses températures, est impossible à observer compte tenu des possibilités cryogéniques de notre appareil (température minimale, pertes thermiques).

Les mêmes expériences ont été tentées avec deux cellules contenant de l' $^3\text{He}$  confiné dans la poudre de cuivre de  $1 \mu\text{m}$  frittée. Le volume molaire est calibré sur la courbe de fusion à  $V_M = 24.2 \text{ cm}^3/\text{mole}$  avec 75 % de solide. Les résultats montrent qu'il est impossible de thermaliser l' $^3\text{He}$  dans ces conditions au-dessous de la température d'ordre. La température minimale mesurée sur l' $^3\text{He}$  est de l'ordre de 2 mK alors que celle de la désaimantation est inférieure au millikelvin. La raison de cet insuccès n'est pas encore tout à fait claire. Le choix de refroidir une cellule en poudre de cuivre avait été déter-

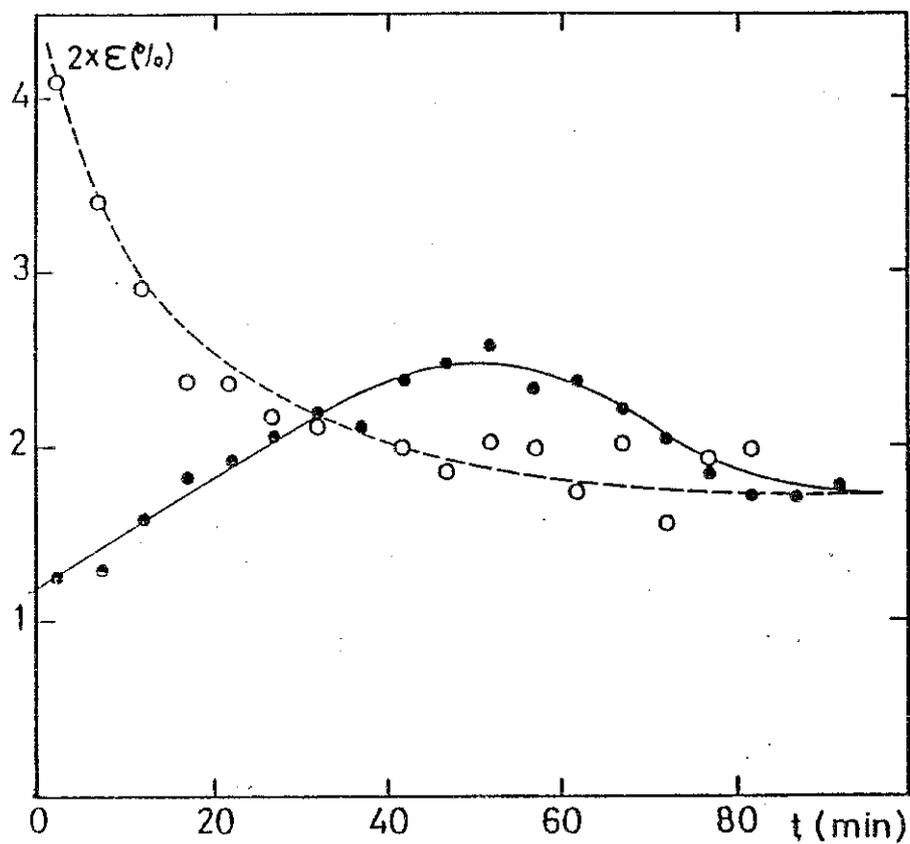


Figure 6.1. Evolution de  $\epsilon$  en fonction du temps pour deux volumes molaires ;  $V_M = 23.1 \text{ cm}^3/\text{mole}$  (cercles blancs) ;  $V_M = 24.2 \text{ cm}^3/\text{mole}$  (cercles noirs).

miné par le fait que la cristallisation de  $1^3\text{He}$  dans ce type de cellule avait déjà procuré des résultats satisfaisants.

*Remarque sur la dissipation de la chaleur produite par l'arrêt des particules chargées*

Au chapitre II nous avons souligné le fait que les particules chargées proton et tritium issues de la réaction nucléaire neutron- $^3\text{He}$  sont arrêtées plus efficacement par la poudre d'argent que par  $1^3\text{He}$ . Donc, environ 90 % de l'énergie devrait être détourné directement vers la source froide. En fait, le temps de réchauffement expérimental est du même ordre de grandeur que le temps théorique calculé comme s'il n'y avait pas de poudre. Imaginons une particule (proton ou tritium) d'énergie  $Q \sim 100 \text{ keV}$  arrêtée dans la poudre d'argent sur une distance de  $10 \mu\text{m}$  et sur un diamètre moyen de  $1 \mu\text{m}$ . L'énergie cédée par la particule produit un échauffement qui amène le cylindre à la température  $T$  :

$$Q = \int_0^T \gamma T n$$

$$\gamma = 0.5 \text{ mJ mole}^{-1} \text{ K}^{-2}$$

$n$  : nombre de moles contenues dans le cylindre,  $n \approx 10^{-12}$  mole

$$T^2 = \frac{2Q}{\gamma n}$$

$$T \gtrsim 1 \text{ K}$$

La température s'élève localement au moins jusqu'à 1 K. A cette température la diffusion de l'énergie est isotrope ; c'est-à-dire qu'il n'y a plus la barrière due à la résistance de Kapitza qui rendait le contact thermique argent- $^3\text{He}$  très difficile à très basse température.

## 2. REFROIDISSEMENT DANS LA POUDRE D'ARGENT NON FRITTEE

A la lumière des résultats des mesures de surface d'échange pour lesquels une surface maximum est obtenue avec de la poudre simplement compactée, nous avons réalisé une cellule constituée de poudre n'ayant reçu aucun traitement thermique autre que celui apporté par le fer à souder. La transition magnétique a été observée trois fois dans le même cycle de désaimantation. La figure 6.2 montre l'évolution de l'efficacité de transmission en fonction du temps observée à la première ouverture du faisceau.

*Les conditions expérimentales* sont les suivantes :

- Température initiale sur la désaimantation  $T_i \sim 20$  mK.
- Champ initial  $B_i \sim 5.5$  T, champ final  $B_f \sim .1$  T.

La température finale atteinte est, dans ces conditions

$$T_f \approx .4 \text{ mK}$$

- Monochromateur ( $\text{CuMnAl}_2$ )  $\lambda = 1.7 \text{ \AA}$ .
- Polarisation du faisceau  $f_n = .83$ .
- Volume molaire  $V_m = 24.2 \text{ cm}^3/\text{mole}$ .
- Coefficient d'absorption  $\alpha = .75$ .

Nous avons refroidi dans la même cellule un autre solide plus comprimé  $V_m \sim 23.1 \text{ cm}^3/\text{mole}$  pour tester les performances de la désaimantation nucléaire. Le faisceau est collimaté sur une surface de  $1 \text{ cm}^2$ , les conditions expérimentales sont les mêmes que précédemment. La figure 6.3 présente le résultat obtenu ; la température mesurée à l'ouverture du faisceau est de l'ordre de  $.6 \text{ mK}$  et évolue vers une température d'équilibre  $T_{eq} \sim 3.5 \text{ mK}$  ; le flux de neutrons incident  $\phi \sim 3.10^4 \text{ n/scm}^{-2}$ . Cette expérience nous permet d'estimer la résistance de Kapitza  $R_K$   $^3\text{He}$ -poudre d'argent pour une température voisine

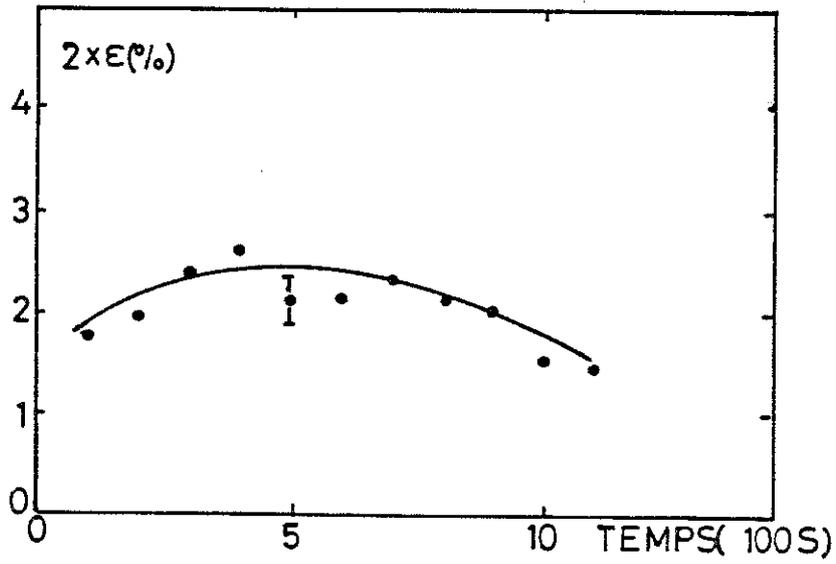


Figure 6.2. Passage de la transition magnétique de  $l^3\text{He}$  dans la cellule argent non frittée.

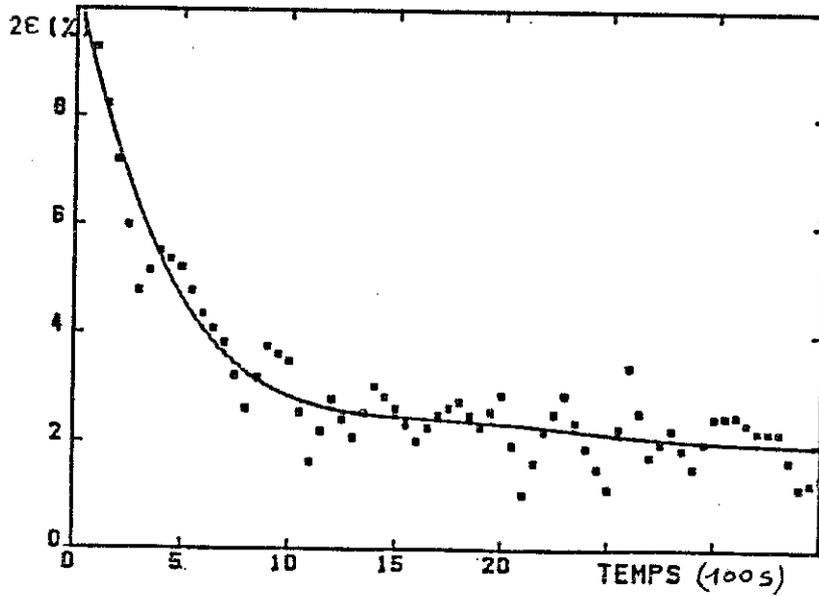


Figure 6.3. Refroidissement de  $l^3\text{He}$  solide dans la cellule argent non frittée pour un volume molaire  $V_M = 23.1 \text{ cm}^3$ .

de 1 mK. La surface d'échange dans notre expérience est de l'ordre de  $.4 \text{ m}^2$  ;  $R_K = \frac{\Delta T A}{Q} \sim 1.7 \cdot 10^6 \text{ m}^2\text{K/W}$ . Cette valeur est en accord avec celle mesurée par T. Mamiya et al.  $R_K = \frac{2 \cdot 10^6}{T(\text{mK})} \text{ m}^2\text{K/W}$ .

### 3. REFROIDISSEMENT D'UNE CELLULE INHOMOGENE

Nous discutons maintenant du refroidissement d'une autre cellule inhomogène. Cette cellule est faite d'argent non fritté comme la précédente, mais se déforme linéairement avec la pression faisant apparaître un volume libre d' $^3\text{He}$  correspondant à 25 % du volume total. Les résultats du refroidissement sont rapportés à la figure 6.4. L'expérience est réalisée dans les mêmes conditions de refroidissement que précédemment. Le fait remarquable sur cette courbe est l'apparition d'un plateau sur un intervalle de temps  $\Delta t \sim 1800 \text{ s}$  correspondant au temps théorique de réchauffement si on admet que le solide confiné dans la poudre a bien passé la transition. Il s'ensuit que le solide en géométrie massive, lui, est resté "chaud". Cette interprétation est décrite à la figure 6.5. La courbe (1) schématise le réchauffement de la partie du solide confinée dans la poudre, la courbe (2) le réchauffement de la partie massive et la courbe (3) la somme de (1) et (2) qui donne l'allure de la courbe observée expérimentalement. Ce résultat tend à prouver que les mécanismes de conduction thermique dans le solide ne sont pas bons.

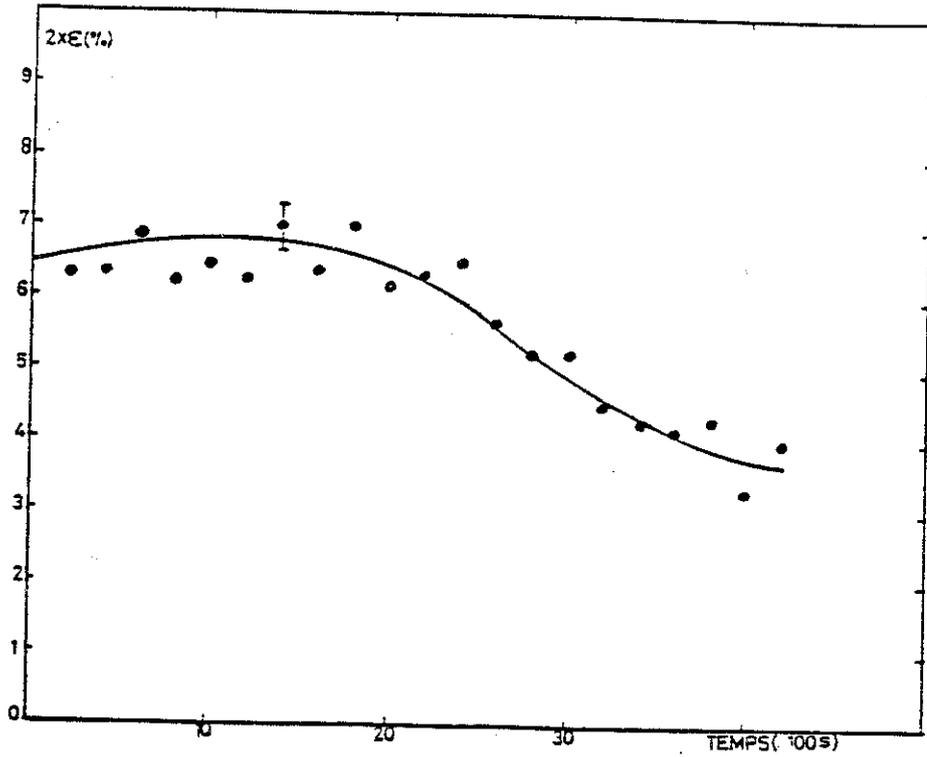


Figure 6.4. Refroidissement de la cellule inhomogène.

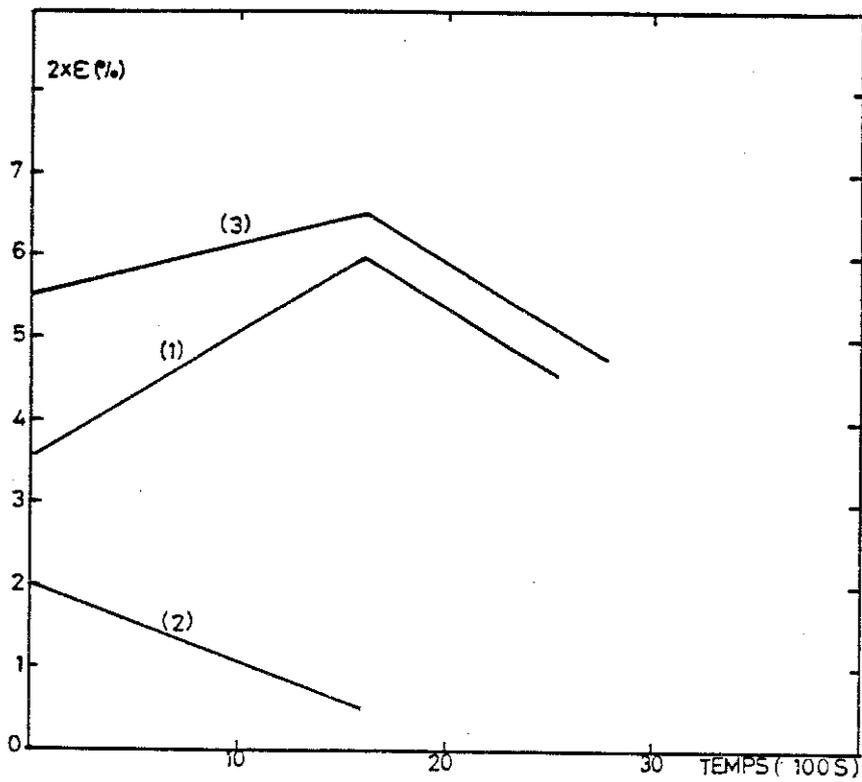


Figure 6.5. Interprétation des résultats de la figure 6.4.



REFERENCE CHAPITRE VI

- 1 - D. RUFIN  
Thèse, Grenoble 1982.
- 2 - A. BENOIT, J. FLOUQUET, D. RUFIN et J. SCHWEIZER  
J. Physique C7 43 (1982) 311.
- 3 - A. BENOIT, J. FLOUQUET, D. RUFIN et J. SCHWEIZER  
J. Physique-Lettres 43 (1982) L431.
- 4 - A. BENOIT, J. BOSSY, J. FLOUQUET, D. RUFIN and J. SCHWEIZER  
AIP Conference proceeding, Series Editor : Hugh C. Wolfe, n° 103.



## CONCLUSION

Le point majeur qui ressort de cette étude est qu'actuellement toutes les conditions sont réunies pour l'observation de la structure magnétique de l' $^3\text{He}$  en champ nul. Dans une cellule où l' $^3\text{He}$  se trouve confiné dans la poudre d'argent, nous avons réussi, d'une part à la refroidir en dessous de la température de transition magnétique à  $T \sim 1$  mK et d'autre part à obtenir des cristaux d'une taille suffisamment importante pour donner un signal de diffraction assez intense. Il reste maintenant à obtenir ces deux résultats simultanément dans la même cellule.

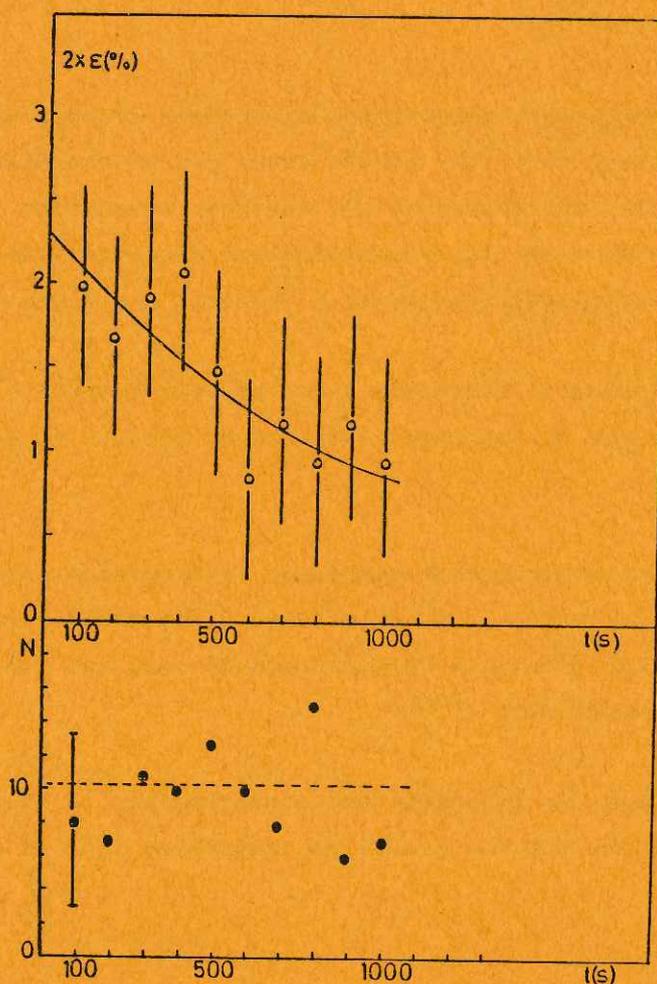
Tout en gardant comme ligne directrice l'observation de la structure magnétique de l' $^3\text{He}$ , nous n'avons pas pu résister à glaner quelques résultats sans toutefois s'y attarder longuement. Nos expériences systématiques sur la cristallisation ont permis de clarifier le problème de la cristallisation de l' $^3\text{He}$  dans une géométrie confinée.

La mesure de l'intensité d'une réflexion (200) a permis pour la première fois une détermination directe du facteur de Debye-Waller de l' $^3\text{He}$ .

Une certain nombre de questions fondamentales relatives à la diffusion de la chaleur dans un cristal d' $^3\text{He}$  restent en suspens, à savoir si le seul mécanisme de diffusion de spin est suffisant pour thermaliser un monocristal d' $^3\text{He}$ .

Je termine la rédaction de ce mémoire par la description des expériences qui sont les premières tentatives réelles d'observa-

tion de la structure magnétique proposée par Osheroff. La cellule A2 décrite au chapitre V est actuellement installée dans le cryostat à désaimantation nucléaire et tout le processus expérimental décrit au chapitre III a été réalisé jusqu'au bout ; c'est-à-dire que nous avons orienté puis refroidi à quelques millidegrés Kelvin un cristal d' $^3\text{He}$  confiné dans la poudre d'argent. L'observation simultanée avec les deux détecteurs a été réalisée mais n'est pas encore concluante parce que la transition magnétique n'a pas été franchie ; un résultat est reporté à la figure ci-dessous. La courbe du haut représente la mesure de l'efficacité en transmission et la courbe du bas le nombre de neutrons observés en diffraction dans la direction  $(1/2,0,0)$ .



Trois cycles de désaimantation ont donnés les mêmes résultats. Nous avons alors remesuré le volume molaire du solide et trouvé  $V_M \approx 23.5 \text{ cm}^3/\text{mole}$ . La température de transition avec un tel volume molaire est égale à 0.65 mK ; cette température est trop basse pour être atteinte avec notre appareil, ce qui explique pourquoi nous ne pouvons pas conclure pour l'instant à l'existence ou la non existence d'une raie de surstructure de type  $(1/2,0,0)$ .



DERNIERE PAGE D'UNE THESE

THESE DE L'USMG Mention Matière et Rayonnement

Vu les dispositions de l'arrêté du 16 avril 1974,

Vu les rapports de M. J. SCHWEIZER.....

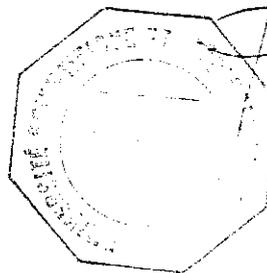
M. B. CASTAING.....

M. J. BOSSY..... est autorisé  
à présenter une thèse en vue de l'obtention du grade de DOCTEUR en *Psychiatrie*  
*option: Matière et Rayonnement!*

Grenoble, le 16/4/83

Le Président de l'Université Scientifique  
et Médicale

M. TANCHE



D. CORDARY

Vice-Président

