



HAL
open science

Nuclear magnetism of 2- and 3-dimensional ^3He in the vicinity of the ordering temperature

Henri Godfrin

► **To cite this version:**

Henri Godfrin. Nuclear magnetism of 2- and 3-dimensional ^3He in the vicinity of the ordering temperature. Physics [physics]. Université Joseph Fourier Grenoble 1, 1981. English. NNT : . tel-03919002

HAL Id: tel-03919002

<https://theses.hal.science/tel-03919002v1>

Submitted on 2 Jan 2023

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

présentée à

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

pour obtenir le grade

DOCTEUR ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

par

Henri GODFRIN

SUJET

MAGNETISME NUCLEAIRE

de l' ^3He à 2 et 3 dimensions

au voisinage de la temperature

d'ordre

Soutenue le 25 Mars 1981 devant la commission d'Examen

President	A. LACAZE
Examineurs	M.T. BEAL-MONOD
	E. BELORIZKY
	A. LANDESMAN
	P. NOZIERES
Invité	D. THOULOZE
	G. FROSSATI

Monsieur Gabriel CAU : Président

MEMBRES DU CORPS ENSEIGNANT DE L'U.S.M.G.

PROFESSEURS TITULAIRES

MM. AMBLARD Pierre	Clinique de dermatologie
AMBOISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
ARNAUD Paul	Chimie
ARVIEU Robert	I.S.N.
AUBERT Guy	Physique
AYAST Yves	Physique approfondie
Mme BARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM. BARBIER Jean-Claude	Physique Experimentale
BARBIER Reynold	Géologie appliquée
BARJON Robert	Physique nucléaire
BARNUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
BARRA Jean-René	Statistiques
BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale A
BEAUDOUIN André	Clinique de Pédiatrie et Puériculture
BELORIZZY Elie	Physique
SENZAKES Claude	Mathématiques appliquées
BENARD Alain	Mathématiques Pures
Mme BERTANDIAS Françoise	Mathématiques Pures
MM. BERTHANDIAS Jean-Paul	Mathématiques Pures
BEZES Henri	Clinique chirurgicale et Traumatologie
BILLET Jean	Géographie
BLAUBERT Maurice	Mathématiques Pures
BONNET Jean-Louis	Clinique Ophthalmologique
BONNET-EYHARD Joseph	Clinique Hépato-gastro-entérologique
Mme BONNIER Jeanne-Marie	Chimie générale
MM. BOUCHESLE André	Chimie et Toxicologie
BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
BOUDET DE MONVEL Louis	Mathématiques Pures
BRAVARD Yves	Géographie
CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologique

.../...

Mme LAJZEROWICZ Janine

MM. LAJZEROWICZ Joseph

LATREILLE René

ANATOMIE	Anatomie
BIOLOGIE VÉGÉTALE	Biologie végétale
BIOLOGIE ANIMALE ET PHARMACODYNAMIE	Biologie animale et pharmacodynamie
MÉDECINE LÉGALE ET TOXICOLOGIE	Médecine légale et toxicologie
CHIMIE ORGANIQUE	Chimie organique
CLINIQUE OTO-RHINO-LARYNGOLOGIQUE	Clinique Oto-rhino-laryngologique
CLINIQUE DE NEUROLOGIE	Clinique de neurologie
BIOLOGIE ANIMALE	Biologie animale
PHARMACIE CHIMIQUE ET CHIMIE ANALYTIQUE	Pharmacie chimique et chimie analytique
ANATOMIE PATHOLOGIQUE	Anatomie pathologique
C.E.R.M.D.	C.E.R.M.D.
GÉOLOGIE GÉNÉRALE	Géologie générale
ZOOLOGIE	Zoologie
PNÉUMOPHTHISIOLOGIE	Pneumophtisioologie
CHIMIE MINÉRALE	Chimie minérale
MÉTALLURGIE	Métallurgie
MÉCANIQUE APPLIQUÉE (IUT I)	Mécanique appliquée (IUT I)
PHYSIQUE DES PLASMAS	Physique des plasmas
THERMODYNAMIQUE	Thermodynamique
CRISTALLOGRAPHIE	Cristallographie
HATHA PURES	Hatha Pures
CHIMIE PHYSIQUE	Chimie Physique
MATHÉMATIQUES PURES	Mathématiques pures
ANALYSE NUCLEAIRE	Analyse nucléaire
PHARMACOLOGIE	Pharmacologie
ELECTROADILOGIE	Electrosadiologie
MATHÉMATIQUES PURES	Mathématiques pures
MÉCANIQUE	Mécanique
GÉOLOGIE	Géologie
GÉOGRAPHIE	Géographie
MATHÉMATIQUES PURES	Mathématiques pures
PHYSIQUE GÉNÉRALE	Physique générale
MATHÉMATIQUES PURES	Mathématiques pures
MATHÉMATIQUES PURES	Mathématiques pures
MÉCANIQUE	Mécanique
THERMODYNAMIQUE	Thermodynamique
BIOLOGIE VÉGÉTALE	Biologie végétale
PHYSIQUE	Physique
CHIRURGIE GÉNÉRALE	Chirurgie générale

MM. LATIGAZE Jean	Biochimie Pharmacologique
LAIREY Pierre-Jean	Mathématiques appliquées
LE ROY Philippe	Mécanique (IUT 1)
LIBRETY Louis	Géophysique
LOISELUX Jean-Henri	Sciences nucléaires
LONGUEVE Jean-Pierre	Physique nucléaire - I.S.N.
LOUP Jean	Géographie
Mlle LUTZ Elisabeth	Mathématiques pures
MM. PALMAS Yves	Clinique obstétricale
MARTIN-NOEL Pierre	Clinique cardiologique
MAYNARD Roger	Physique de solide
MAZARÉ Yves	Clinique Médicale A
MICHEL Robert	Minéralogie et pétrographie
MICROD Max	Clinique Maladies Infectieuses
MORIGNAN Claude	Histologie
MORSA André	Chimie nucléaire
MOUL Robert	Mécanique
MOTIERES Philippe	Spectrométrie Physique
OZENDA Paul	Botanique
PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques pures
PELAY-PEYROLA Jean-Claude	Physique
PIHET Jean	Sémiologie Médicale (Neurologie)
RACHAT Michel	Clinique Médicale B
RASSAT André	Chimie systémique
RENAUD Michel	Thermodynamique
REVOL Michel	Urologie
MM. RIVALDO Marguerite	Chimie macromoléculaire
MM. DE ROUJMENT Jacques	Neuro-Chirurgie
SABRAZIN Roger	Clinique chirurgicale B
SEIGNIERIN Raymond	Microbiologie et Hygiène
SEIGEL Philippe	Zoologie
SIBILLE Robert	Construction mécanique (IUT 1)
SOTTIF Michel	Physique générale
TAVCHE Maurice	Physiologie
VALLANT François	Zoologie
VALETTIN Jacques	Physique Nucléaire
VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques appliquées
VANQUOIS Bernard	Mathématiques appliquées
MM. VINAIS Alice	Pharmacie galénique

MM. VERAIN André	Biophysique
VERNEY Paul	Géographie
VIGARIÉ Pierre	Biochimie médicale
<u>PROFESSEURS ASSOCIÉS</u>	
MM. GREENE Richard	Bases Température
KOTH Walter	Cristallographie
SZYMANSKI Zdzislaw	Institut des Sciences Nucléaires
<u>PROFESSEURS SANS CHAIRE</u>	
MICHAELIS-DELOD Claudine	Physique pharmacologique
ALARY Josette	Chimie analytique
MM. ARMAND Gilbert	Géographie
BENZAKEN Claude	Mathématiques appliquées
BIAHEZ Jean-Pierre	Mécanique
BILLET Jean	Géographie
BOUCHET Yves	Anatomie
BRICEL Lucien	Energétique (IUT 1)
BUISSON Roger	Physique (IUT 1)
BUTEL Jean	Orthopédie
CHAUDUR Michel	Géographie
COUEN-ABDAD Jean-Pierre	Spectrométrie physique
COLLIER Maurice	Biochimie médicale
CORTE René	Physique (IUT 1)
DELOREL Claude	M.L.A.G.
DEPASSÉL Roger	Mécanique des Fluides
GAUTHON René	Chimie
GIDON Paul	Chimie
GILBERT René	Géologie et Minéralogie
GROULADE Joseph	Chimie organique
HACQUES Gérard	Biochimie médicale
HOLLAND Daniel	Calcul numérique
HUGONOT Robert	Hématologie
IELEMAN Simon	Hygiène et Médecine préventive
JACQUET Pierre	Physiologie animale
JOUILLÉ Pierre	Histologie
	Mathématiques appliquées

Mme KAHANE Josette	Physique
M. KRACKWACK Sacha	Mathématiques appliquées
KUEN Gérard	Physique (IUT I)
LIU DUC Cuong	Chimie organique - Pharmacologie
MACHE ROLFs	Physiologie végétale
MARECHAL Jean	Mécanique (IUT)
MIC JOURNER Jean	Physique (IUT I)
Mme MENIER Juliette	Physique (IUT I)
M. PELSSANT Jean	Biochimie
PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et Micéologie
PFISTER Jean-Claude	Physique du solide
Mlle PERRY Yvette	Physiologie Animale
M. RAYNAUD Hervé	M. L. A. G.
REBECCO Jacques	Biologie (CUS)
REYND Jean-Charles	Chirurgie générale
RICHARD Lucien	Biologie végétale
SABROT-REYNAUD Jean	Géologie
SIEFF Louis	Chirurgie générale
Mme SUTTF Jeanne	Physique générale
M. STIEGLITZ Paul	Anatomie
VIALAN Pierre	Géologie

MATRES DE CONFERENCES ET MATRES DE CONFERENCES AGREGES

M. AERAND Yves	Chimie (IUT I)
AUBIAULT Jean-Louis	Mécanique (IUT I)
BACHELOT Yann	Endocrinologie
BARGE Michel	Neuro-chirurgie
BEGUIS Claude	Chimie organique
BENABED Alain-Louis	Médecine et chirurgie expérimentales
Mme BERTEL Hélène	Pharmacodynamie
M. BOITET Christian	Mathématiques appliquées
BOST Michel	Pédagogie
BOUCHARLAT Jacques	Psychiatrie adulte
Mme BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
M. BERNARD Pierre	Gynécologie
CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse

M. CHERADAME Hervé	Chimie papetière (EFP)
CHIAVERINA Jean	Biologie appliquées (EFP)
COHEN Henri	Mathématiques pures
COLIN DE VERDIERE Yves	Maths pures
CORTAHL Charles	Chirurgie thoracique et cardio-vasculaire
CORDONIER Daniel	Sémiologie
COULHON Max	Radiologie
CRUZZET Guy	Bactériologie
CYROT Michel	Physique du solide
DERS Bernard	Cardiologie
DORCE Roland	Physiologie végétale
DUSSARD René	Mathématiques (CUS)
Mme EUBRARDISEE Jacqueline	Physiologie
M. FAURE Jacques	Biochimie végétale
FACHE Gilbert	Ecologie
FLOYRAC Roger	Biophysique
FURNEY Jacques	Hépatogastro-entérologie
GAYTELL Robert	Chirurgie générale
GIBER Maurice	Géologie
GRUS Yves	Physique (IUT I)
GRODIGNEL Henri	Chirurgie générale
GROGIER Michel	Pharmacologie
GUYOTIER Jacques	Chimie
HUCIER Pierre	Chimie
JACBERT Pierre	Radiologie
JURER-LAVILLAVROY Claude	M. L. A. G.
KRODIE Lucien	Réologie
LE NOC Pierre	Bactériologie-virologie
MAESTR Robert	Hygiène et médecine préventive
MALLET Jean-Michel	Médecine du travail
MARTIN-BUYER Michel	Chimie (CUS)
MASSEY Christian	Médecine interne
REBOZ Alain	Thermodynamique
ROUGARY Marcel	Automatique (IUT I)
GUDET Bruno	M. L. A. G.
PARADELLE Bernard	Psychologie
PEFFER René	Métallurgie (IUT I)
PERRAUD Robert	Chimie (IUT I)
PERRIER Guy	Géophysique-Géologie

MM. PHELIP Xavier
 RACINET Claude
 SAMBAUD Pierre
 RAPHAEL Bernard
 Mme REMAUDY Jacqueline
 MM. ROBERT Jean-Bernard
 SAKAROVITCH Michel
 SCHARER René
 Mme SEIGLE-MURANDA Françoise
 MM. STOLÉNER Pierre
 STUTZ Pierre
 VINCOS Constantin

MAITRE DE CONFÉRENCES ASSOCIÉ

M. SIDNEY Stuart

MAITRE DE CONFÉRENCES BELGE

M. ROCBAT Jacques

PERSONNALITÉS HABILITÉES PAR LE CONSEIL SCIENTIFIQUE DE L'U.S.M.G. A ÊTRE DIRECTEURS DE THÈSE :

MM. BELAKOVSKY Michel
 BIARIZ Jean-Pierre
 BOUILLER Jean-Pierre
 BOIS Philippe
 BOLLÉY Louis
 BURRET Alain
 EXOZEAU François
 CHAMERON André
 GONZALEZ William
 LAPARTIER Jacques
 Mme LEBRELLIN Françoise
 MM. COUPT Jean
 DELAYE Jean-Marc

Rhumatologie
 Gynécologie et Obstétrique
 Pédiatrie
 Stomatologie
 Baccériologie (Pharmacie)
 Chimie-Physique
 Maths appliquées
 Cancérologie
 Cryptogamie
 Anatomie Pathologie
 Mécanique
 Radiologie

Mathématiques pures

Hygiène et Hydrologie (Pharmacie)

CENG-DRF/Chimie physique nucléaire
 Professeur Mécanique
 M.A. Mécanique
 Mécanique
 Prof. USS JUT II Informatique
 CENG-DRF/Physique solide
 Prof. USS Maths appliquées
 CENG/DRF/Physique solide
 CENG/DRF/Physique solide
 CENG/DRF/Chimie physique nucléaire
 Prof. USS Maths appliquées
 M.A. Chimie générale
 CENG

MM. DESCLAUX Jean-Paul
 DOMENGO Lana
 DIC-JACQUET Marc
 DUPESNOY Alain
 GIBROUD Jean-Pierre
 HERVE Alain
 HILLARDET Jacques
 JORRAND Philippe
 KLEITZ Michel
 Mme LEJEUNE-JALABERT Montique
 MM. LENOINE Marcel
 LEYDREUR Jean
 LIGÉON Julie
 MAISONNEUVE Bernard
 HORDARON Paul
 ROSEY Pierre
 PLECCORD François
 PERETTO Pierre
 PIERRE Jean-Louis
 PUAM DHH Tsao
 POGGI André
 RIBAUDO Jean
 ROBERT Raoul
 ROHLER Guy
 ROSSAT-HIGHER Jean
 ROUBALT Jacques
 SAKOB Raymond
 SONQUET Jean-Louis
 SUSCILLON Michel
 TAME Michel
 TEOLLE Robert
 VALLON Michel
 VILLAIN J.
 VIVIAN Robert
 Mme ZOLL

CENG/DRF/Chimie physique nucléaire
 Maths pures
 M.C.USS Maths appliquées
 Maths pures
 M.A. Mécanique
 CENG/DRF/R.M.N.
 CENG/DRF/Physique solide
 M.R. CNRS Maths appliquées
 Maître rech. CNRS ENSEEG
 Maths pures
 Géologie Alpine LA 69
 Prof. Hon. Ecole mines Saïnc Etienne Jrsen
 CENG/DRF/Physique solide
 M.C.USS Maths appliquées
 M.A. Zoologie
 CENG/DRF/Physique solide
 M.C. USS Maths appliquées
 CENG/DRF/Chimie physique nucléaire
 M.A. Chimie
 Attaché rech. MATHS appliquées
 Ingénieur CNRS Géophysique
 M.A. Chimie générale
 Maths appliquées
 Prof. USS Maths appliquées
 CENG/DRF/Diffraction, neutronique
 M.C. USS Maths appliquées
 P.A. Zoologie
 M.A. Chimie ENSEEG
 CENG/DRF/Hématologie
 Chimie
 CENS/Radiobiologie
 M.A. Géophysique
 CENG/DRF/Diffraction neutronique
 M.A. Géographie
 Pharmacie Dijon (matière médicale)

Président : M. Philippe TRAYNARD
Vice-Présidents : M. Georges LESPINARD
M. René PAUTHENET

PROFESSEURS DES UNIVERSITES

MM ANCEAU François	Informatique fondamentale et appliquée
BESSON Jean	Chimie Minérale
BLIMAN Samuël	Electronique
BLOCH Daniel	Physique du Solide - Cristallographie
BOIS Philippe	Mécanique
BONNETAIN Lucien	Génie Chimique
BONNIER Etienne	Métallurgie
BOUVARD Maurice	Génie Mécanique
BRISSONNEAU Pierre	Physique des Matériaux
BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
CHARTIER Germain	Electronique
CHENEVIER Pierre	Electronique
CHERADAME Hervé	Chimie Physique Macromoléculaire
MmeCHERUY Arlette	Automatique
MM CHIAVERINA Jean	Biologie, biochimie, agronomie
COHEN Joseph	Electronique
COUMES André	Electronique
DURAND Francis	Métallurgie
DURAND Jean-Louis	Physique Nucléaire et Corpusculaire
FELICI Noël	Electrotechnique
FOULARD Claude	Automatique
GUYOT Pierre	Métallurgie Physique
IVANES Marcel	Electrotechnique
JOUBERT Jean-Claude	Physique du Solide - Cristallographie
MmeJOURDAIN Geneviève	Traitement du Signal
MM LACOUME Jean-Louis	Géophysique - Traitement du Signal
LANCIA Roland	Electronique - Automatique
LESIEUR Marcel	Mécanique
LESPINARD Georges	Mécanique
LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique Nucléaire Corpusculaire
MOREAU René	Mécanique
MORET Roger	Physique Nucléaire Corpusculaire
PARIAUD Jean-Charles	Chimie-Physique
PAUTHENET René	Physique du Solide - Cristallographie
PERRET René	Automatique
PERRET Robert	Electrotechnique
PIAU Jean-Michel	Mécanique
POLOUJADOFF Michel	Electrotechnique
POUPOT Christian	Electronique - Automatique
RAMEAU Jean-Jacques	Electrochimie - Corrosion
ROBERT André	Chimie appliquée et des matériaux
ROBERT François	Analyse numérique
SABONNADIÈRE Jean-Claude	Electrotechnique
MmeSAUCIER Gabrielle	Informatique fondamentale et appliquée

PROFESSEURS DES UNIVERSITES

Mme SCHLENKER Claire	Physique du Solide - Cristallographie
MM SCHLENKER Michel	Physique du Solide
SOHM Jean-Claude	Chimie Physique
TRAYNARD Philippe	Chimie - Physique
VEILLON Gérard	Informatique fondamentale et appliquée
ZADWORNY François	Electronique

CHERCHEURS DU C.N.R.S. (Directeur et Maîtres de Recherche)

M FRUCHART Robert	Directeur de Recherche
MM ANSARA Ibrahim	Maître de Recherche
CARRE René	Maître de Recherche
DAVID René	Maître de Recherche
DRIOLE Jean	Maître de Recherche
KAMARINOS Georges	Maître de Recherche
KLEITZ Michel	Maître de Recherche
LANDAU Ioan-Doré	Maître de Recherche
MERMET Jean	Maître de Recherche
MUNIER Jacques	Maître de Recherche

Personnalités habilitées à diriger des travaux de recherche (Décision du Conseil Scientifique)

E.N.S.E.E.G.

MM ALLIBERT Michel
BERNARD Claude
CAILLET Marcel
Mme CHATILLON Catherine
MM COULON Michel
HAMMOU Abdelkader
JOURD Jean-Charles
RAVAINE Denis
SAINFORT
SARRAZIN Pierre
SOUQUET Jean-Louis
TOUZAIN Philippe
URBAIN Georges

C.E.N.G.

Laboratoire des Ultra-Réfractaires
ODEILLO

E.N.S.M.S.E.

MM BISCONDI Michel
BOOS Jean-Yves
GUILHOT Bernard
KOBILANSKI André
LALAUZE René
LANCELOT Francis
LE COZE Jean
LESBATS Pierre
SOUSTELLE Michel
THEVENOT François

.../...

THOMAS Gérard
TRAN MINH Canh
DRIVER Julian
RIEU Jean

E.N.S.E.R.G.

MM BOREL Joseph
CHEHIKIAN Alain
VIKTOROVITCH Pierre

E.N.S.I.E.G.

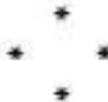
MM BORNARD Guy
DESCHIZEAUX Pierre
GLANGEAUD François
JAUSSAUD Pierre
Mme JOURDAIN Geneviève
MM LEJEUNE Gérard
PERARD Jacques

E.N.S.H.G.

M DELHAYE Jean-Marc

E.N.S.I.M.A.G.

MM COURTIN Jacques
LATOMBE Jean-Claude
LUCAS Michel
VERDILLON André



R E M E R C I E M E N T S

Les travaux décrits dans ce mémoire ont été effectués de 1976 à 1981 au Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, dont je remercie les Directeurs : Monsieur le Professeur A. LACAZE, qui m'a accueilli au laboratoire, et Monsieur R. TOURNIER, qui en assure actuellement la direction.

Je remercie Messieurs les Professeurs E. BELORIZKY et P. NOZIERES pour avoir accepté de participer au jury de cette thèse.

Je suis heureux d'exprimer mes remerciements à Monsieur A. LANDESMAN pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail.

Mme BEAL-MONOD et Messieurs J.M. DELRIEU et M. ROGER m'ont efficacement aidé lors de l'interprétation des résultats. Il arrive souvent qu'après la réponse d'un théoricien, on ne comprenne plus la question qu'on lui a posée ; cela n'a jamais été le cas avec eux.

Je tiens à remercier Monsieur G. FROSSATI, actuellement à l'Université de Leiden, de m'avoir associé aux dernières années de son travail de thèse, et pour sa collaboration pendant la réalisation du mien.

Je garde une reconnaissance particulière à Monsieur D. THOULOZE, qui a dirigé ce travail de thèse et m'a encouragé et soutenu en toutes circonstances.

Je n'oublie pas ceux qui m'ont aidé à connaître et aimer la recherche. Le Professeur F. DE LA CRUZ m'a accueilli de 1973 à 1976 au Laboratoire de Basses Températures du Centre Atomique de Bariloche (Argentine) ; sa compétence, son enthousiasme et son amitié ont largement influencé l'orientation de ma carrière de recherche. Mes premiers travaux, effectués sous sa direction, concernent les magnétomètres quantiques et l'état intermédiaire des supraconducteurs de type I.

R.E. RAPP m'a enseigné les secrets des très basses températures : grâce à sa patience et son habileté, nous avons pu faire fonctionner un réfrigérateur à dilution à une température de 25 mK (inhabituelle dans l'hémisphère Sud), et effectuer des expériences de calorimétrie sur l'⁴He (étude de la relation de dispersion anormale des phonons).

X

L'expérience acquise à Bariloche m'a permis de m'intégrer facilement au groupe d'ultrabasses températures de Grenoble : D. THOULOZE, G. FROSSATI, B. HEBRAL, M. PAPOULAR, G. SCHUMACHER, et plus récemment B. CASTAING, que je remercie vivement pour l'aide et l'encouragement qu'ils m'ont prodigués.

W.G. CLARK, M. CHAPPELLIER et P. AVERBUCH m'ont enseigné la résonance magnétique nucléaire, largement utilisée dans les expériences sur l'³He solide et adsorbé ; je leur pardonne.

J'ai également bénéficié de l'expérience de A. GREENBERG et J. GOODKIND lors de leur séjour au laboratoire ; leur aide a été pour moi très précieuse.

J'ai eu l'occasion de participer à plusieurs expériences en dehors du cadre de cette thèse ; je tiens à souligner le plaisir que j'ai eu à travailler avec F. et M.E. DE LA CRUZ, C. DE ALLENDE, J. LUZURIAGA, R. RAPP, G. SEIDEL, P. MONCEAU, J. GILCHRIST et J.L. THOLENCE sur des sujets autres que l'hélium trois.

Je remercie également Monsieur H.J. LAUTER, de l'Institut Laue-Langevin, de m'avoir associé à ses études de physique des surfaces.

J'ai été très sensible à l'aide efficace et amicale que j'ai toujours trouvée auprès de mes camarades chercheurs et techniciens ; ils sont si nombreux à m'avoir supporté que je n'ose en donner la liste ; que tous trouvent ici l'expression de ma gratitude.

X

La frappe de cette thèse a été assurée par ma femme, qui souhaite garder l'anonymat. G. GIANESE est l'auteur de la plupart des figures ; je l'en remercie vivement, ainsi que Mme TREVISSON pour la qualité et la rapidité de l'impression.

page
↓

Chapitre I : Introduction.

Chapitre II : Méthodes de Réfrigération et Appareillage Expérimental :

- A) Introduction.
- B) Réfrigérateur à dilution.
 - a) Liquides de Fermi ; ^3He et mélanges $^3\text{He} / ^4\text{He}$.
 - b) Principe du réfrigérateur à dilution.
 - c) Techniques de la réfrigération à dilution.
- C) Effet Pomeranchuk.
 - a) Introduction.
 - b) Cellules expérimentales.

Chapitre III : Thermométrie :

- A) Introduction.
- B) CMN et CLMN.
- C) RMN.
- D) Courbe de fusion ^3He .
- E) Résistances de carbone.
- F) Constantes diélectriques.

Chapitre IV : ^3He Solide.

- A) Introduction.
- B) Propriétés générales de l' ^3He .
- C) Modèles théoriques de ^3He solide.
- D) Situation expérimentale avant 1980.
- E) Résultats actuels.
- F) Conclusion.

Chapitre V : ^3He adsorbé.

- A) Introduction.
- B) Physisorption - Structure des couches adsorbées.
- C) Magnétisme nucléaire à deux dimensions - Mesures de susceptibilité et de temps de relaxation.
- D) Etude aux neutrons de la 2^e couche de $^3\text{He} / \text{graphite}$.
- E) Conclusion.

Chapitre VI : Conclusion.

- Appendice I : Résistance Thermique de Kapitza
- Appendice II : Systèmes d'Unités
- Références

CHAPITRE I

INTRODUCTION

L'atome d' ^3He est formé par un nombre impair de nucléons ; il possède par conséquent un spin nucléaire ($J = 1/2$), contrairement à son isotope ^4He .

A très basses températures, les propriétés physiques de l' ^3He sont déterminées par la statistique de Fermi et doivent par conséquent être décrites dans le cadre de la mécanique quantique.

Les résultats sont souvent surprenants pour notre intuition : à température nulle, le liquide est la phase stable, et son entropie est inférieure à celle du solide ; l'énergie cinétique ne dépend pas de la température, mais de la densité ; le liquide devient superfluide.

Le solide est caractérisé par des fréquences d'échange des particules très importantes, ce qui se traduit, d'après le principe de Pauli, par une interaction effective entre les spins ; l'interaction d'échange.

L'hamiltonien d'Heisenberg, $\hat{H} = -2J \sum_{i<j} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j$, avec une valeur de J de l'ordre du millikelvin, semblait bien décrire les résultats expérimentaux obtenus pendant les années 60. L' ^3He était considéré comme un système idéal, parfaitement compris.

La recherche de la transition du deuxième ordre à $T_N \sim 2 \text{ mK}$ vers un état antiferromagnétique, prédite par la théorie, est entreprise dans les années 70. Mais l'observation par Halperin et al. (1974) d'une transition du premier ordre à $T \sim 1 \text{ mK}$ confirme une série d'expériences sanctionnant l'échec du modèle d'Heisenberg.

Ces résultats surprenants sont à l'origine d'un effort théorique important. Les nouveaux modèles considèrent soit le couplage de l'échange avec les phonons ou les lacunes de point zéro, soit un échange généralisé faisant intervenir la permutation simultanée de plusieurs particules. Leurs prédictions sur la structure de la phase ordonnée à bas champ et sur la nature de l'ordre à fort champ sont radicalement différentes. Une

vérification expérimentale implique par conséquent la réalisation de mesures à la limite des possibilités cryogéniques : des températures $\lesssim 1$ mK, sous des champs magnétiques pouvant atteindre plusieurs Teslas.

Les progrès des techniques de réfrigération et de thermométrie à ultra-basses températures permettent à plusieurs groupes expérimentaux (Bell Laboratories, La Jolla, Floride et Grenoble) de publier, en 1980, leurs résultats concernant l'ordre magnétique du solide :

- Osheroff et al. (1980) mettent en évidence la structure de la phase à bas champ par des mesures de résonance antiferromagnétique.

- Prewitt et Goodkind (1980) mesurent l'aimantation du solide au voisinage de la température d'ordre. Pour un champ supérieur à $B_0 \gtrsim 0.46$ T ils observent une augmentation de l'aimantation à la température d'ordre, contrairement au comportement à bas champ.

- Adams et al. (1980) observent la résonance antiferromagnétique à bas champ, et un déplacement de la raie de résonance à fort champ caractérisant une deuxième phase à forte aimantation ; ils obtiennent ainsi le diagramme de phases jusqu'à $B_0 \approx 3$ T.

- Nous avons effectué des mesures à des champs magnétiques $0 \leq B_0 \leq 7.2$ T sur la courbe de fusion, concernant la pression des transitions superfluides de l' ^3He liquide et l'ordre nucléaire du solide. Une analyse thermodynamique nous a permis de déterminer l'aimantation et l'entropie du solide, ainsi que les diagrammes de phases du solide et du superfluide.

Dans la phase à fort champ, l'aimantation reste pratiquement constante en fonction du champ entre $1 \lesssim B_0 \lesssim 7$ T, avec une valeur $\sim 70\%$ de l'aimantation à saturation, ce qui confirme l'existence d'une transition de phases, par opposition à un simple ordre paramagnétique.

Nous avons également mis en évidence des effets irréversibles dus à la relaxation du solide ; déplacement de la courbe de fusion, sauts de pression ("backstep"). Ces résultats sont décrits au chapitre IV, et discutés dans le cadre des théories actuelles.

Nous avons également étudié le magnétisme nucléaire de l' ^3He physisorbé. Les expériences du groupe de Helsinki avaient mis en évidence une tendance au ferromagnétisme sur les couches proches du substrat ; nous avons effectué des mesures similaires sur un substrat homogène, bien caractérisé du point de vue de la physique des surfaces : le grafoil, ainsi que sur un substrat hétérogène, la poudre d'alumine.

La susceptibilité mesurée correspond à une monocouche suivant une loi de Curie-Weiss, caractérisée par une température $\theta \sim 0.5$ mK positive (ferromagnétique). Le

temps de relaxation T_1 est court, et linéaire en température ; il augmente lorsque le substrat est recouvert d' ^4He .

Bozler et al. (1978) ont obtenu des résultats similaires ou complémentaires ; leurs expériences et les nôtres sont en désaccord avec celles du groupe de Helsinki (Ahonen et al. 1976 et 1978).

Plusieurs modèles théoriques ont été proposés pour expliquer le magnétisme nucléaire de l' ^3He adsorbé ; dans le solide à 2 dimensions : échange multiple, échange indirect par le liquide, ferromagnétisme lacunaire ; dans le liquide : ferromagnétisme itinérant.

Nous décrivons au chapitre V ces résultats expérimentaux et l'analyse effectuée dans le cadre de ces modèles, ainsi qu'une expérience aux neutrons réalisée très récemment à l'Institut Laue-Langevin sur la deuxième couche de l' ^3He sur le graphite.

L'ensemble des techniques cryogéniques connues et développées au C.R.T.B.T. a constitué un élément essentiel pour la poursuite de nos recherches. En particulier, citons les réfrigérateurs à dilution permettant de maintenir en continu des températures inférieures à 3 mK, et les cellules Pomeranchuk plastiques, développés par G. Frossati au laboratoire, avec notre collaboration depuis 1976.

Nous décrivons ces techniques au Chapitre II, ainsi que des méthodes de calcul simples permettant de les appliquer.

Un chapitre spécial est réservé à la thermométrie (Chapitre III), incertaine à très basses températures, en particulier sous fort champ magnétique. Nous avons proposé et utilisé deux nouveaux thermomètres : les capacités à lamelle de microscope, et la séparation des transitions A_1 et A_2 de l' ^3He superfluide sous champ.

Ce chapitre est également consacré à la discussion des techniques de résonance magnétique nucléaire, utilisées en thermométrie ainsi que pour les mesures magnétiques sur l' ^3He solide et adsorbé.

Le problème du transfert thermique entre l' ^3He liquide et un solide est évoqué dans l'Appendice I, fournissant des valeurs de la résistance de Kapitza d'un intérêt technique et fondamental.

L'Appendice II concerne l'équivalence entre les différents systèmes d'unités physiques.

CHAPITRE II

LA REFRIGERATION AU-DESSOUS DE 1K

II - A - INTRODUCTION

Les méthodes et les techniques de réfrigération jusqu'à un degré Kelvin sont actuellement maîtrisées ; débordant le cadre de la recherche fondamentale, elles ont trouvé ces dernières années de nombreuses applications industrielles. Parmi les ouvrages qui y sont consacrés, citons Rose-Innes (1964), White (1968), Conte (1970), etc.

Certaines méthodes permettent d'atteindre des températures au-dessous de 1K : ~ 0.3 K en pompant sur l' ^3He liquide, ~ 0.2 mK par désaimantation électronique adiabatique. Elles ont été employées avec succès depuis plusieurs années, mais sont actuellement abandonnées au profit de techniques offrant une puissance frigorifique plus importante, une température minimale inférieure, et ceci pendant de longues périodes, voire en continu.

Nous décrivons dans ce chapitre le réfrigérateur à dilution $^3\text{He}/^4\text{He}$ à circulation d' ^3He , et la cellule de Pomeranchuk ; nous avons travaillé à la mise au point de ces systèmes, collaborant avec M. G. Frossati lors de ses travaux de thèse, et nous les avons utilisés pour la réalisation des mesures présentées dans ce mémoire.

Nous ne discuterons pas l'application de la désaimantation nucléaire à l'obtention d'ultrabasses températures, bien que nous l'ayons employée jusqu'à 0.4 mK : nos principaux résultats n'ont pas été obtenus par cette technique, et les difficultés réelles n'apparaissent avec ce système qu'en dessous de cette température : Ahonen et al. (1976), Konter et al. (1977), Veuro (1978), Mueller et al. (1980).

II - B - REFRIGERATEUR A DILUTION

Il n'existe actuellement qu'une seule technique permettant de maintenir en

continu des températures dans la gamme du millikelvin : le réfrigérateur à dilution. Son principe de fonctionnement a été énoncé par London (1951) et London, Clarke et Mendoza (1962). Le premier cryostat de ce type, limité à 0.22 K, a été construit par Das, de Bruyn, Outbater et Taconis (1965) ; dès 1968 Neganov atteignait moins de 8 mK en continu. Plusieurs groupes ont travaillé à la mise au point de ces systèmes : Wheatley, Vilches et Abel (1968), Wheatley, Rapp et Johnson (1971), Radebaugh (1967), Radebaugh et Siegwarth (1970 et 1971). Les réfrigérateurs les plus performants à ce jour ont été mis au point dans notre laboratoire : Laumond (thèse, 1972), Frossati (thèse 1978), Schumacher (thèse 1978), Frossati, Godfrin, Hébral, Schumacher, Thoulouze (1977), et Frossati (1978). La température minimale est de l'ordre de 2 mK en continu.

Les principes de la réfrigération à dilution sont décrits de façon détaillée dans les livres de Lounasmaa (1974), et de Betts (1976) ; l'article de revue par Lounasmaa (1979) constitue une excellente introduction au sujet et une mise à jour indispensable des deux ouvrages cités précédemment. Après un rappel des propriétés des solutions de ^3He dans ^4He , nous décrirons le principe de fonctionnement, puis le réfrigérateur à dilution avec les appareils de mesure qui lui sont associés.

a) LIQUIDES DE FERMI : ^3He ET MELANGES $^3\text{He}/^4\text{He}$

Les propriétés thermodynamiques des mélanges liquides $^3\text{He}/^4\text{He}$ ont été analysées par Wheatley (1968, 1970), Ebner et Edwards (1971), Varoquaux (1971).

La figure II-1 représente le diagramme de phases Température-Concentration en ^3He d'une solution liquide $^3\text{He}/^4\text{He}$.

Le liquide est superfluide dans la région basses températures, faible concentration de ^3He ($x_3 = n_3 / [n_3 + n_4]$) ; le diagramme présente un point tricritique, de coordonnées $T_c = 0.86$ K, $x_c = 0.69$. Au-dessous de T_c , la solution se sépare en deux phases ; la plus riche en ^3He (ou "concentrée") flotte au dessus de la phase "diluée", grâce à sa densité plus faible.

Au-dessous de 100 mK, le concentré est constitué d' ^3He très pur : suivant Laheurte et Keyston (1971), la concentration d' ^4He est :

$$x_4 = 0.85 T^{3/2} \exp(-0.56/T) \quad (T \text{ en Kelvins})$$

La concentration de ^3He dans le dilué atteint une limite finie à $T = 0$, de l'ordre de 0.064 (Radebaugh et Siegwarth, 1971) ; d'après Ghozlan et Varoquaux (1975),

$$x_3 = 0.0648 (1 + 8.4T^2 + 9.4T^3)$$

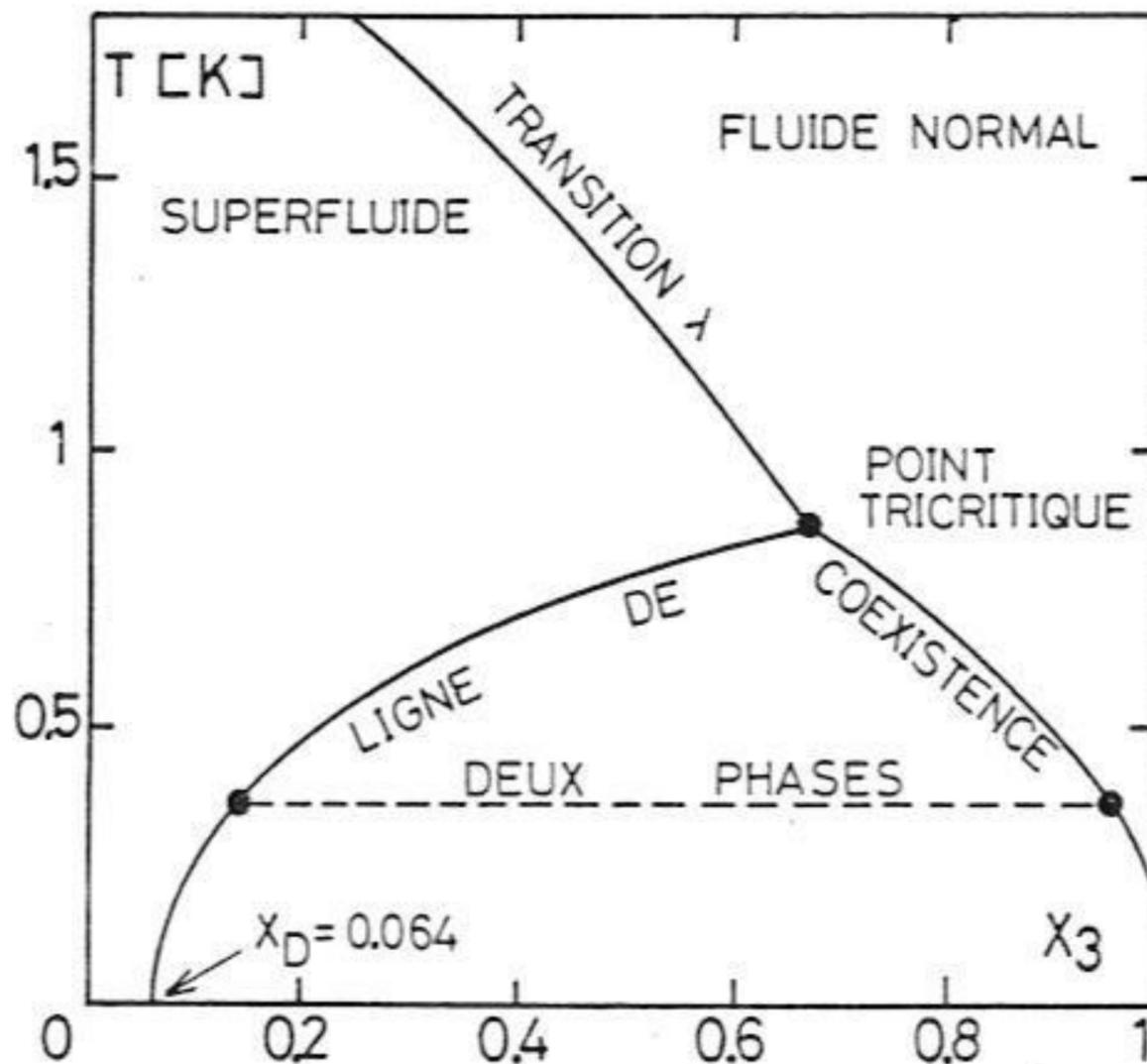


Fig. II-1 : Diagramme de phases des solutions liquides $^3\text{He} + ^4\text{He}$.

Cette solubilité limite a une importance capitale pour le fonctionnement des réfrigérateurs à dilution.

On peut décrire les mélanges $^3\text{He}/^4\text{He}$ dans le cadre de la théorie de Landau (1957) des liquides de Fermi ; en effet, le comportement des solutions est entièrement déterminé par la statistique de Fermi obéie par l' ^3He . L' ^4He a un spin nul ; il suit par conséquent la statistique de Bose-Einstein ; de par ses caractéristiques de superfluide, l' ^4He est pratiquement dans son état fondamental au-dessous de 0.7 K et n'agit que comme un support inerte des particules d' ^3He .

Pour un gaz de Fermi parfait, la fonction de distribution est $n(\varepsilon) = \left[\exp(\varepsilon - \mu) / k_B T + 1 \right]^{-1}$, ε étant l'énergie et μ le potentiel chimique, déterminé par la condition $\int_{\varepsilon} n(\varepsilon) = N$ où N est le nombre total des particules. Lorsque $T \ll T_F$, μ est pratiquement constant ; T_F est la température de Fermi :

$$k_B T_F \equiv \varepsilon_F = \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m} \left(\frac{3}{\pi} \frac{N}{V} \right)^{2/3}$$

$$p_F = \pi \hbar \left(\frac{3N}{\pi V} \right)^{1/3}$$

ϵ_F et p_F représentent l'énergie et l'impulsion de Fermi, et m la masse de la particule. La densité d'états du gaz, par unité de volume, est notée $d\tau / d\epsilon$.

$$\text{Au niveau de Fermi, } \left(\frac{d\tau}{d\epsilon} \right)_F = \frac{m}{\pi \hbar^2} \left(\frac{3N}{\pi V} \right)^{1/3} = \frac{m}{\pi^2 \hbar^3} p_F$$

On peut calculer les propriétés du gaz de Fermi à basses températures :

- la chaleur spécifique par unité de volume : $C = \frac{1}{3} \pi^2 k_B^2 \left(\frac{d\tau}{d\epsilon} \right)_F T$
- la vitesse du son : $c^2 = p_F^2 / 3m^2$
- la susceptibilité magnétique : $\chi = \mu_n^2 \left(\frac{d\tau}{d\epsilon} \right)_F$, où μ_n est le moment magnétique.
- la viscosité : $\eta \propto T^{-2}$
- la conductivité thermique : $K \propto T^{-1}$
- la diffusivité : $D \propto T^{-2}$

Les propriétés de transport font intervenir le temps de collision entre particules τ_c ; d'après la théorie cinétique des gaz, $\eta = \frac{1}{3} \rho v^2 \tau_c$, $K = \frac{1}{3} \rho \tau_c v^2 C$, $D = \frac{1}{3} \tau_c v^2$.

On obtient aisément $\tau_c \propto T^{-2}$ par un argument simple considérant l'espace des phases disponible pour deux particules après leur collision, ce qui explique les dépendances en température citées précédemment.

Il a été montré expérimentalement que le comportement de l' ^3He et des mélanges $^3\text{He}/^4\text{He}$ liquides peut être décrit par ces expressions (correspondant au gaz de Fermi, c-à-d en négligeant les interactions), pourvu que l'on admette une variation de la masse et du moment magnétique des particules ; ce sont précisément les prédictions du modèle de Landau.

La théorie est construite à partir du gaz de Fermi parfait ; les interactions sont introduites comme une perturbation, et on suppose qu'on peut le faire graduellement, en changeant l'énergie des niveaux ; ceux-ci sont cependant décrits par le même vecteur d'onde (en particulier, $p_F = \pi \hbar \left(\frac{3N}{\pi V} \right)^{1/3}$ reste inchangé).

Si $d\tau$ est le nombre d'états par unité de volume entre ϵ et $\epsilon + d\epsilon$, et $n(\epsilon)$ la fonction de distribution, $N/V = \int n d\tau$.

En présence d'interactions, l'énergie d'un atome n'est plus définie ; Landau a proposé d'écrire le changement de l'énergie de tout le système sous la forme $\delta U / V = \int \epsilon \delta n \, d\tau$, lorsqu'on effectue une variation δn de la fonction de distribution ; ϵ est l'énergie d'une particule interagissant avec N autres particules pour une distribution donnée.

Ceci définit l'énergie d'une quasi-particule ; on peut démontrer que :

$$n(\epsilon) = \left[(\exp(\epsilon - \mu) / k_B T) + 1 \right]^{-1}$$

mais ϵ dépend de n à présent.

Les nouveaux états ne sont pas vraiment des états propres du système, et il existera des transitions ; la largeur des niveaux sera $\delta\epsilon \sim \hbar / \tau$ où τ est la durée de vie. Pour un gaz parfait, $\tau \propto T^{-2}$, $\implies \delta\epsilon \propto T^2$; il est donc possible d'avoir des niveaux bien définis à très basses températures, où $\delta\epsilon \propto T^2 \ll k_B T$.

On peut alors écrire :

$$\epsilon = \mu + \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial p} \right)_F (p - p_F)$$

Pour un gaz parfait, $\left(\frac{\partial \epsilon}{\partial p} \right) = p_F / m = v_0$; dans le cas de Landau, on définit :

$\left(\frac{\partial \epsilon}{\partial p} \right)_F \equiv p_F / m^* = v_0$ (où m^* est la "masse effective" de la particule) :

$$\epsilon = \mu + \frac{p_F}{m^*} (p - p_F)$$

La densité d'états est alors $\left(\frac{d\tau}{d\epsilon} \right)_F = \frac{m^*}{\pi \hbar^2} \left(\frac{3N}{\pi V} \right)^{1/3}$

Landau introduit ensuite le concept de fonction d'interaction. Considérons la variation de l'énergie d'un niveau (caractérisé par une impulsion \vec{p}) lorsque la distribution des autres particules varie. Soit $\epsilon_0(\vec{p})$ l'énergie de ce niveau à $T = 0$.

$$\epsilon(\vec{p}) = \epsilon_0(\vec{p}) + \int f(\vec{p}, \vec{p}') \delta n' \, d\tau'$$

A basses températures, $|p| \sim |p'| \sim p_F$, et la fonction d'interaction ne dépendra que de l'angle $\hat{\chi}$ entre \vec{p} et \vec{p}' : $f(\vec{p}, \vec{p}') \equiv f(\hat{\chi})$

Landau définit $F(\hat{\chi}) = \left(\frac{d\tau}{d\epsilon} \right)_F f(\hat{\chi})$ et la développe en polynômes de Legendre :

$$F = \sum_N F_N P_N(\cos \hat{\chi}) = F_0 + F_1 \cos \hat{\chi} + F_2 \left(\frac{3 \cos^2 \hat{\chi} - 1}{2} \right) + \dots$$

Expérimentalement, les premiers termes sont les plus importants.

Il faut de plus introduire le spin dans la fonction d'interaction :

$$f'(\vec{p}, \vec{\sigma}; \vec{p}', \vec{\sigma}') = f(\vec{p}, \vec{p}') + \zeta(\vec{p}, \vec{p}') \vec{\sigma} \cdot \vec{\sigma}'$$

On définit alors $G(\hat{\chi}) = \left(\frac{d\tau}{d\varepsilon} \right)_F \zeta(\hat{\chi}) = G_0 + G_1 \cos \hat{\chi} + \dots$

$\zeta(\vec{p}, \vec{p}')$ (c-à-d G) représente l'interaction d'échange, alors que les fonctions "F" représentent la partie indépendante du spin de l'énergie d'interaction.

On peut calculer avec la théorie de Landau la chaleur spécifique C , la vitesse du son c , la susceptibilité χ , les coefficients de transport; les dépendances en température sont celles que nous avons décrites pour le gaz de Fermi parfait, mais les grandeurs absolues sont différentes. F_0 , F_1 et G_0 sont déterminés à partir de l'expérience au moyen des expressions :

$$C = \frac{m^{**}}{m} C_g \quad \frac{m^{**}}{m} = (1 + 1/3 F_1)$$

$$c^2 = c_g^2 (1 + F_0) / (1 + 1/3 F_1)$$

$$\chi = \frac{m^{**}}{m} (1 + 1/4 G_0)^{-1} \chi_g$$

où l'indice "g" indique les valeurs pour le gaz parfait.

Ainsi, pour l' ^3He liquide pur $m^{**}/m = 2.9$; $F_0 = 9.6$; $F_1 = 5.6$ et $G_0 = -2.7$. Ces valeurs ont été récemment remises en question, au moins en ce qui concerne le liquide pur (Alvesalo, 1980). Les interactions ont pour effet une augmentation de la densité d'états par rapport au gaz parfait ($m^{**}/m > 1$), ce qui se manifeste dans C et χ . Pour cette dernière, il faut aussi tenir compte de l'interaction d'échange G_0 , qui augmente χ , l'interaction étant par conséquent ferromagnétique.

On peut également calculer les coefficients de transport, en bon accord avec les mesures expérimentales.

Parmi les ouvrages traitant le problème des liquides de Fermi ou étudiant cet aspect de l' ^3He , nous citerons : Pines et Nozières (1966), Wilks (1967), Ron (1975), Armitage et Farquhar (1975).

Les tables suivantes résument les propriétés de ^3He liquide de Fermi (Wheatley, dans Armitage et Farquhar (1975)) :

TABLE II-1 Experimental parameters for normal Fermi liquid He³ as $T \rightarrow 0$.

	P (bar)												
	0	3	6	9	12	15	18	21	24	27	30	33	34.36
$\frac{V}{n}$ (cm ³ /mol)	36.84	33.87	32.07	30.76	29.71	28.86	28.13	27.56	27.06	26.58	26.14	25.71	25.54
$\frac{C}{nRT}$ (K ⁻¹)	3.00	3.22	3.43	3.61	3.78	3.95	4.10	4.24	4.37	4.51	4.64	4.78	4.85
c_1 (m/s)	182.9	227.5	259.7	285.9	308.0	327.1	345.0	360.5	375.1	389.3	403.0	415.9	421.7
T^* (K)	0.359	0.305	0.277	0.256	0.238	0.224	0.212	0.205	0.198	0.191	0.185	0.179	0.177
ηT^2 (poise mK ²)	1.834	1.73	1.63	1.54	1.46	1.38	1.30	1.22	1.14	1.06	0.99	0.92	0.88
κT (erg/sec cm)	34.8	29.7	25.8	22.7	20.3	18.4	16.7	15.3	14.0	12.9	11.9	11.0	10.7

TABLE II-2 Formulas for the computation of derived Fermi liquid parameters.

$$m = 5.009 \times 10^{-24} \text{ gm} \quad \rho = \frac{3.016 \text{ gm/mol}}{(V/n)}$$

$$2N(0) = \frac{(C/nRT)}{k(\pi^2/3)(V/N)} = \frac{(C/nRT)}{7.5421 V/n + 10^{-49} \text{ erg/K mol}}$$

$$p_F = \hbar \left(\frac{3N}{8\pi V} \right)^{1/3} = 2.7551 \times 10^{-19} \frac{\text{gm cm}}{\text{sec}} \left(\frac{1 \text{ cm}^3}{\text{mol}} \right)^{1/3} (V/n)^{-1/3}$$

$$\frac{m^*}{m} = \frac{\hbar^3}{8\pi m} \frac{2N(0)}{p_F} = 2.3110 \times 10^{-17} \frac{2N(0) \text{ erg}^3 \text{ sec}^3}{p_F \text{ gm}}$$

$$v_F = \frac{p_F}{(m^*/m)m} = \frac{p_F}{m^*/m \cdot 5.009 \times 10^{-24} \text{ gm}}$$

$$F_0 = \frac{3m^2 c_1^4}{\rho_F^2} \frac{m^*}{m} - 1 = \left[7.5270 \times 10^{-47} \text{ gm}^2 \frac{c_1^4}{\rho_F^2} \left(\frac{m^*}{m} \right) \right] - 1$$

$$F_1 = 3 \left(\frac{m^*}{m} - 1 \right)$$

$$Z_0 = 4 \left[\frac{3kT^*(m^*/m)m}{\rho_F^2} - 1 \right] = 4 \left[2.0746 \times 10^{-39} \frac{\text{erg gm } T^*(m^*/m)}{\text{K } \rho_F^2} - 1 \right]$$

$$\tau_\eta T^2 = \frac{\eta T^2}{\frac{1}{2} \rho_F^2 (m^*/m)} = \frac{(\eta T)(V/n)}{0.6032 \text{ gm/mol } v_F^2 (m^*/m)}$$

$$\tau_\kappa T^2 = \frac{\kappa T}{\frac{1}{2} (C/nRT) v_F^2} = \frac{(\kappa T)(V/n)}{\frac{1}{2} R(C/nRT) v_F^2} = \frac{(\kappa T)(V/n)}{2.7714 \times 10^7 \text{ erg/mol K } (C/nRT) v_F^2}$$

$$\lambda_N = \frac{1.362 \times 10^{-8} \text{ K } 37.0 \text{ cm}^3/\text{mol}}{T^* (V/n)}$$

TABLE II.A. Derived quantities for the normal Fermi liquid.

	P (bar)												
	0	3	6	9	12	15	18	21	24	27	30	33	34-36
$2N(0) [10^{28} (\text{erg cm}^2)^{-1}]$	1.08	1.26	1.42	1.56	1.69	1.82	1.93	2.04	2.14	2.25	2.35	2.46	2.52
$\rho_p (10^{-20} \text{ g cm/s})$	8.28	8.52	8.67	8.79	8.89	8.98	9.06	9.12	9.18	9.23	9.28	9.34	9.36
$v_p (10^3 \text{ cm/s})$	5.48	4.97	4.58	4.29	4.05	3.84	3.67	3.52	3.40	3.27	3.16	3.05	3.00
m^*/m	3.01	3.42	3.78	4.09	4.38	4.67	4.93	5.17	5.39	5.63	5.86	6.10	6.22
F_0	10.07	17.39	24.51	31.55	38.58	45.62	52.83	59.78	66.81	74.38	82.13	90.17	94.13
F_1	6.04	7.27	8.34	9.27	10.15	11.01	11.79	12.51	13.18	13.90	14.58	15.31	15.66
τ_0	-2.690	-2.805	-2.845	-2.876	-2.902	-2.923	-2.940	-2.943	-2.949	-2.953	-2.955	-2.958	-2.955
τ_1	-2.68	-2.33	-2.28	-2.21	-2.13	-2.06	-2.00	-2.05	-2.06	-2.09	-2.13	-2.16	-2.22
$\tau_1 T^2 (10^{-6} \text{ s mK}^2)$	1.24	1.15	1.09	1.00	0.96	0.96	0.91	0.87	0.82	0.78	0.73	0.69	0.66
$\tau_2 T^2 (10^{-6} \text{ s mK}^2)$	0.51	0.46	0.41	0.38	0.35	0.33	0.31	0.29	0.27	0.26	0.24	0.23	0.22
$\chi_M (10^{-9})$	3.81	4.88	5.67	6.38	7.09	7.75	8.38	8.92	9.42	9.91	10.42	10.93	11.17

Pour les solutions $^3\text{He}/^4\text{He}$ (Wheatley, 1970 : tables II-4 et II-5) ; la figure II-2, tirée de Radebaugh et Siegwarth (1970), représente la variation de m^*/m en fonction de x_3 , d'après Anderson et al. (1966), Edwards et al. (1965), et les théories BPP (Bardeen, Baym et Pines (1967) et Ebner (1967)).

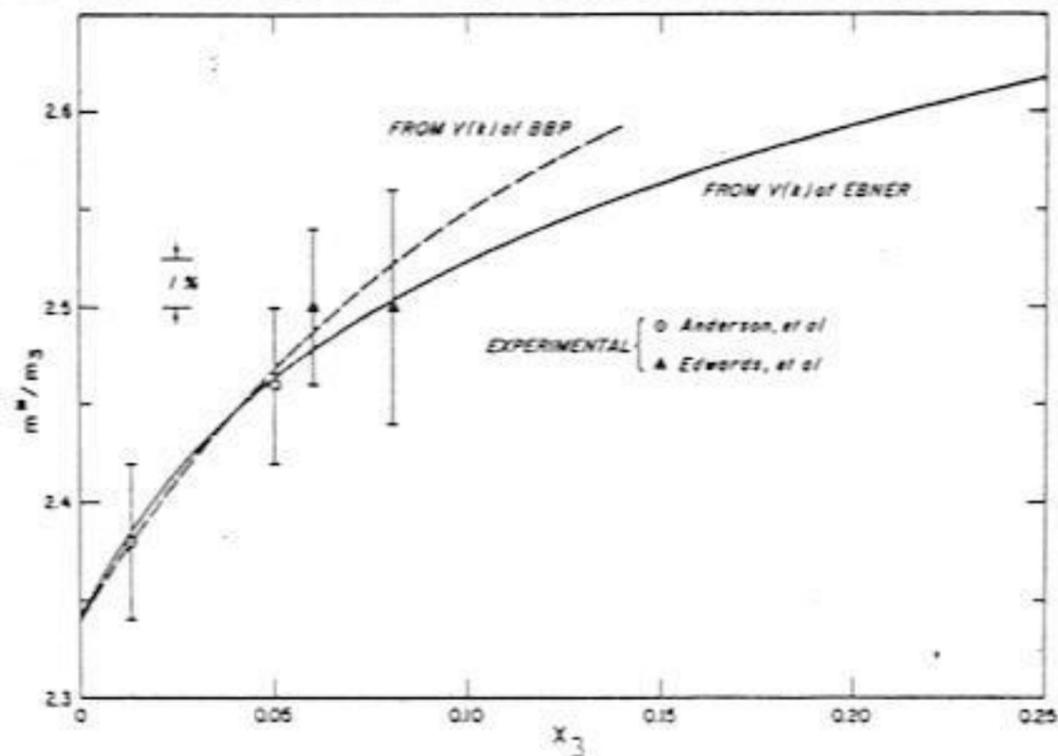


Fig. II-2 : Masse effective de l' ^3He en solution dans l' ^4He en fonction de la concentration atomique x_3 .

Table II-4

Numerical results for dilute solutions of He³ in He⁴ at zero temperature and pressure

He ⁴ atomic mass, m_4	6.646×10^{-24} g
He ³ atomic mass, m_3	5.008×10^{-24} g
He ³ quasiparticle mass, $2.34m_3$	11.73×10^{-24} g
Volume per atom, pure He ⁴ , $\omega_{4,0}$	45.8 Å ³
Volume per atom, pure He ³ , $\omega_{3,0}$	61.2 Å ³
Fractional excess volume of He ³ , α_0	0.29 ± 0.01
Solubility of He ³ in He ⁴	0.0640 ± 0.0007
$T_f = p_f^2/2mk$	$2.58x^{\frac{2}{3}}$ K
He ⁴ interaction energy, m_4v^2/k	27.4 K
Binding energy, He ³ to He ³ , L_{03}/k	2.47 K
Binding energy, He ⁴ to He ⁴ , L_{04}/k	7.17 K
Excess binding energy at $x=0$, He ³ to He ⁴ , $(E_{03}-L_{03})/k$	(0.312 ± 0.007) K
Effective interaction $V(q) = -0.064(m_4v^2/N_4)[1 - 1.15y - 4.16y^2 + 6.21y^3 - 2.32y^4]$ $y = \lambda q/2(0.318 \text{Å}^{-1})$	

Table II-5

Summary of measured and derived parameters for two dilute solutions of He³ in He⁴ and for pure He³ at low pressure. Probable errors listed in parenthesis are to be used for entries in the same row. Data for pure He³ are taken from ref. 1. In the table m^* is the effective mass of He³ at concentration x , $m = 2.34m_3$ is the effective mass of a single ³He atom in ⁴He, and m_3 is the atomic mass of ³He. The values of $\tau_e T^2$ for dilute solutions were taken from the thesis of W. R. Roach.² All values of τ are valid for variational solutions to the transport equations

	1.3%	5.0%	Pure (low pressure)
$T_f = p_f^2/2m^*k$	0.141 ± 0.002 K	0.331 ± 0.005 K	1.62 K
$x = N_3/(N_3 + N_4)$	0.0132 ± 0.0001	0.0502 ± 0.0003	1
m^*/m_3	2.38 ± 0.04 (0.02)	2.46 ± 0.04 (0.02)	3.0
$F_1 = 3(m^*/m - 1)$	$F_{1,5.0\%} - F_{1,1.3\%} = 0.11 \pm 0.04$		6.0
$k_f = p_f/\hbar$	2.04×10^7 /cm	3.17×10^7 /cm	7.88×10^7 /cm
$V_f = p_f/m^*$	1.80×10^3 cm/sec	2.71×10^3 cm/sec	5.38×10^3 cm/sec
$1 + \frac{1}{4}Z_0 = (\chi_{1000}/\chi)_0 \kappa$	1.09 ± 0.03	1.08 ± 0.03	0.34
Z_0	$+0.35 \pm 0.1$	$+0.34 \pm 0.1$	-2.66
DT^2	$[17.2 \pm 1.7(0.5)] \times 10^{-6}$ cm ² K ² /sec	$[90 \pm 9(4)] \times 10^{-6}$ cm ² K ² /sec	$(1.4 \pm 0.14) \times 10^{-6}$ cm ² /K ² sec
$\tau_0 T^2 = 3DT^2/\tau_f^2(1 + Z_0/4)$	2.0×10^{-11} sec K ²	4.5×10^{-11} sec K ²	6.3×10^{-12} sec K ²
κT	(11 ± 1.1) erg/sec cm	(24 ± 2.4) erg/sec cm	(33 ± 3.3) erg/sec cm
$\tau_e T^2$	1.8×10^{-11} sec K ²	1.0×10^{-11} sec K ²	1.2×10^{-12} sec K ²
$\tau_4 T^2$	2.0×10^{-11} sec K ²	2.4×10^{-11} sec K ²	2.0×10^{-12} sec K ²

La construction d'un réfrigérateur à dilution implique la connaissance de plusieurs grandeurs physiques caractéristiques des mélanges $^3\text{He}/^4\text{He}$; nous rappelons brièvement les résultats concernant la pression osmotique, la capacité calorifique, l'enthalpie, la conduction thermique et la viscosité.

- Pression Osmotique

Les atomes de ^3He dissous dans l' ^4He superfluide exercent une pression osmotique ; pour des concentrations $x_3 < 0.03$ et $T > 0.15$ K, π suit la loi de Van't Hoff :

$$\pi = \frac{n_3 RT}{V}$$

où n_3 est le nombre de moles de ^3He , V le volume de solution, et R la constante des gaz parfaits.

A basses températures, π est constant pour un liquide de Fermi : figure II-3, (Radebaugh, 1967).

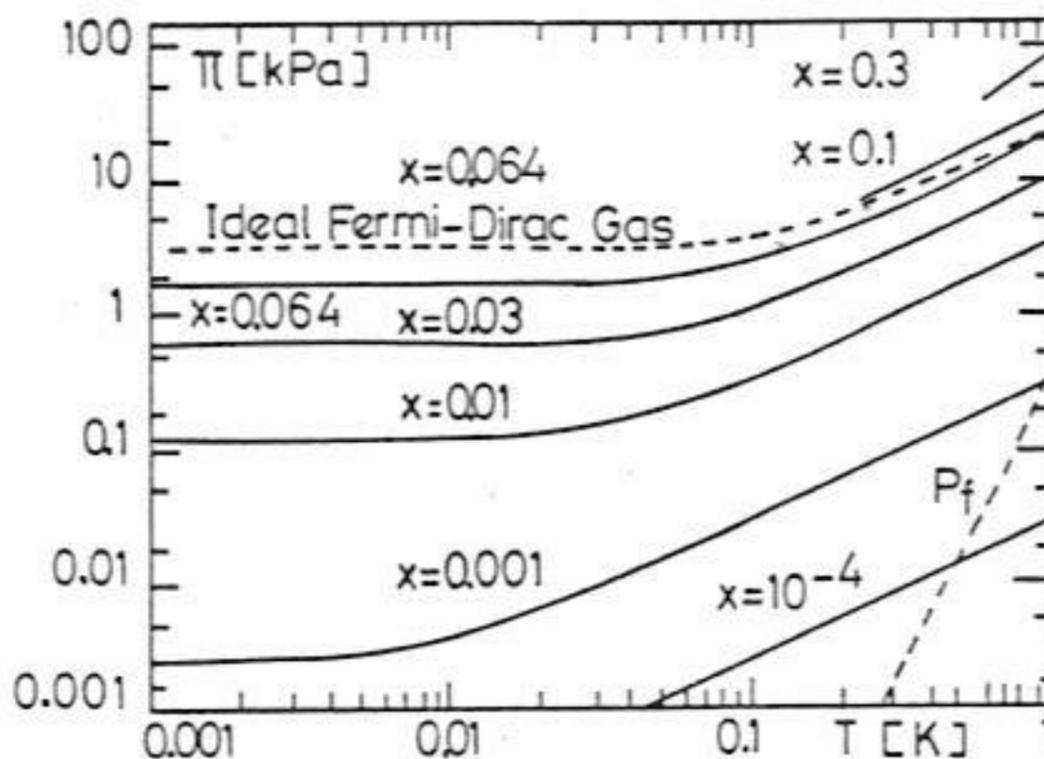


Fig. II-3 :
Pression Osmotique
de l' ^3He dilué dans
l' ^4He .

Au-dessus de 0.7 K, il faut tenir compte de la pression fontaine de ^4He liquide ; cette pression additionnelle P_f est en fait la pression osmotique de l' ^4He fluide normal dissous dans l' ^4He superfluide. La variation de P_f avec la température est également représentée sur la figure II-3.

- Chaleur Spécifique

La chaleur spécifique de ^3He et des mélanges à la pression de vapeur satu-

rante ($P \sim 0$) est représentée en fonction de la température sur la figure II-4 et II-5, d'après les résultats de Edwards et al. (1966), Anderson et al. (1966), et Wheatley (1970).

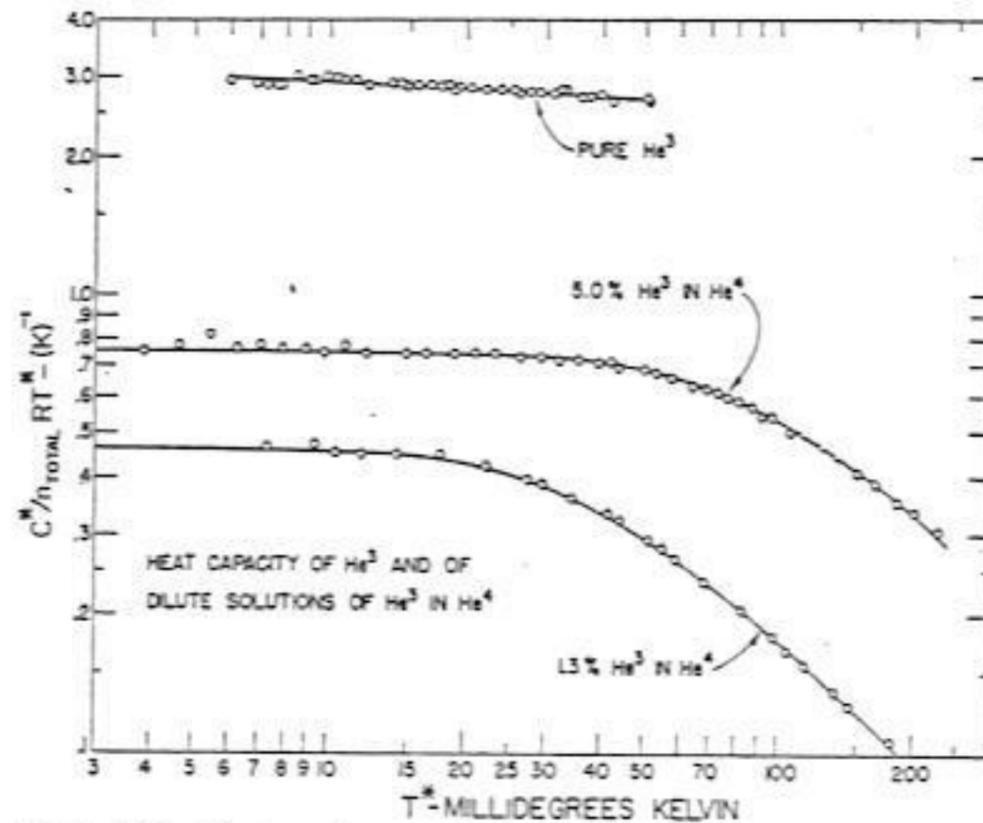


Fig. 17. Ratio of heat capacity per mole of solution to RT^* , where R is the gas constant and T^* is the magnetic temperature, for dilute solutions of He^3 in He^4 of nominal concentration 1.3% and 5.0% He^3 and at saturated vapor pressure. The solid lines are valid for an ideal Fermi gas as explained in the text. The specific heat of pure He^3 from ref. 37 is shown for comparison.

Fig. II-4 : Capacité calorifique des solutions $^3He + ^4He$.

A basses températures $C \propto n RT$; la constante de proportionnalité est donnée par la table II-1 pour 3He pur ($C_3 = 24 T$ J/mole K^2 au dessous de 40 mK à pression nulle).

Pour une solution diluée, $k_B T_F = \frac{\pi^2 \hbar^2}{2m^*} \left(\frac{3 x_3 N}{\pi V} \right)^{2/3}$; la chaleur spécifique

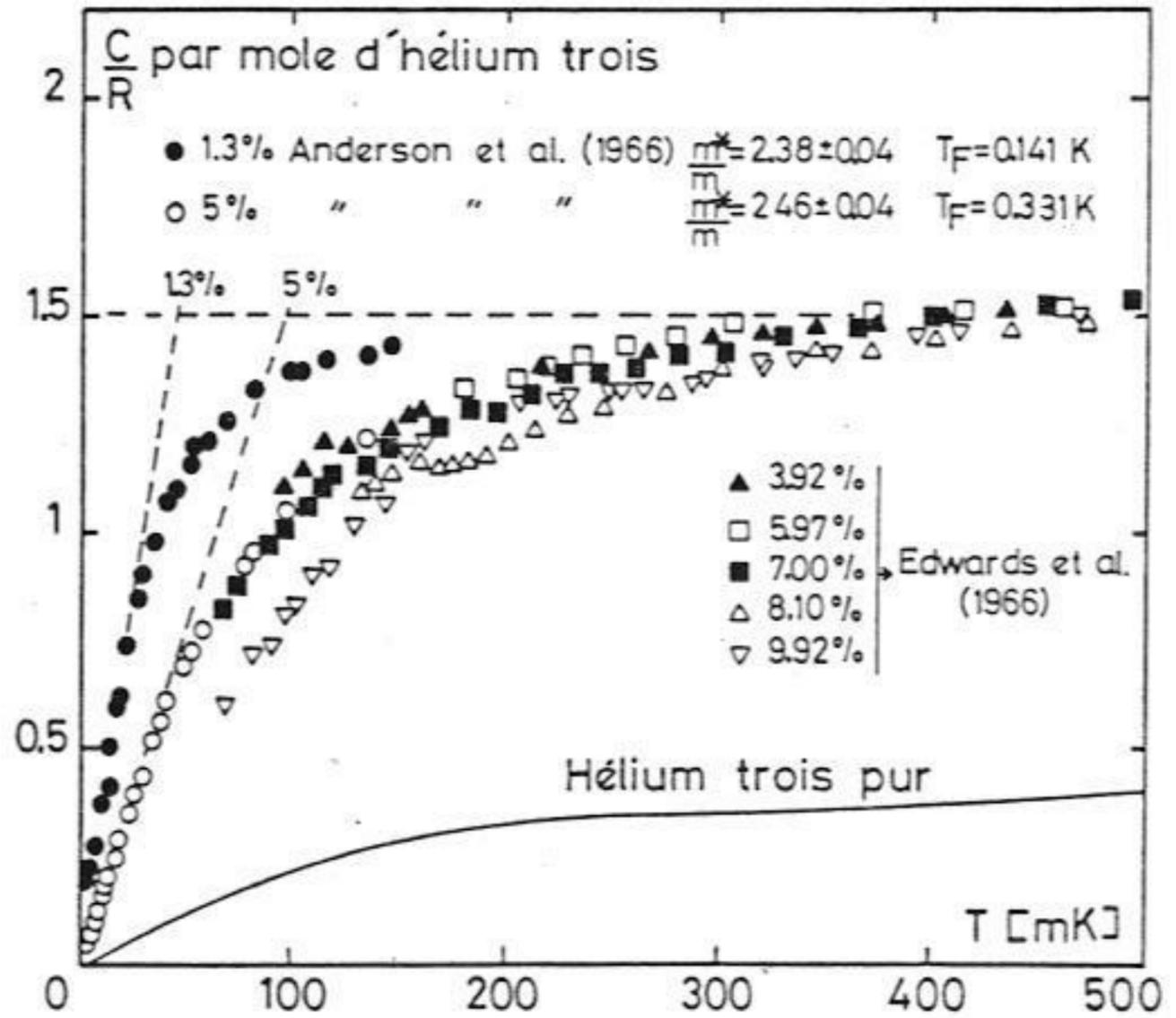
sera :

$$C = x_3 R \frac{\pi^2 T}{2 T_F} \propto x_3^{1/3} m^* T$$

Pour $x_3 = 0.064$ (et $T_F = 0.38$ K), on obtient $C = 6.9 T$ J/mole de mélange $\cdot K^2$ soit 108T J/mole de $^3He \cdot K^2$

Au dessous de 1 K, la capacité calorifique de 4He est négligeable par rapport à celle de 3He dilué. (Greywall, 1978).

Fig. II-5 :
Capacité calorifique des solutions ${}^3\text{He} + {}^4\text{He}$.



- Enthalpie

Dans ${}^3\text{He}$ pur, l'enthalpie à pression nulle pour $T < 40$ mK est :

$$H_3(T) = H_3(0) + \int_0^T C_3 dT = H_3(0) + 12,5 \text{ J/mole} \cdot K^2$$

(Lounasmaa, 1974).

La figure II-6 permet d'obtenir H_3 pour $30 < T < 700$ mK.

Pour une concentration x_3 fixée, l'enthalpie de la phase diluée est donnée au dessous de 40 mK, par la formule :

$$H_{3D}^{\text{osm}} = H_3(0) + 53,5 \text{ J/(mole d}'^3\text{He)} \cdot K^2 \quad (\text{enthalpie osmotique})$$

Sur la courbe de coexistence de phases, $x_3 = 0.064 + cT^2$, où c est une constante ; dans ces conditions,

$$H_{3D} = H_3(0) + 94,5 \text{ J/(mole d}'^3\text{He)} \cdot K^2 \quad (T < 40 \text{ mK})$$

H_{3D}^{osm} et H_{3D} sont donnés par la figure II-5 en fonction de la température : (Radebaugh

(1967), Ebner et Edwards (1971), Laumond (1971), Lounasmaa (1974).

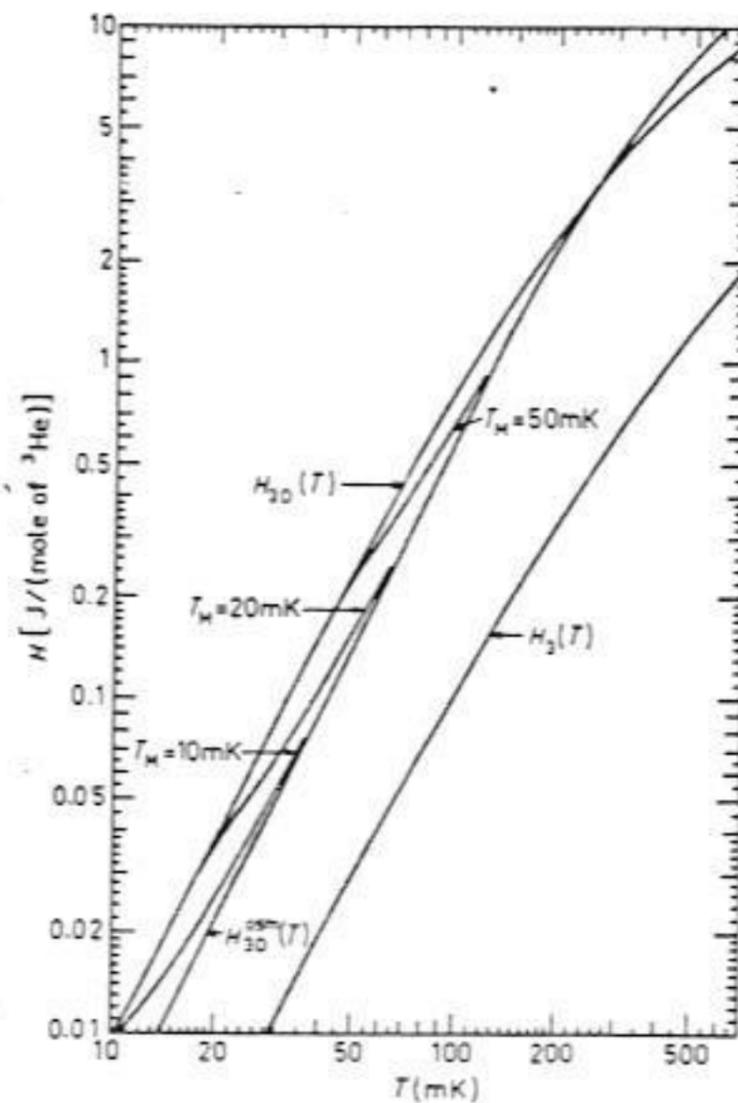


Fig. II-6 : Enthalpie de l' ^3He et des solutions $^3\text{He} + ^4\text{He}$.

- Conduction Thermique

La chaleur est conduite par les quasiparticules d' ^3He à basses températures ($K \propto T^{-1}$), et par les phonons à hautes températures ($K \propto T^3$ pour $T < 0.7\text{K}$); dans les mélanges $^3\text{He}/^4\text{He}$, la contribution des rotons de l' ^4He devient importante au-dessus de 0.5K .

Les figures suivantes, extraites de l'article de Wheatley (1970) donnent les valeurs de K pour de l' ^3He et de l' ^4He purs, ainsi que pour des solutions à $x_3 = 1,3\%$ et $x_3 = 0,5\%$.

Pour un liquide de Fermi, $K = \frac{1}{3} C v_F^2 \tau_K$, où C est la chaleur spécifique, v_F la vitesse de Fermi et τ_K le temps de relaxation pour K (\sim temps de collision

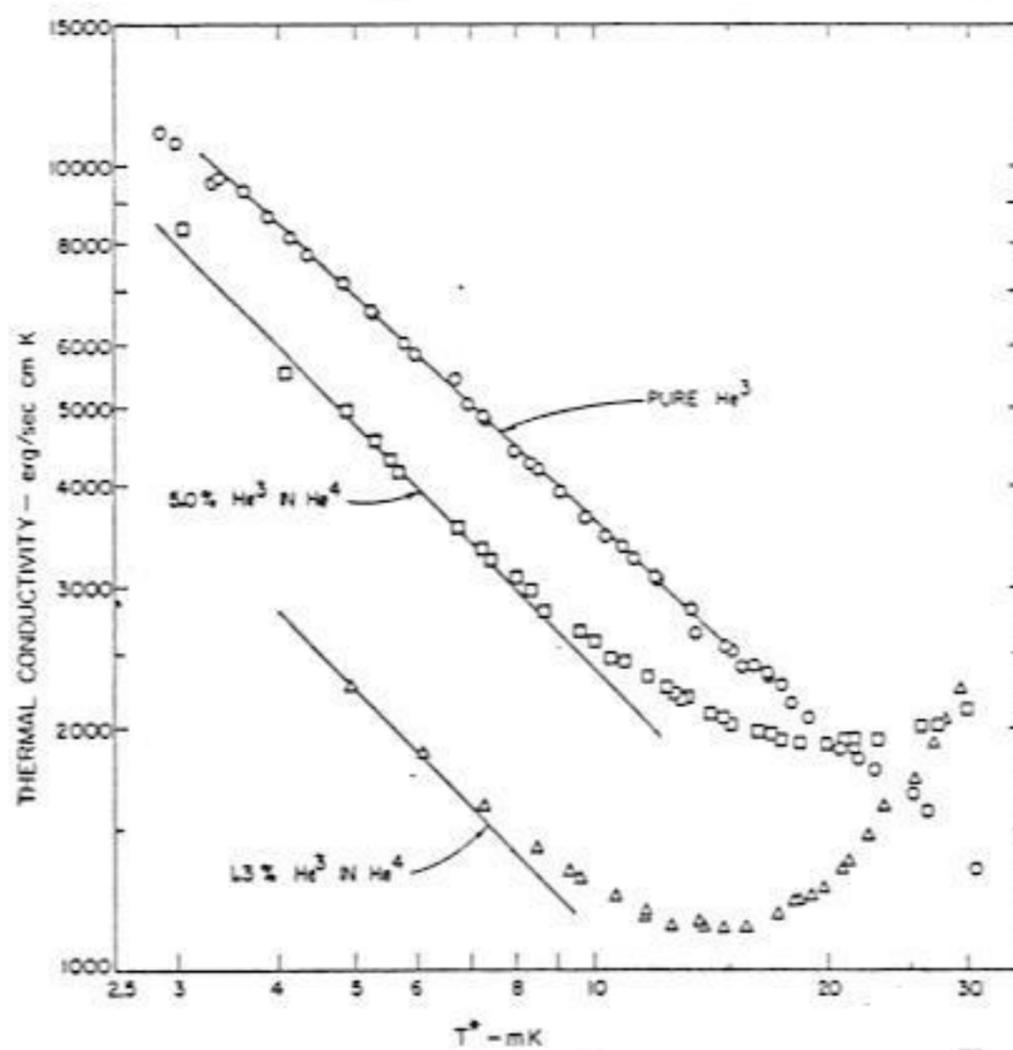


Fig. II-7 : Conductivité thermique de l' ^3He et des solutions $^3\text{He} + ^4\text{He}$.

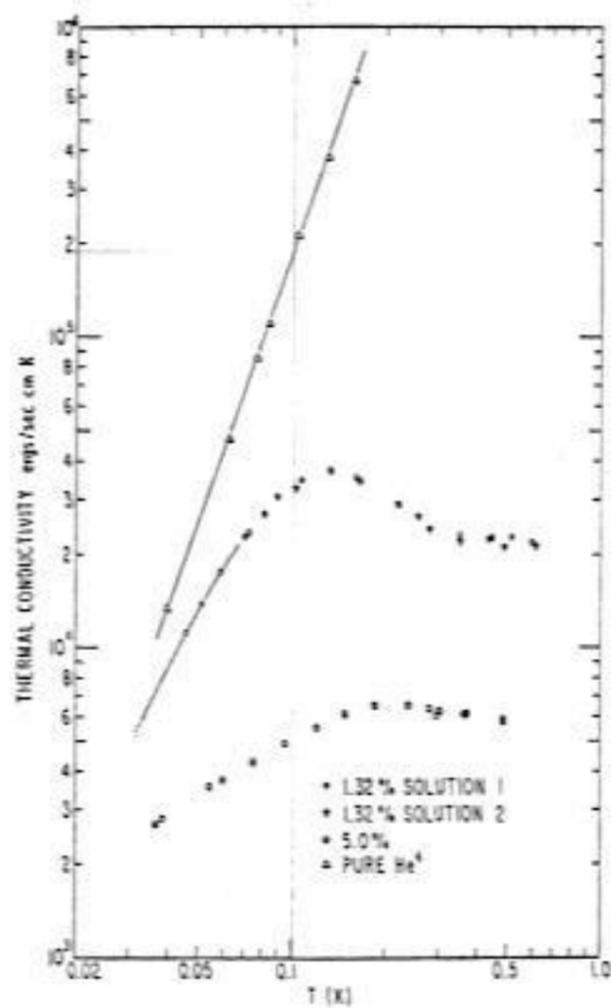


Fig. II-8.

entre quasiparticules τ_c), (table II-5).

Pour de 1^3He pur au-dessous de 40 mK :

$$K_3 = 3.48 \times 10^{-4} \text{ T}^{-1} \text{ J/s m}$$

Les valeurs pour des solutions à 1.3% et 5% ($T < 10$ mK) sont :

$$K_{(1.3\%)} = 1.1 \times 10^{-4} \text{ T}^{-1} \text{ J/s m} \quad \text{et} \quad K_{5\%} = 2.4 \times 10^{-4} \text{ T}^{-1} \text{ J/s m}$$

(Wheatley, 1970 et 1975).

- Viscosité

Pour des températures au-dessous de T_F , la viscosité η est proportionnelle à T^{-2} , c-à-d la dépendance en température du temps de collision entre quasiparticules τ_c :

$$\eta = \frac{1}{5} \rho v_F^2 (\text{m}^2 / \text{s}) \tau_\eta$$

où ρ est la masse spécifique, et τ_η le temps de relaxation pour la viscosité ($\tau_\eta \sim T$) (voir table II-5).

Pour 1^3He pur au-dessous de 100 mK, $\eta = T^{-2} \times 1.834 \times 10^{-7} \text{ N s K}^2 / \text{m}^2$ (à la pression de vapeur saturante), (Wheatley, 1975).

La valeur correspondant à une solution diluée, $x_3 = 6.4\%$ est de

$$\eta_D = T^{-2} \times 5 \times 10^{-8} \text{ N s K}^2 / \text{m}^2$$

Des valeurs de η dans une gamme de températures plus importante sont données par les figures II-9 et II-10.

NB: $1 \text{ N s} / \text{m}^2 = 10 \text{ Poises (cgs)}$

b) PRINCIPE DU REFRIGERATEUR A DILUTION

Le fonctionnement du réfrigérateur à dilution est fondé sur un principe simple : il existe une différence importante d'enthalpie entre la phase concentrée et la phase diluée, même à très basses températures (figure II-6).

Il suffit donc de transformer de la phase concentrée en phase diluée pour obtenir une réfrigération $\dot{Q}(T) = \dot{n}_3 [H_{3D}(T) - H_3(T)]$, où \dot{n}_3 est le débit molaire

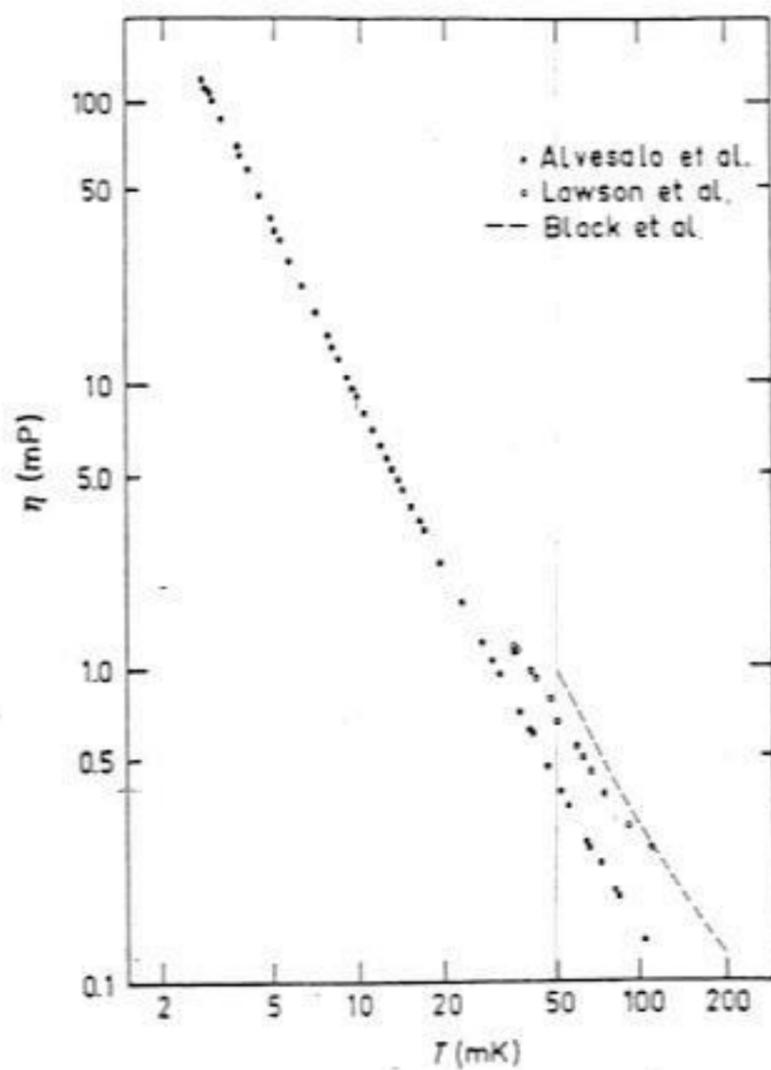


Fig. II-9 : Viscosité de l' ^3He pur.

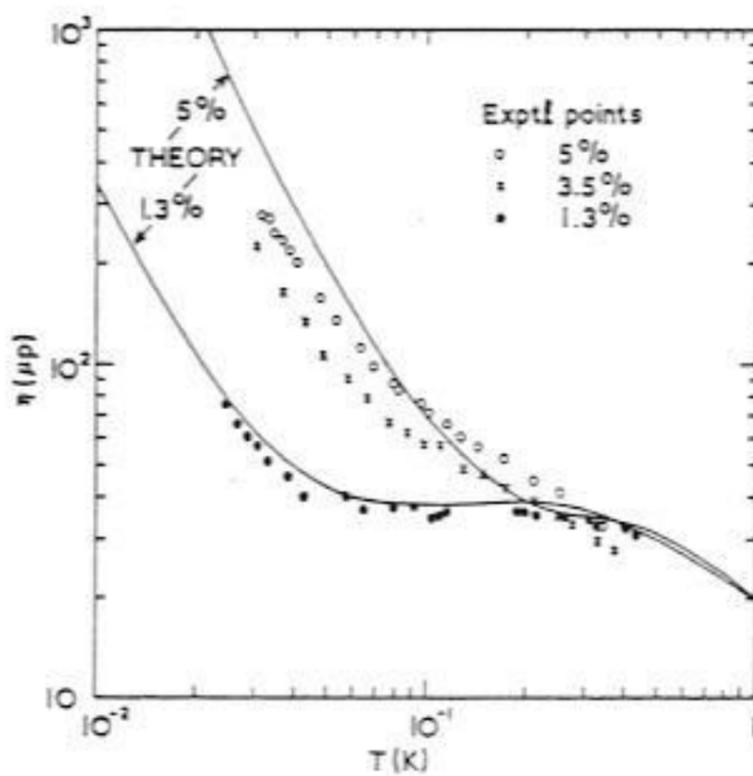


Fig. II-10 : Viscosité des solutions $^3\text{He} + ^4\text{He}$.

d'³He, H₃D l'enthalpie par mole d'³He dilué, et H₃ celle d'une mole d'³He concentré.

A basses températures ($T < 0.87$ K), les deux phases coexistent (cf. § IIA-a). Le concentré flotte au-dessus du dilué ; l'interface, ou "séparation de phases" est le coeur de l'appareil à dilution : c'est à ce niveau que les atomes d'³He du concentré vont se dissoudre dans le dilué, et par conséquent l'endroit où la puissance \dot{Q} sera absorbée ; le récipient où se produit la séparation de phases est appelé "boîte à mélange" (BM).

A l'équilibre, l'échange net d'atomes d'³He entre les deux phases est nul ; il en est de même, par conséquent, pour \dot{Q} . Il est donc nécessaire d'établir une circulation des atomes d'³He par un moyen extérieur pour obtenir une absorption d'énergie. Ceci est obtenu par distillation du dilué dans "l'évaporateur" ; l'³He, dont la tension de vapeur est supérieure à celle de l'⁴He, s'évapore plus facilement, et le mélange s'appauvrit en ³He. Il en résulte un gradient de pression osmotique entre l'évaporateur et la boîte à mélange, et par conséquent un débit d'³He \dot{n}_3 tendant à rétablir la concentration à l'équilibre.

L'³He extrait de l'évaporateur grâce à un système de pompage est réinjecté dans la phase concentrée de la boîte à mélange, après condensation à une température d'environ 1.3 K fournie par la "boîte à un degré" (BlK). Une impédance de condensation est intercalée à ce niveau du circuit d'injection, afin que la pression d'injection au débit de fonctionnement \dot{n}_3 soit au moins égale à la pression de condensation à 1.3 K.

Il est évident que l'introduction d'³He "chaud" dans la boîte à mélange constitue une charge thermique pour le réfrigérateur ; il convient par conséquent d'employer le dilué froid allant de la boîte à mélange vers l'évaporateur pour prérefroidir le concentré. Deux types d'échangeurs thermiques ont cette fonction : l'échangeur continu, et les échangeurs basses températures.

Dans ce système, représenté schématiquement sur la figure II-11, pratiquement seul l'³He est circulé ; il existe également des réfrigérateurs à circulation d'⁴He, où l'³He est bloqué entre deux superfuites (Pennings et al. 1976, Schumacher (thèse, 1978) et Frossati, Schumacher et Thoulouze (1975)) dont les performances sont actuellement inférieures à celles du système classique décrit dans cette thèse.

c) TECHNIQUES DE LA REFRIGERATION A DILUTION

Le réfrigérateur est logé dans une enceinte sous vide secondaire ("calorimètre") plongée dans un bain de ⁴He à 4.2 K. Le pompage du calorimètre n'est pas nécessaire à très basses températures, le cryopompage étant alors très efficace ; celui-ci est alors fermé, ce qui évite la perte de mélange en cas de fuites sur le réfrigérateur.

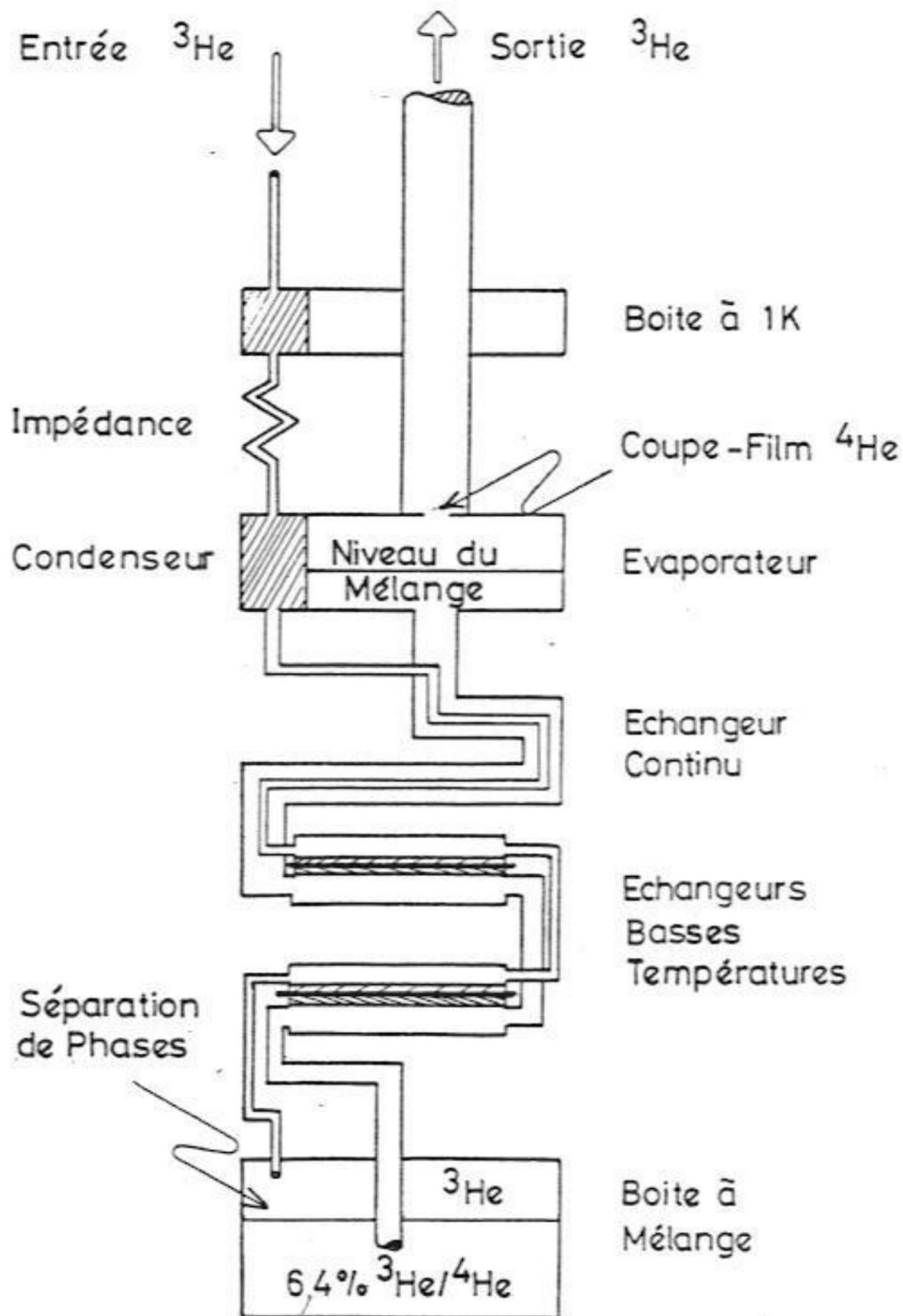


Fig. II-19 : Schéma de principe d'un réfrigérateur à dilution.

Deux écrans en cuivre (ou en fils de cuivre noyés dans une résine époxy), attachés à la boîte à un degré et à l'évaporateur, protègent la partie basses températures du réfrigérateur du rayonnement à 4.2K provenant du calorimètre. Des vis de centrage en Vespel, dont l'extrémité est taillée en pointe, rendent l'ensemble rigide sans nuire toutefois à l'isolation thermique.

Les principaux éléments du réfrigérateur à dilution que nous avons employé sont décrits dans les paragraphes suivants :

- Boîte à un degré (BIK)

C'est une petite enceinte annulaire (figure II-12) entourant le tuyau de pompage de l'évaporateur, d'un volume de 52 cm^3 .

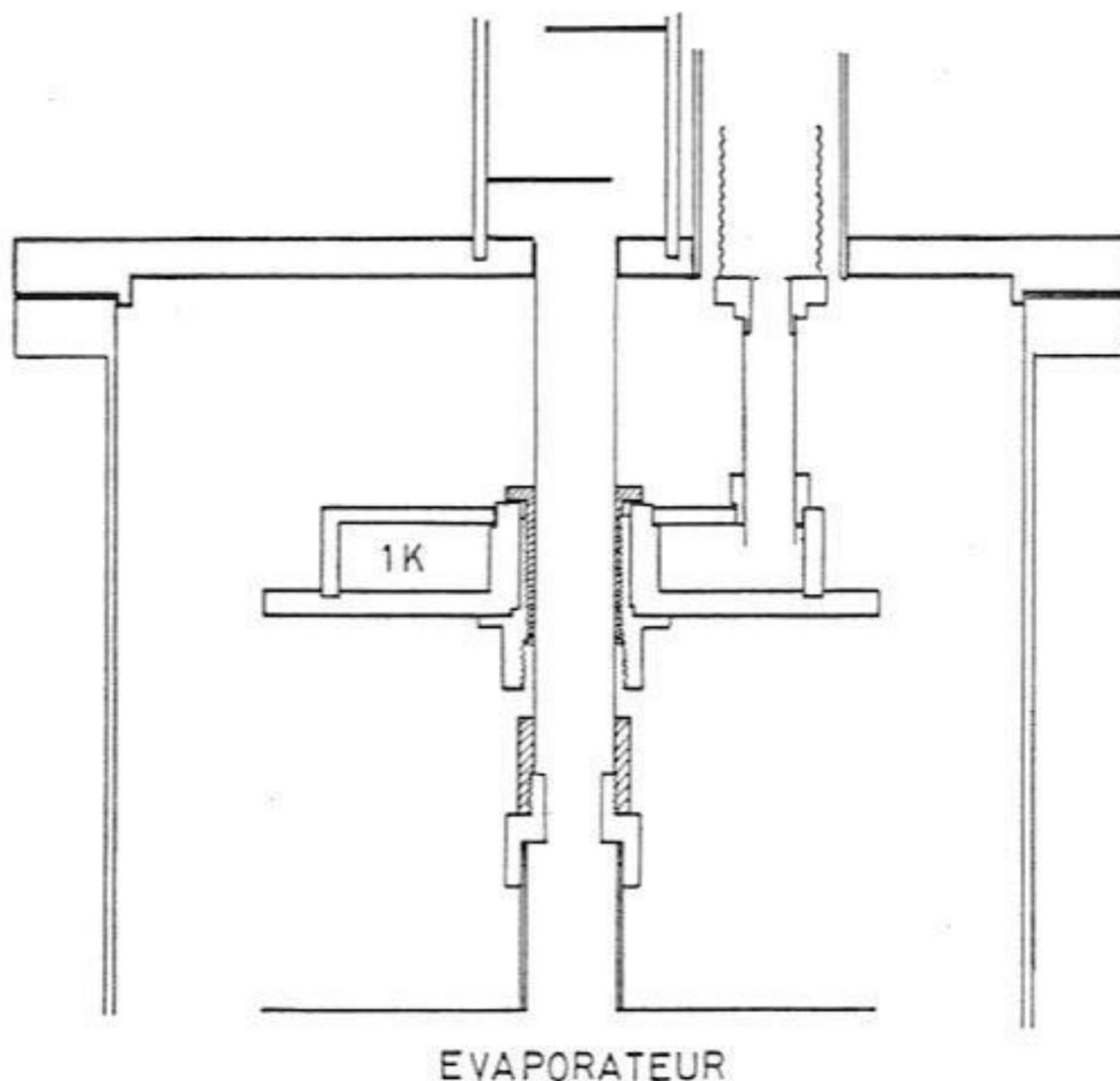


Fig. II-12 : Boîte à un degré.

Le remplissage en ^4He s'effectue à partir du bain d' ^4He , à travers une microvanne suivie d'une impédance (Z_1), au début de l'expérience. Une impédance en parallèle (Z_2)

alimente la boîte de façon permanente (De Long, Symko et Wheatley, 1971).

Z_1 et Z_2 sont déterminées empiriquement. Z_1 doit être assez faible pour remplir la boîte rapidement, sans toutefois réchauffer à $T > 1.5$ K pendant l'opération. Le choix de Z_2 est plus critique : le débit d'Helium à travers Z_2 doit permettre de compenser l'évaporation due à la puissance dissipée par la condensation du mélange, environ 15 mW pour $\dot{n}_3 = 100 \mu$ moles/s.

En tenant compte de la chaleur latente de l' ^4He (~ 80 J/mole à 1K) et du refroidissement de l' ^4He de 4.2 à 1K, on obtient un débit d' ^4He d'environ 400μ moles/s pour $\dot{n}_3 = 100 \mu$ moles/s.

La boîte à 1K se vide lorsque Z_2 est trop grande ; dans le cas contraire, le niveau d'hélium monte dans le tuyau de pompage : la puissance frigorifique de la boîte décroît et la température se stabilise à une valeur élevée.

Les impédances sont réalisées au moyen de capillaires en inox ou en cuivre-nickel ; dans ce cas, l'impédance définie par l'expression $Z = \eta^{-1} \Delta P / \dot{V}$, où η est la viscosité, ΔP la différence de pression et \dot{V} le débit volumique, est donnée par la formule

$$Z = 128 l / \pi D^4$$

l étant la longueur et D le diamètre du capillaire. Du fait de la forte dépendance en D de l'impédance, ces formules ne fournissent qu'un ordre de grandeur. En pratique Z_1 est constituée par 20 cm de capillaire de diamètre nominal 0.2 mm, et 20 cm de 0.1 mm pour Z_2 ; ces valeurs doivent être ajustées après quelques essais.

Le diamètre du tuyau de pompage est dans notre cas égal à 1 cm près de la boîte. Les tuyaux de pompage et les supports sont calculés de sorte que la puissance amenée par conduction à partir de 4.2 K soit inférieure à 1 mW. La conduction par l' ^4He des capillaires de remplissage peut être déterminée au moyen des tables publiées par Bertman et Kitchens (1968).

Pour notre impédance de 20 cm de diamètre 0.1 mm, la puissance conduite est inférieure à 0.1 mW; et peut être négligée ; pour 25 cm de capillaire de diamètre 0.2 mm, $\dot{Q} \sim 1$ mW, et commence à devenir important.

Le pompage de la boîte à un degré est assuré par une pompe Alcatel 2060, dont le débit est $60 \text{ m}^3/\text{heure}$; la température de la BIK pendant l'opération du réfrigérateur est de 1.2 K environ, ce qui implique une pression de l'ordre de 100 Pa sur la BIK (0.7 torr).

- Système de condensation du mélange

Le concentré est en premier lieu prérefroidi à 4.2 K par thermalisation avec le bain : la capillaire d'arrivée d' ^3He est introduit dans un cylindre en cuivre rempli de copeaux de cuivre (destiné à piéger les vapeurs d'huile, l'hydrogène ou les particules ayant échappé aux filtres et pièges du système de pompage à l'ambiante) ; un tube en laiton de diamètre intérieur 3.5 mm, diamètre extérieur 4 mm, et de 3 mètres de longueur (enroulé autour du cylindre) assure une bonne thermalisation avec l' ^4He du bain. Cette longueur est nécessaire à cause de la vitesse du gaz dans le circuit.

L' ^3He est ensuite thermalisé sur la BIK, en circulant dans un tube en laiton (dimensions originelles 1.6 mm diamètre intérieur, 2 mm diamètre extérieur), aplati (par enroulement sur une tige de 2 mm de diamètre) afin de diminuer son volume intérieur, et situé à l'intérieur de la BIK.

A la pression d'injection (environ 30 kPa, soit ~ 200 torr), l' ^3He est liquéfié à la température de la BIK : la tension de vapeur est de 3 kPa (~ 20 torr) pour $T \sim 1.2$ K, et n'est encore que de 10 kPa (~ 70 torr) pour $T \sim 1.6$ K.

L'impédance d'injection (Z_3) provoque cette perte de charge ; en effet, la pression dans le reste du réfrigérateur est ~~égale~~ ^{proche de} celle de l'évaporateur, ~ 1 Pa, les pressions hydrostatiques et les pertes de charge dans le reste du circuit étant ~~négligeables~~ ^{très} ~~faibles~~. Sa valeur doit être choisie pour que la pression d'injection reste supérieure à la tension de vapeur à la température de la BIK ($P \gtrsim 10$ kPa) quelque soit le débit du réfrigérateur (en général, $50 < \dot{n}_3 < 500$ moles/s), sans toutefois dépasser 100 kPa (760 torr) ; on préfère en effet maintenir le circuit ^3He en dépression pour limiter les fuites. L'impédance devra par conséquent être soigneusement ajustée par essais successifs ; de plus, l'impédance des extrémités du capillaire est souvent appréciable, on enregistre des variations de Z avec les conditions de propreté du système. L'impédance variable de Schumacher (thèse, 1978) constitue une solution intéressante à ces problèmes.

Nous avons employé une impédance fixe, d'une valeur calculée d'environ 10^{16} m^{-3} , réalisée avec 50 cm de capillaire cuivre-nickel de diamètre intérieur 0.2 mm, et 0.5 mm extérieur.

Le capillaire d' ^3He est ensuite thermalisé à l'évaporateur ; le contact ne pose aucun problème à ces températures (~ 0.7 K) : il suffit de loger quelques dizaines de centimètres de capillaire dans l'évaporateur, ~~qui servent également d'impédance~~ ^{secondaire de condensation}.

L' ^3He est ensuite prérefroidi par les échangeurs (dont la description est donnée plus loin), avant d'entrer dans la boîte à mélange.

- La boîte à mélange (BM)

Nous avons utilisé plusieurs types de boîte à mélange : en cuivre, au laboratoire de Basses Températures de Bariloche, et en résine époxy (Araldite) au C.R.T.B.T. (Grenoble). Les premières sont utiles lorsque l'échantillon peut être vissé sur la BM ; elles ont l'avantage d'une bonne thermalisation de toutes les parois de la BM avec le mélange. Ceci n'est pas le cas pour les boîtes en Araldite : la diffusion thermique dans les plastiques étant mauvaise, on peut mesurer un apport de chaleur parasite décroissant avec le temps, probablement dû aux systèmes à deux niveaux caractéristiques des matériaux amorphes. En champ magnétique intense, la relaxation nucléaire des protons augmente l'importance de ce problème. (T_1 est de l'ordre de quelques dizaines d'heures).

Ce genre de BM présente cependant de gros avantages : le caractère isolant du matériau évite les problèmes de courants induits (expériences à fort champ magnétique et en radiofréquence) ; la construction est très simple ; le collage de pièces tournées ou fraisées peut se faire in-situ ; finalement, l'accès à l'intérieur de la boîte (afin d'y loger des échantillons ou des cellules de mesure) est aisé, grâce aux bouchons coniques en Araldite, scellés à la graisse à vide. Ces bouchons, (Frossati, non publié) sont beaucoup plus fiables que ceux en cuivre (A.C. Mota, 1971) dont ils s'inspirent. Ils sont étanches au superfluide jusqu'à des pressions de l'ordre de 5 MPa, pour des diamètres d'environ un centimètre, à condition d'usiner les parties mâle et femelle du cône sans modifier la position de la tourelle du tour ; un rodage à la pâte de diamant est parfois nécessaire. La pression dans le réfrigérateur à dilution étant très faible, nous avons proposé et essayé un type de bouchon similaire à celui de Frossati, mais avec une portée plane (figure II-13)

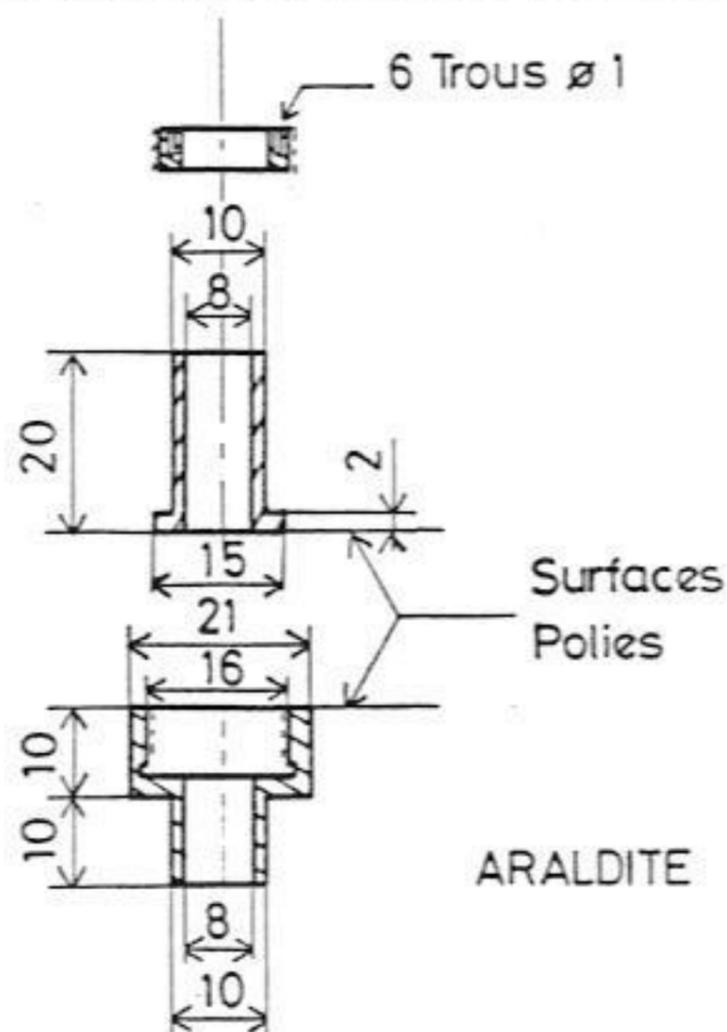


Fig. II-13 :
Bouchon conique en Araldite.

Étanches au superfluide pour des pressions inférieures à 0.5 MPa, ils ont l'avantage d'être moins volumineux, et surtout de ne pas présenter les problèmes de compatibilité des bouchons coniques, où de très petites différences d'angle des cônes mâle et femelle donnent lieu à des fuites.

La figure II-14 représente la BM que nous avons employé (Frossati 1978) ; dans ce modèle, à double paroi, le dilué forme un écran thermique autour de la partie froide. L'entrée du concentré a lieu dans la partie supérieure de la cloche intérieure ; le dilué circule autour de la cloche vers le dessus de la boîte. Les diamètres des tubes d'entrée et de sortie sont ceux du dernier échangeur (voir § "échangeurs thermiques").

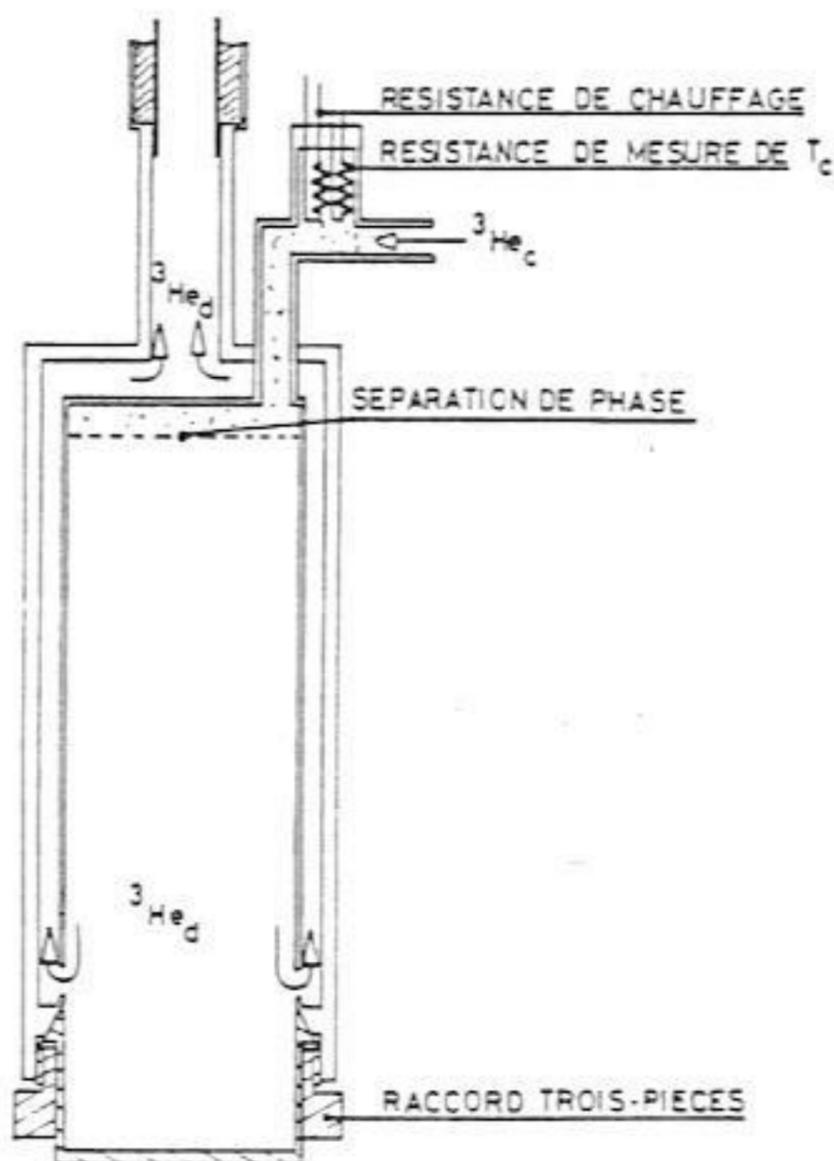


Fig. II-14 :
Boîte à mélange.

Le chauffage de la BM (une résistance $\sim 100\Omega$), et un thermomètre (résistance carbone Speer 100Ω ou Matsushita 68Ω), sont logés à l'entrée du concentré, et permettent la régulation de la température de la boîte à mélange au moyen d'un pont de résistances (cf. Chapitre III-E).

L'étanchéité des tubes en cuivre-nickel et des fils de mesure entrant dans la BM est assurée par du Stycast 2850 FT ; ces passages sont en général ménagés dans un bouchon conique, ce qui rend plus simple leur remplacement en cas de fuite.

- L'Evaporateur

L'³He de la phase diluée est conduit de la boîte à mélange à l'évaporateur, après avoir traversé les échangeurs. Le rôle de l'évaporateur est de séparer l'³He de l'⁴He ; le débit en ³He doit être maximisé (pour obtenir une forte puissance frigorifique), tout en minimisant celui d'⁴He (la démixtion lors du refroidissement dans l'échangeur continu aurait pour résultat une charge thermique supplémentaire à ce niveau).

La concentration d'³He dans l'évaporateur ($x_{3\text{év.}}$) est beaucoup plus faible que celle dans la boîte à mélange ($x_{3\text{BM}} \sim 6,4\%$). Considérons en effet la figure II-3 ; à circulation \dot{n}_3 nulle, la pression osmotique dans la boîte à mélange (π_{BM}) est égale à celle de l'évaporateur ($\pi_{\text{év.}}$), de l'ordre de 2 kPa. La température de l'évaporateur est maintenue au-dessus de 0.5 K afin d'obtenir une évaporation suffisante d'³He avec des systèmes de pompage classiques ; la concentration d'³He pour $\pi \sim 2$ kPa est de l'ordre de 1% à débit nul.

La circulation d'³He est obtenue en pompant sur l'évaporateur ; la concentration en ³He est réduite au-dessous de la valeur d'équilibre $x_{3\text{év.}} = 1\%$, et la différence de pression osmotique entre l'évaporateur et la boîte à mélange donne lieu à un débit \dot{n}_3 . Il est évident que la différence de pression osmotique maximale sera de l'ordre de 2 kPa, obtenue lorsque la concentration de l'³He dans l'évaporateur tend vers zéro. En pratique, \dot{n}_3 est limité par le système de pompage, à condition de prendre certaines précautions au niveau des échangeurs (voir le paragraphe correspondant).

La tension de vapeur au-dessus du mélange de l'évaporateur est $P = P_3 + P_4$ où P_3 est

la pression partielle de l'³He : $P_3 = \frac{k_B T x_3}{V_4} \left(\frac{m_3}{m_3^0} \right)^{3/2} \exp(-E_{03} / k_B T)$ soit

$P_3 \sim 390 \exp(-2.17 / T)$ aux températures de fonctionnement (Laumond, 1971), la pression étant exprimée en Pa et la température en K.

La pression partielle de l'⁴He est pratiquement celle de l'⁴He pur, et $P_4 \sim 4.4 \times 10^4 \exp(-8 / T)$, dans les mêmes unités ; au-dessous de 1.1K, $P_3 > P_4$. Ces formules ne fournissent qu'un ordre de grandeur ; la figure II-15 représente la tension de vapeur mesurée expérimentalement (Wheatley, 1968 ; Laumond, 1971).

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

$$\dot{m} = A \sqrt{\frac{M}{2 \pi R T}} (P(T) - P_0)$$

où \dot{m} est le débit de masse à travers la surface A , $P(T)$ la tension de vapeur, P_0 la pression au-dessus du bain, et M la masse molaire.

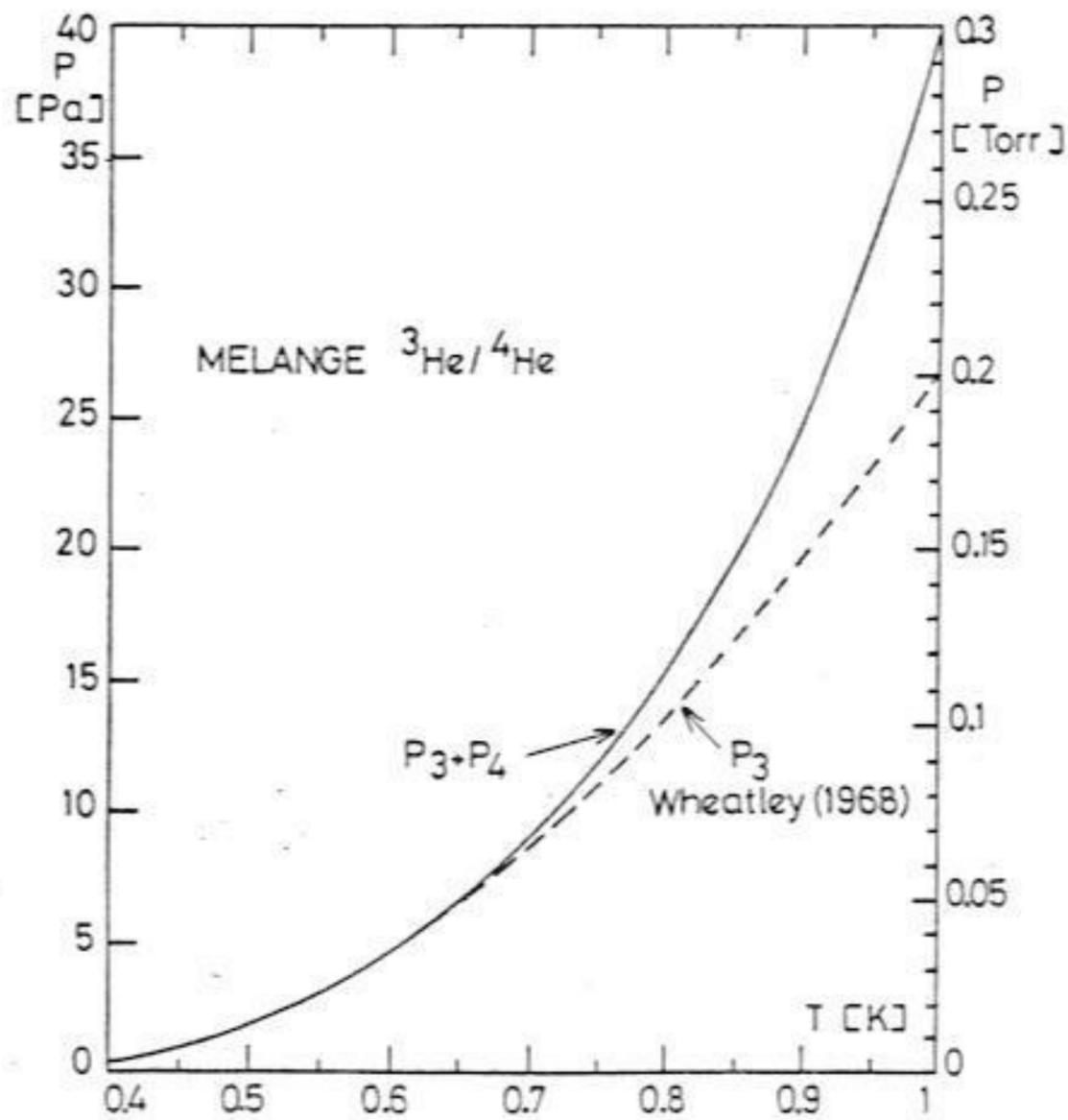


Fig. II-15 : Tension de vapeur du mélange dans l'évaporateur.

En pratique $P(T) - P_0 \ll P(T)$, et par conséquent $P(T) \approx P_0$. On constate en outre que même une surface d'évaporation de l'ordre des cm^2 est largement suffisante pour assurer des débits $\sim 10^{-3}$ moles/s ; la surface importante de l'évaporateur que nous employons n'a pour but que celui d'offrir un grand volume (donc une grande inertie thermique aux perturbations), sans augmenter la longueur de l'appareil.

Lorsque l'évaporateur fonctionne au-dessus de 0.6 K, la concentration molaire en ^4He augmentera rapidement ($\sim 12\%$ à 0.8 K), ainsi que le débit.

Un effet de nature différente augmente également la concentration en ^4He pour un évaporateur froid ($T < 0.6$ K) : le film d' ^4He superfluide (film de Rollin) qui remonte le long du tuyau de pompage est vaporisé et pompé avec l' ^3He .

Ce film a une vitesse pratiquement indépendante de la température entre 0.4 et 1 K. Le débit d' ^4He est proportionnel au périmètre mouillé ; sur l'acier inoxydable, $\dot{n} \sim 2.3 \times 10^{-5} D$ moles/s, où D est le diamètre du tuyau en cm.

Un diaphragme de diamètre $d < D$ permet de réduire les effets du film, mais constitue une impédance sur le système de pompage qui limite fortement le débit ($\dot{n}_3 \sim 50 \mu$ moles/s pour $D \sim 1.5$ mm à une température de 0.7 K, d'après Laumond, 1971).

En 1967, Bon Mardion et Keyston ont proposé de brûler le film avec une résistance chauffante, les vapeurs d' ^4He étant recondensées en dehors du tuyau de pompage. Ce système a été réalisé par Wheatley et al. (1969, 1971), avec d'excellents résultats à faible débit, où les problèmes associés au film sont importants. Nous avons utilisé ce type d'évaporateur sur le réfrigérateur de Bariloche.

Des évaporateurs plus performants à fort débit ont été mis au point par Frossati ; le modèle représenté sur la figure II-16 est une version améliorée de l'évaporateur de Pratt (1975) (Frossati, 1977 et 1978).

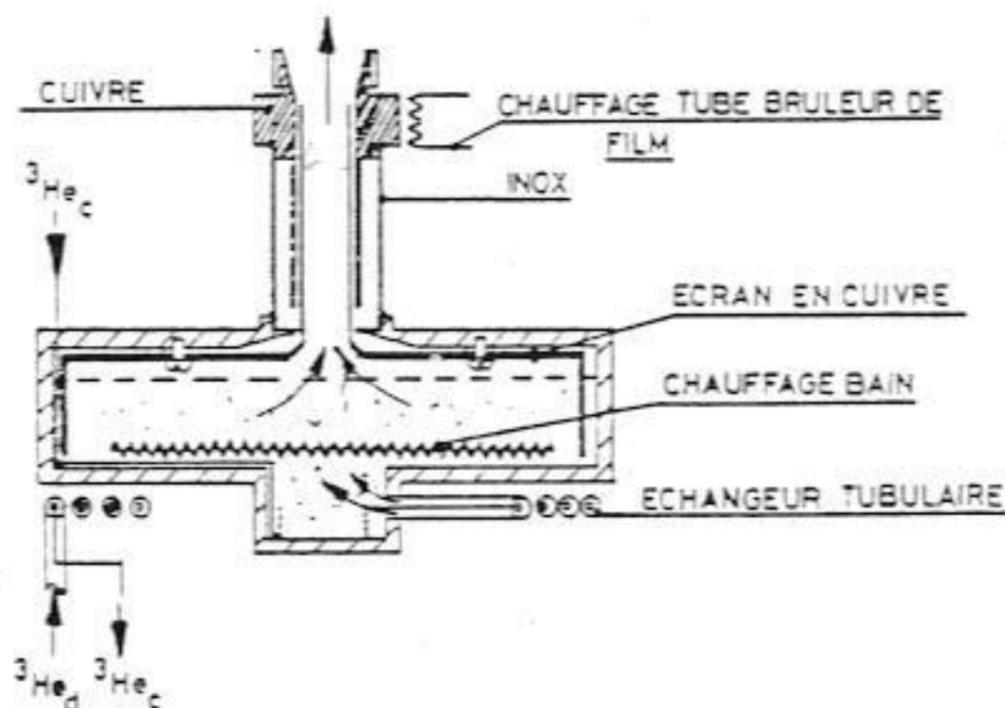


Fig. II-16 : Evaporateur.

Le film est brûlé sur la pièce en cuivre du dessus de l'évaporateur, isolée thermiquement du corps de l'évaporateur par un tube en inox. L'orifice de sortie du corps de l'évaporateur a des bords aigus, afin de minimiser l'épaisseur du film. Une cloche en cuivre permet de recondenser les vapeurs d' ^4He dans l'évaporateur, sans limiter le pompage de l' ^3He . On applique sur le brûleur de film la puissance minimum produi -

sant l'effet souhaité ($\sim mW$) ; l'évaporateur est amené à sa température de travail au moyen d'une résistance chauffante située dans le bain de l'évaporateur. Les meilleurs résultats sont obtenus avec un faible écart de température entre la résistance chauffante et le liquide, c-à-d d'une surface de contact importante.

L'influence du brûleur de film n'est observable qu'à des débits inférieurs à 2×10^{-4} moles/s. La température minimale des réfrigérateurs à dilution du type que nous décrivons étant atteinte pour des débits de 5×10^{-5} à 1.5×10^{-4} moles/s, ce type d'évaporateur est adapté à l'obtention de très basses températures.

Dans les cas où l'on recherche un pouvoir frigorifique important, donc un fort débit d' ^3He ($\dot{n}_3 > 3 \times 10^{-4}$ moles/s), le dispositif coupe-film est superflu, l'influence du film étant négligeable devant celle de la tension de vapeur de l' ^4He .

- Les échangeurs de chaleur

Le concentré, thermalisé sur l'évaporateur à environ 0.7 K, est prérefroidi par le dilué sortant de la boîte à mélange, dans les échangeurs. La circulation a lieu à contre-courant.

La température minimale de la boîte à mélange dépendra de l'efficacité des échangeurs, c-à-d de la qualité du contact thermique entre le concentré et le dilué. Le transfert de chaleur est limité par la résistance de Kapitza R_K (cf. appendice I). A hautes températures (HT = 20 mK à 1K), les surfaces nécessaires pour un bon échange thermique sont de l'ordre de 1 à 10^3 cm^2 ; au dessous de 20 mK (BT), elles dépassent le mètre carré.

Un échangeur est caractérisé par les surfaces d'échange du côté dilué (A_D) et du côté concentré (A_C) (en général $A_C = A_D$), par les températures d'entrée et de sortie de chaque côté (T_{ED}, T_{SC} ; T_{DC}, T_{SC}), par le débit d' ^3He \dot{n}_3 du réfrigérateur et par les dimensions géométriques des canaux où circule le mélange.

A basses températures, deux effets deviennent importants : l'échauffement du liquide par frottement visqueux, et la conduction thermique le long de l'échangeur, qui tend à le court-circuiter.

L'effet de la viscosité peut être décrit par les équations suivantes :

$\Delta P = Z\eta \dot{V}$, et $\dot{Q}_v = \dot{V} \Delta P = Z\eta \dot{V}^2$, où Z est l'impédance de l'échangeur, \dot{V} le débit volumique, η la viscosité, ΔP la différence de pression entre les extrémités de l'échangeur, pour un flux laminaire, et \dot{Q}_{visq} la puissance dissipée. Pour un tube de longueur L et de diamètre D , $Z = 128 L / \pi D^4$, et $Z = 12 L / AB^3$ pour un ca-

nal rectangulaire de largeur A et épaisseur B (A > B).

L'échauffement du liquide par ce processus se calcule simplement :

$$\Delta T = Z \eta \dot{V}^2 / \dot{n} C, \text{ où } C \text{ est la capacité calorifique par mole d}'^3\text{He.}$$

Avec les valeurs données au §III-A/a, on calcule le rapport des impédances Z_D / Z_C pour un échauffement ΔT du même ordre des deux côtés ; dans ce cas $Z_D / Z_C \sim 10$, ce qui implique un rapport de diamètres $D_D / D_C \sim 2$.

Le chauffage visqueux peut en principe être diminué en augmentant les dimensions D_D et D_C des canaux ; mais la conduction le long de l'échangeur devient alors importante, ce qui a pour résultat d'élever la température du côté froid. La puissance transmise s'écrit :

$$\dot{Q}_{\text{cond}} = \frac{A}{L} \int_{T_E}^{T_S} K(T, x_3) dT, \text{ où } A \text{ est la section, } L \text{ la longueur, } T_E \text{ et } T_S \text{ les températures d'entrée et de sortie de l'échangeur, et } K(T, x_3) \text{ la conductivité thermique du mélange.}$$

La construction d'un échangeur exige par conséquent de maximiser l'échange thermique en choisissant des dimensions de canaux résultant d'un compromis entre un faible chauffage par viscosité et une conduction thermique peu importante le long de l'échangeur. Ces effets dépendent de la température et de la concentration du mélange, qui varient à leur tour en fonction de la géométrie, des thermalisations et des apports de chaleur extérieurs ; mathématiquement, ces effets peuvent être décrits par deux équations différentielles couplées (Radebaugh et Siegwarth, 1970 et 1971 ; Laumoné, 1971) n'ayant pas de solution analytique dans le cas général. Deux approches peuvent être adoptées : le calcul simplifié de "l'échangeur continu parfait", et le calcul approché à l'ordinateur.

- L'échangeur continu parfait

Lorsque \dot{Q}_{cond} et \dot{Q}_{visq} peuvent être négligés devant \dot{Q}_{ech} (la puissance échangée à travers de l'échangeur), toute la chaleur fournie par le concentré est absorbée par le dilué.

Le transfert de chaleur $\Delta \dot{Q}$ par unité de surface $\Delta \sigma$ est donné par les expressions :

$$\frac{\Delta \dot{Q}}{\Delta \sigma_D} = \int_{T_D}^{T_P} \rho^{-1} dT \quad \text{et} \quad \frac{\Delta \dot{Q}}{\Delta \sigma_C} = \int_{T_P}^{T_C} \rho^{-1} dT$$

T_P est la température de la paroi séparant les 2 phases, T_C et T_D celles du concentré et du dilué, $\Delta \sigma_C$ et $\Delta \sigma_D$ les surfaces d'échange de chaque côté, et ρ_{K_C} et ρ_{K_D} les résistivités de Kapitza entre la paroi et chacune des phases (cf. appendice I).

En pratique les deux surfaces d'échange sont égales ($\sigma_C = \sigma_D$), ainsi que ρ_{KC} et ρ_{KD} : en effet, toutes les surfaces sont recouvertes d' ^4He (cf. chapitre V), même du côté concentré, et on doit employer les valeurs de σ_K mesurées dans la phase diluée. On obtient alors :

$$\frac{\Delta \dot{Q}}{\Delta \sigma} = \frac{1}{2} \int_{T_D}^{T_C} \rho_K^{-1} dT$$

L'hypothèse de l'échangeur parfait fournit la deuxième équation : la variation d'enthalpie par unité de temps de la phase concentrée entre deux points caractérisés par des abscisses x et $x + dx$ le long de l'échangeur doit être égale à la variation de la phase diluée entre ces points (en module), et égale à la puissance transférée par échange :

$$-dH_C / dt = dH_D / dt = \frac{\Delta \sigma}{2} \int_{T_D}^{T_C} \rho_K^{-1} dT$$

Or $dH_C = n_3 C_{3C} dT_C$ et $dH_D = n_3 C_{3D} dT_D$, C_{3C} et C_{3D} étant les capacités calorifiques par mole d' ^3He ; l'élément de surface d'échange peut s'écrire $\Delta \sigma = m dx$, où m est la "largeur" et dx l'élément de longueur de l'échangeur. On obtient 2 équations :

$$-n_3 C_{3C} \frac{dT_C}{dx} = n_3 C_{3D} \frac{dT_D}{dx} = \frac{m}{2} \int_{T_D}^{T_C} \rho_K^{-1} dT$$

Au-dessus de 10 mK, $\rho_K^{-1} = \alpha T^3$; au-dessous de 10 mK, la dépendance en température est $\rho_K^{-1} = \alpha' T^2$ (cf. appendice I).

Dans le premier cas :

$$-n_3 C_{3C} \frac{dT_C}{dx} = n_3 C_{3D} \frac{dT_D}{dx} = \frac{m\alpha}{8} (T_C^4 - T_D^4)$$

où T_C et T_D sont des fonctions de x ; $C_{3C} = aT \approx 24 T \text{ J/mole } ^3\text{He} \cdot \text{K}$ et $C_{3D} = bT \approx 108 T \text{ J/mole } ^3\text{He} \cdot \text{K}$ (cf. § II A-a).

En pratique $T_D^4 \ll T_C^4$, et on néglige ce terme ; on intègre le long de l'échangeur ; si les températures d'entrée et de sortie de chaque côté sont T_{EC} , T_{SC} , T_{ED} , T_{SD} :

$$\text{l'équation sur } T_C \text{ se réduit à } T_{SC}^{-2} - T_{EC}^{-2} = \frac{m\alpha \Delta x}{4n_3 a}$$

En négligeant T_{EC}^{-2} devant T_{SC}^{-2} ($T_{EC} \gg T_{SC}$), et en remplaçant $m \Delta x$ par σ , la surface totale de l'échangeur, on obtient :

$$T_{SC}^2 = \frac{4 n_3 a}{\sigma \alpha} = \frac{96}{\alpha} \frac{n_3}{\sigma}$$

($T > 10 \text{ mK}$) ; $\alpha \sim 50 \text{ W/K}^4\text{m}^2$ pour les métaux en contact avec les mélanges.

c-à-d la température à laquelle le concentré sort de l'échangeur, en ne considérant que la partie qui fonctionne au-dessus de 10 mK.

Si l'on ajoute des échangeurs à plus basses températures, le calcul doit être effectué avec la résistance de Kapitza $\rho_K^{-1} = \alpha' T^2$; dans ce cas :

$$-\dot{n}_3 C_{3C} \frac{dT_C}{dx} = \dot{n}_3 C_{3D} \frac{dT_D}{dx} = \frac{m \alpha'}{6} (T_C^3 - T_D^3)$$

on néglige T_D^3 devant T_C^3 , et en intégrant sur x :

$$T_{SC}^{-1} - T_{EC}^{-1} = \frac{m \alpha' \Delta x}{6 \dot{n}_3 a} = \frac{\sigma \alpha'}{6 \dot{n}_3 a}$$

Si T_{EC} est plus grand que T_{SC} :

$$T_{SC} = \frac{6 \dot{n}_3 a}{\sigma \alpha'} = \frac{144 \dot{n}_3}{\alpha' \sigma}$$

($T < 10$ mK) ; $\alpha' \sim 7 \times 10^{-2} \text{ W/K}^3 \text{ m}^2$ (argent en contact avec les mélanges.)

Température de la boîte à mélange

La puissance frigorifique du processus de réfrigération est :

$$\dot{Q}_F = \dot{n}_3 (H_C - H_D)$$

Les entrées de chaleur sont dues à des sources externes (\dot{Q}) d'une part, et au refroidissement de l' ^3He arrivant du dernier échangeur à une température T_E (température d'entrée du concentré dans la boîte à mélange, dont la température est notée T_{BM}) : $\dot{Q}_E = \dot{n}_3 (H_C(T_E) - H_C(T_{BM}))$.

A l'équilibre $\dot{Q}_F = \dot{Q} + \dot{Q}_E$ soit $\dot{n}_3 (H_C(T_{BM}) - H_D(T_{BM})) = \dot{Q} + \dot{n}_3 (H_C(T_E) - H_C(T_{BM}))$

$$\dot{Q} = \dot{n}_3 (H_D(T_{BM}) - H_C(T_E)) = \dot{n}_3 (94.5 T_{BM}^2 - 12.5 T_E^2)$$

(les valeurs d'enthalpie sont données au § II-B-a).

Lorsque \dot{Q} est important (chauffage externe, ou bien chauffage visqueux et conduction pour $T \lesssim 5$ mK), $T_{BM} \sim T_E$, et la puissance frigorifique devient $\dot{Q} = 82 T_{BM}^2 \dot{n}_3$.

Si $\dot{Q} = 0$ (entrées de chaleur négligeables), on obtient $\frac{T_E}{T_{BM}} = 2.75$

Or on connaît la température d'entrée : c'est celle de sortie du dernier échangeur, donné par la formule (voir pages précédentes).

$$T_E^2 = \frac{96 \dot{n}_3}{\alpha \sigma}$$

Ainsi $T_{BM}^2 = 1.06 \times 10^{-2} \left(\frac{\dot{Q}}{\dot{n}_3} + \frac{12.7}{\alpha} \right) \frac{\dot{n}_3}{\sigma}$

formule valable pour Q sur la BT, avec TE pour modifier en fait sur valable pour T < 3TE en

σ étant la surface totale d'échange, $\alpha \equiv (R_K T^3)^{-1}$.

Le débit produisant la température minimale est donné par $\frac{\partial T_{BM}^2}{\partial \dot{n}_3} = 0$, soit :

$$\dot{n}_3 \text{ opt} = \left(\frac{\sigma \alpha \dot{Q}}{1200} \right)^{1/2}$$

NB: *En fait Q = constante + constante x n ; dans cette formule Q représente l'entrée de chaleur indépendante des débits. A fort débit, le deuxième terme est dominant.*
 Pour $\sigma \sim 150 \text{ m}^2$, $\alpha = 4.2 \text{ W / K}^2 \text{ m}^2$ et $\dot{Q} \sim 50 \text{ W}$ on obtient $\dot{n}_3 \text{ opt} \sim 160 \text{ } \mu\text{moles / s}$, une valeur en accord avec nos mesures.

Avec l'expression de $\dot{n}_3 \text{ opt}$ on calcule la valeur minimale de T_{BM} :

$$T_{BM} = 0.86 \left(\frac{\dot{Q}}{\sigma \alpha} \right)^{1/4}$$

On obtient, avec les valeurs des paramètres utilisées précédemment, $T_{BM} \sim 2.6 \text{ mK}$; les valeurs mesurées ($T_{BM} \sim 2 \text{ à } 3 \text{ mK}$) sont par conséquent en bon accord avec ces estimations.

Ces expressions ne fournissent aucun renseignement sur la dimension des canaux dans les échangeurs. Radebaugh et Siegwarth (1970, 1971) et Frossati (1978) ont effectué des calculs à l'ordinateur déterminant la température des échangeurs et de la boîte à mélange, la surface d'échange nécessaire, et la taille des canaux. Cette méthode a été employée pour le calcul des échangeurs des réfrigérateurs à dilution de Grenoble.

Nous proposons un calcul simplifié de la taille des canaux :

- Calcul de la taille des canaux des échangeurs basses températures :

L'échauffement visqueux est donné par l'expression :

$$\dot{Q}_{\text{visq}} = Z \eta \dot{v}^2 = \frac{128}{\pi D^4} \eta \dot{n}^2 v^2 \equiv \frac{a}{D^4}$$

*Canal rectang long A ép B
Z = 12L / AB^3*

La puissance conduite le long de l'échangeur est :

$$\dot{Q}_{\text{cond}} = \frac{\pi D^4 b}{4 l} K \Delta T = b D^2$$

Les grandeurs intervenant dans ces formules ont été définies précédemment ; l est la longueur de l'échangeur.

La puissance totale est $\dot{Q}_T = \dot{Q}_{visq} + \dot{Q}_{cond} = \frac{a}{D^4} + b D^2$, et présente un minimum pour :

$$D_0 = \sqrt[6]{\frac{2a}{b}}$$

Aux plus basses températures, les effets de viscosité et de conduction sont importants, et il s'avère nécessaire de garder des dimensions voisines de D_0 . En tenant compte de la variation de K et η à basses températures :

$$\text{Côté concentré} : K_C = \frac{3.5 \times 10^{-4}}{T} \text{ W/K.m} \equiv \frac{\bar{K}_C}{T}$$

$$\eta_C = \frac{1.83 \times 10^{-7}}{T^2} \text{ N}_S/\text{m}^2 \equiv \frac{\bar{\eta}_C}{T^2}$$

$$\text{Côté dilué} : K_D = \frac{2.4 \times 10^{-4}}{T} \text{ W/K.m} \equiv \frac{\bar{K}_D}{T}$$

$$\eta_D = \frac{0.5 \times 10^{-7}}{T^2} \text{ N}_S/\text{m}^2 \equiv \frac{\bar{\eta}_D}{T^2}$$

et les équations précédentes deviennent :

$$\dot{Q}_{visq}^C = \frac{128 l}{\pi D^4} \frac{\bar{\eta}_C}{T^2} \dot{n}^2 v_C^2$$

$$\dot{Q}_{cond}^D = \frac{\pi D^4}{4 l} \frac{\bar{K}_C}{T} \Delta T$$

Le diamètre optimum est alors :

$$D_0^C = \left[104 \frac{\bar{\eta}_C l^2 \dot{n}^2 v_C^2}{\bar{K}_C T \Delta T} \right]^{1/6}$$

On peut obtenir une valeur indépendante de ΔT en remarquant que ΔT est de l'ordre de $T/2$ pour un échangeur ; cette hypothèse simplificatrice ne diminue pas la précision du calcul de façon significative ; du fait de la variation en puissance $1/6$ de D_0 , une incertitude sur $\frac{\Delta T}{T}$ d'un facteur 2 ne modifie D_0 que de 12%.

étant donné l'imprécision sur les autres variables (η, k, \dots)

Ainsi :

$$D_0^C = \left[\frac{208 \bar{n}_C l^2 \dot{n}^2 v_C^2}{\bar{k}_C T^2} \right]^{1/6} = 2.30 \times 10^{-2} \left[\frac{l \dot{n}}{T} \right]^{1/3}$$

Les expressions étant analogues du côté dilué :

$$D_0^D = \left[\frac{208 \bar{n}_D l^2 \dot{n}^2 v_D^2}{\bar{k}_D T^2} \right]^{1/6} = 4.47 \times 10^{-2} \left[\frac{l \dot{n}}{T} \right]^{1/3}$$

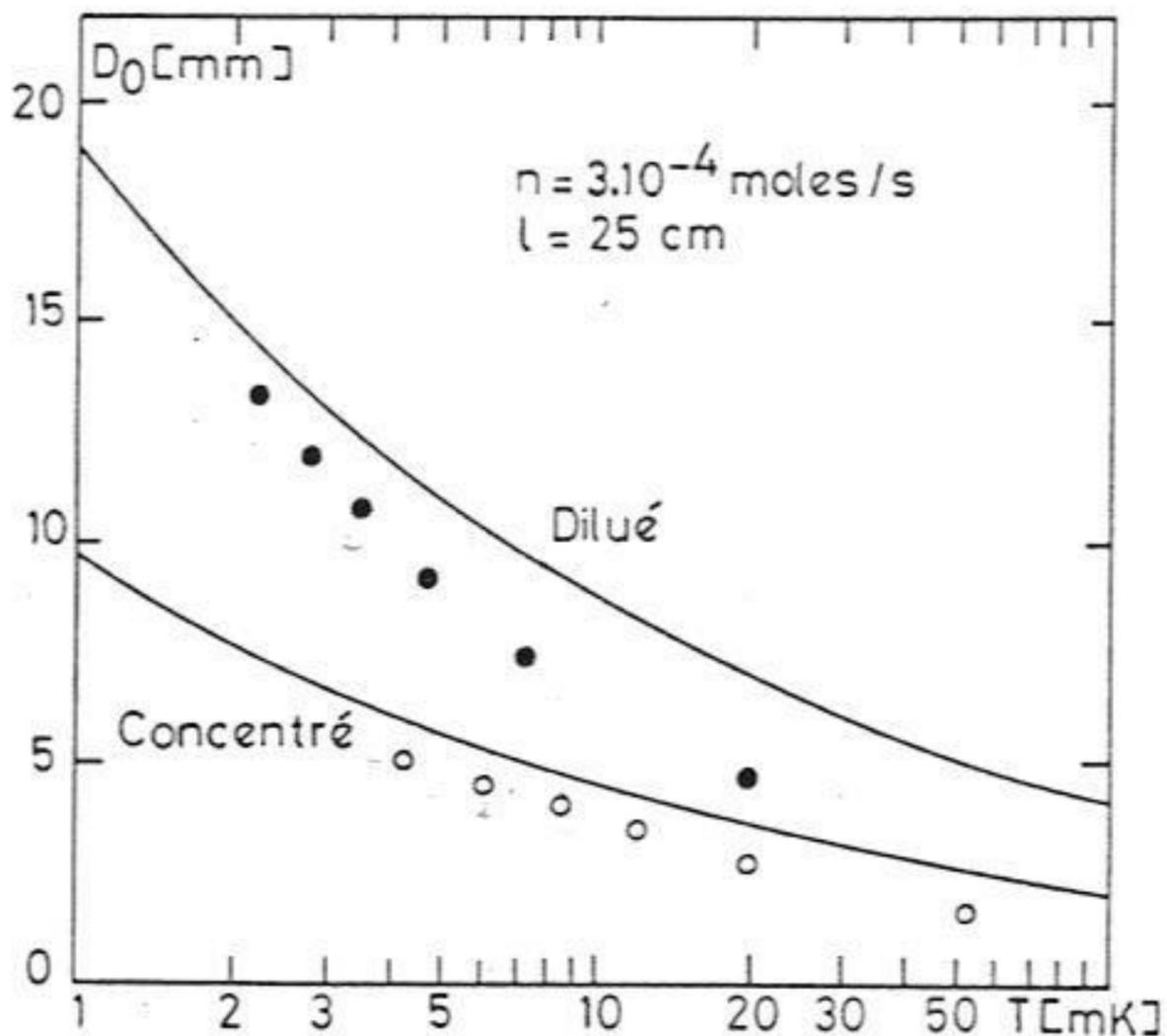


Fig. II-17 : Exemple de calcul du diamètre des canaux avec les formules ci-dessus. Les points représentent les résultats de Frossati et al. (1978).

Le graphe II-17 représente la variation du diamètre optimum avec la température ; les valeurs sont en excellent accord avec celles calculées à l'ordinateur. En pratique, cependant, on adopte (pour minimiser la quantité d' ^3He) des dimensions légèrement inférieures, surtout au-dessus de 10 mK, la puissance $\dot{Q}_T = \dot{Q}_{\text{visq}} + \dot{Q}_{\text{cond}}$ étant alors très inférieure à celle qui est échangée entre les deux phases (voir table II-1, Frossati et al. 1978 ; les points expérimentaux sur la figure II-17 correspondent à cette table, c-à-d au réfrigérateur à dilution que nous avons employé). Aux plus basses températures, il est nécessaire de respecter strictement les valeurs de D_0^C et D_0^D , la puissance transférée entre les deux phases étant de l'ordre de $\dot{Q}_{\text{cond}} + \dot{Q}_{\text{visq}}$.

Taille des canaux à haute température :

A haute température ($T \gtrsim 20$ mK) les effets de conduction ou de viscosité produisent un chauffage négligeable par rapport à la puissance transférée entre les deux côtés de l'échangeur. Il est donc possible de réduire les diamètres des canaux en dessous de la valeur "optimum" D_0 .

D'autres problèmes surgissent alors, mis en évidence par une expérience réalisée par Frossati : en intercalant un tube de 0.5 mm de diamètre sur la partie haute température ($T \sim 300$ mK) de l'échangeur continu, côté dilué (dont le diamètre original est de 1 mm), le débit décroît fortement ($\sim 300 \mu\text{ moles/s} \rightarrow \sim 50 \mu\text{ moles/s}$). Une impédance de même valeur, mais longue et de fort diamètre, ne perturbe pas le débit. Ainsi, le diamètre est le paramètre important pour déterminer le débit des quasiparticules d' ^3He dans le superfluide (Frossati et al. 1978).

Nous pensons que l'effet est dû au couplage entre les quasiparticules d' ^3He et les excitations élémentaires de l' ^4He , phonons et rotons ("vent de phonons" ou "heat flush").

Il est donc particulièrement important d'éviter de créer des réductions de diamètre au-dessous d'un millimètre environ, du côté dilué.

Le côté concentré ne pose pas de problèmes particuliers (voir paragraphe suivant).

L'échangeur continu haute température :

Le concentré circule dans un tube en cuivre-nickel de diamètre intérieur 0.2 mm, diamètre extérieur 0.5 mm et longueur 1.5 m, enroulé préalablement en spirale sur une tige de diamètre ~ 2.5 mm. Celui-ci est suivi d'un deuxième tube, en laiton, enroulé également au préalable en spirale sur une tige d'acier de 2 mm de diamètre, de façon à aplatir le tube. (Cette opération est effectuée sur un tour). On obtient ainsi une

surface d'échange importante pour un faible volume d' ^3He . Le tube en laiton a une longueur de 5 m, un diamètre intérieur de 1.5 mm, et un diamètre extérieur de 2 mm. Après l'enroulement, le diamètre de la spirale est de l'ordre de 3.8 mm.

L'ensemble est glissé dans un tube en cuivre-nickel de diamètre intérieur de 4 mm, de diamètre extérieur de 4.5 mm enroulé en spirale sur un diamètre de l'ordre de 10 cm, destiné à la circulation du dilué. $l \sim 1.60 \text{ m}$

Des tubes en Cu-Ni raccordent l'échangeur continu à l'injection, à l'évaporateur, et aux échangeurs "basses températures".

La surface de ce type d'échangeurs est $\sigma \approx 250 \text{ cm}^2$. Avec les formules obtenues précédemment, la température de sortie du concentré est :

$$T_{\text{SC}}^2 = \frac{96}{\alpha} \frac{\dot{n}_3}{\sigma}$$

avec $\alpha \approx 160 \text{ W / K}^4 \text{ m}^2$ (valeur que nous obtenons typiquement)

$$\Rightarrow T_{\text{SC}} \approx 50 \text{ m K} \quad \text{pour} \quad \dot{n} \approx 100 \text{ moles / s}$$

$$\text{et } T_{\text{SC}} \approx 85 \text{ m K} \quad \text{pour} \quad \dot{n} \approx 300 \text{ moles / s}$$

Les échangeurs "basses températures" :

Au-dessous de ces températures, une surface importante est nécessaire pour assurer le transfert thermique (cf. Appendice I), et l'on a recours à des échangeurs en poudre d'argent frittée.

Plusieurs centaines de m^2 seront nécessaires pour atteindre des températures $\sim 2 \text{ m K}$, répartis en général en 6 ou 7 échangeurs afin de respecter les diamètres de canaux calculés.

Nous avons employé les poudres suivantes :

- "française" : Paillette d'argent XRP 5 - Comptoir Lyon Allemand-Louyot
13 rue Montmorency - Paris.

. Taille de grains $\lesssim 1 \mu$.

. Surface spécifique obtenue par BET $\sim 0.1 \text{ m}^2 / \text{g}$.

. Résistance de Kapitza : $\rho_K = 4 \times 10^{-2} \text{ T}^{-3} \text{ K}^4 \text{ m}^2 / \text{W}$
soit $\alpha = (4 \times 10^{-2})^{-1} = 25 \text{ W / K}^4 \text{ m}^2$

- "Japonaise de 700 Å" : Ultrafine Ag Powder, 700 Å.

Ulvac, Vacuum Metallurgical Co. Ltd.

Shonan Bldg. n° 14 - 10 1 - Chome, Chuo-ku, Tokyo.

- . Surface spécifique : $1.8 \text{ m}^2 / \text{g}$ pour un facteur de remplissage de 50 %, et après dégazage.
- . Résistance de Kapitza : $\rho_K = 0.24 \text{ T}^{-3} \text{ K}^4 \text{ m}^2 / \text{W}$
($T > 10 \text{ mK}$)
soit $\alpha' = 7.1 \times 10^{-2} \text{ W} / \text{K}^4 \text{ m}^2$

- "Japonaise de 400 Å" : mêmes références que l'antérieure.

- . Surface spécifique : $2.2 \text{ m}^2 / \text{g}$.

Procédure de frittage :

La poudre japonaise est comprimée à température ambiante au taux de compactage de 50 % au moyen d'une presse ($500 \text{ kg} / \text{cm}^2$), dans un moule ayant la forme souhaitée pour le fritté. On obtient ainsi une éponge d'argent fragile mais rigide. Celle-ci est placée dans un moule muni d'un piston ; l'ensemble est serré par des boulons ; des rondelles de pression assurent l'uniformité et la maintien de la pression malgré la contraction de la poudre pendant le frittage. On peut également employer des pistons en Teflon, qui se dilatent au chauffage.

Le montage est placé dans une étuve, sous hydrogène, et chauffé à environ 200°C pendant 40 mm (ces conditions ne sont pas critiques). Le moule est ensuite refroidi à l'air comprimé.

L'adhérence du fritté sur un substrat autre que l'argent peut poser des problèmes ; un traitement de dorure, puis argenture du substrat, ainsi qu'une fine couche de poudre "française" permettent un excellent frittage de la poudre japonaise sur le Cu-Ni ou l'inox.

La poudre française fritte bien mieux ; la procédure est similaire à celle que nous venons de décrire.

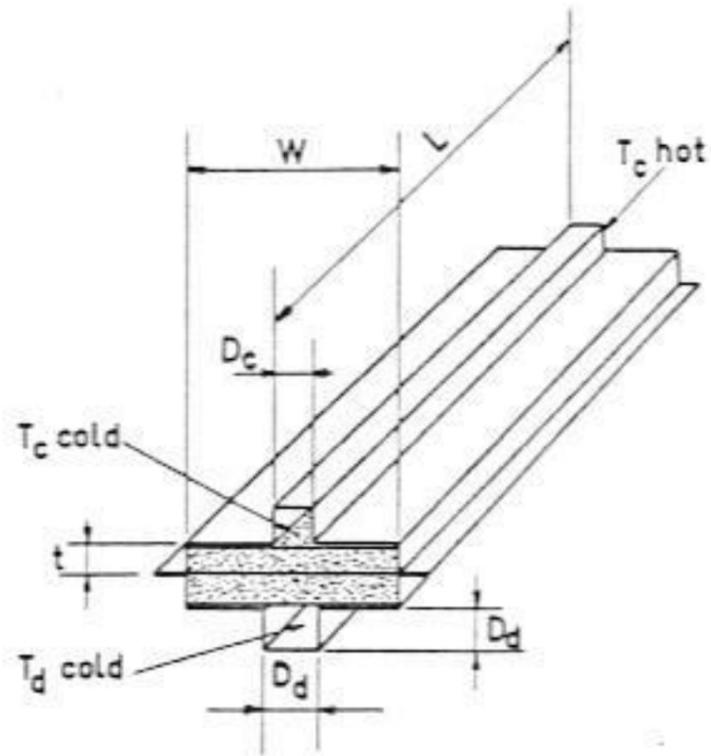
La figure II-18 représente quelques échangeurs de ce type, conçus par Frossati (thèse, 1978). Nous avons surtout travaillé sur le modèle "carré", au niveau de la réalisation ; nous avons participé aux essais des nombreux modèles suivants. Tous les modèles sont caractérisés par un "canal" central ; cette géométrie favorise l'échange thermique, et minimise le chauffage visqueux et la conduction.

Calcul des échangeurs "basses températures" :

Nous décrivons une méthode simple permettant de calculer les échangeurs ; l'incertitude importante sur plusieurs paramètres (surface réelle, résistance de Kapitza, conduction, viscosité, etc...) justifie cette approche, fondée sur l'échangeur continu



Fig. II-18 : Echangeurs "Basses Températures" ; ci-dessus : modèle "circulaire" ; ci-dessous, modèle "carré".



parfait.

La longueur de chaque échangeur est déterminée par le diamètre du calorimètre, et se situe dans la gamme 10 - 30 cm.

La largeur est en général ~ 2 cm, afin de maintenir le mélange situé dans le fritté au voisinage de celui qui circule dans le canal (voir figure II-18). L'épaisseur du fritté est de l'ordre de 1 à 2 mm ; une valeur supérieure pourrait poser des problèmes de conduction thermique dans le fritté.

Nous décrivons le calcul d'échangeurs correspondant à un réfrigérateur destiné à l'obtention des températures les plus basses, c-à-d fonctionnant à son débit optimum. Des calculs similaires peuvent être effectués pour d'autres besoins (forts débits, compromis débit-température, etc...).

- On fixe la température minimale souhaitée : par exemple, $T_{BM} = 2$ mK, ce qui détermine la surface d'échange nécessaire.

$$T_{BM} = 0.86 \left(\frac{\dot{Q}}{\sigma \alpha} \right)^{1/4} \quad \text{au débit } \dot{n}_3 \text{ opt}$$

$$\text{Ainsi } \sigma = \left(\frac{0.86}{T_{BM}} \right)^4 \frac{\dot{Q}}{\alpha}$$

$$\text{En pratique } \dot{Q} \sim 50 \text{ nW} \quad \text{et} \quad \alpha = 4.2 \text{ W / K}^4\text{m}^2 \quad \rightarrow \quad \sigma \sim 400 \text{ m}^2$$

$$\text{et } \dot{n}_3 \text{ opt} = \left(\frac{\sigma \alpha \dot{Q}}{1200} \right)^{1/2} \sim 180 \mu \text{ moles / s.}$$

Ces valeurs dépendent fortement de \dot{Q} , et ne sont par conséquent qu'estimatives. La température d'entrée du concentré dans la boîte à mélange est alors calculée :

$$T_E^2 = \frac{96 \dot{n}_3}{\alpha \sigma}$$

soit, dans cet exemple, $T_E = 3.21$ mK ; le rapport $\frac{T_E}{T_{BM}} = 1.6$, inférieur à 2.75 à cause des entrées de chaleur \dot{Q} non nulles ; T_E ne dépend que faiblement de \dot{Q} .

Evidemment, pour des valeurs de \dot{Q} plus élevées $T_{BM} \sim T_E$, et celles-ci sont directement fixées par \dot{n}_3 et \dot{Q} : $\dot{Q} = 82 T_{BM}^2 \dot{n}_3$; le réfrigérateur calculé ici remontera facilement vers 3 mK sous l'effet de pertes très faibles.

- On détermine la géométrie des échangeurs.

La largeur du fritté de l'échangeur (u) est de l'ordre de 2 cm (voir pages précédentes), et son épaisseur $e \sim 0.18$ cm. Le volume total V_T est fixé par la surface totale σ et la surface spécifique de la poudre : $\sigma_g \sim 1.8 \text{ m}^2 / \text{g}$ pour la poudre japonaise, soit, avec un taux de compactage de 50 %, $\sigma_V \sim 9 \text{ m}^2 / \text{cm}^3$.

Pour 400 m^2 , le volume est de 44 cm^3 de fritté (220 g de poudre), la longueur totale du fritté est donc $l = \frac{V}{u.e} \approx 120 \text{ cm}$.

Cette longueur est divisée en éléments, dont le nombre est fixé par la place disponible dans le calorimètre.

Nous choisissons par exemple 6 éléments de 20 cm de longueur, et de surface 67 m^2 .

- Calcul des tailles de canaux et des températures.

Afin d'estimer la taille des canaux avec les formules données précédemment, il est nécessaire de connaître la température de chaque échangeur.

La température du concentré à la sortie du continu est soit connue expérimentalement, à la suite d'un essai avec cet échangeur uniquement, soit calculée de la façon indiquée plus haut :

$$T_{SC}^2 = \frac{96}{\alpha} \frac{\dot{n}_3}{\sigma}$$

dans le cas du continu, nous avons $\alpha \approx 160 \text{ W} / \text{K}^4 \text{ m}^2$, et $\sigma \approx 0.025 \text{ m}^2$.

Pour $\dot{n}_3 \text{ opt} \approx 180 \mu \text{ moles} / \text{s}$:

$$T_{SC} \approx 66 \text{ mK}$$

Pour le 1^{er} échangeur Ag : Côté concentré : $T_E = 66 \text{ mK}$ et $T_S^2 - T_E^2 = \frac{\alpha \sigma}{96 \dot{n}_3}$
avec $\alpha = 4.2 \text{ W} / \text{K}^4 \text{ m}^2$ et $\sigma = 67 \text{ m}^2$ soit $T_S = 7.8 \text{ mK}$.

Le diamètre du canal optimum est $D_O^C \approx 2.3 \times 10^{-2} \left(\frac{1}{T} \dot{n} \right)^{1/3}$; en fait les effets de viscosité et conduction sont peu importants à ces températures, relativement élevées ; il suffit de considérer $\bar{T} \approx 20 \text{ mK}$, ce qui implique, pour $L = 0.20 \text{ m}$ et $\dot{n} = 180 \mu \text{ moles} / \text{s}$:

$$\underline{D_O^C = 2.8 \text{ mm}}$$

2^e échangeur argent, côté concentré : $T_E = 7.8 \text{ mK}$; on calcule de même : $T_S = 5.5 \text{ mK}$
et $D_O^C = 4.0 \text{ mm}$.

3^e échangeur : $T_E = 5.5 \text{ mK}$; $T_S = 4.5 \text{ mK}$; $D_O^C = 4.4 \text{ mm}$.

4^e échangeur : $T_E = 4.5 \text{ mK}$; $T_S = 3.9 \text{ mK}$; $D_O^C = 4.7 \text{ mm}$.

5^e échangeur : $T_E = 3.9 \text{ mK}$; $T_S = 3.5 \text{ mK}$; $D_O^C = 4.9 \text{ mm}$.

6^e échangeur : $T_E = 3.5 \text{ mK}$; $T_S = 3.2 \text{ mK}$; $D_O^C = 5.1 \text{ mm}$.

On obtient bien la température d'entrée dans la boîte à mélange ~ 3.2 mK calculée au départ.

Il est possible de calculer les températures du côté dilué en résolvant les équations obtenues précédemment, pour pouvoir ensuite calculer les diamètres de canaux correspondants. Une démarche plus simple peut être suivie, fondée sur l'observation suivante, due à Frossati : la température froide du côté dilué d'un échangeur est égale à la température froide du côté concentré divisée par 2.75 : physiquement, cela revient à dire que chaque échangeur fonctionne comme si les échangeurs suivants étaient remplacés par une boîte à mélange (dans ce cas $\frac{T_E}{T_{BM}} = 2.75$, et le dilué sort à T_{BM}).

Ainsi, en chaque point d'un échangeur, le rapport des températures du concentré et du dilué est $T_C / T_D = 2.75$.

La taille des canaux est donnée par les formules :

$$\text{côte Concentré} : D_O^C = 2.3 \times 10^{-2} \left(\frac{1}{T} \dot{n}_3 \right)^{1/3}$$

$$\text{côte Dilué} : D_O^D = 4.47 \times 10^{-2} \left(\frac{1}{T} \dot{n}_3 \right)^{1/3}$$

$$\text{Ainsi } D_O^D / D_O^C = 1.94 \left(\frac{T_C}{T_D} \right)^{1/3}$$

$$\text{soit } \boxed{D_O^D / D_O^C = 2.7}$$

La dépendance en puissance 1/3 rend la supposition $T_C / T_D \sim 2.75$ peu critique aux effets de ce calcul, sauf aux plus basses températures, où sous l'effet des apports de chaleur T_E devient de l'ordre de T_{BM} .

Dans ce cas on obtient aisément :

$$\boxed{T_E / T_{BM} = 2.75 \left(\frac{1}{1 + 8.35 \times 10^{-4} \frac{\dot{Q} \alpha \sigma}{\dot{n}_3^2}} \right)^{1/2}}$$

Appliquée au réfrigérateur complet, on obtient pour l'exemple considéré : $T_E / T_{BM} = 1.6$, la valeur calculée précédemment. On peut également l'appliquer à la sortie de chaque échangeur, comme s'il y avait une boîte à mélange à cet endroit ; la surface σ est alors la somme des surfaces jusqu'à cet échangeur compris, à partir des hautes températures.

On obtient ainsi T_D / T_C , le rapport des températures entre les deux côtés (celui-ci tend évidemment vers 2.75 pour les premiers échangeurs) ; on calcule alors T_D et D_O^D à partir des valeurs T_C et D_O^C obtenues précédemment, ce qui nous permet de compléter le tableau suivant :

ECHANGEUR	σ (m ²)	COTE CONCENTRE			COTE DILUE			
		T_{Ch} (m K)	T_F (m K)	D_O^C (mm)	T_C/T_D	T_{Ch} (m K)	T_F (m K)	D_O^D (mm)
1	67	66	7.8	2.8	2.4	27.5	3.5	7.3
2	67	7.8	5.5	4.0	2.1	3.5	2.7	9.9
3	67	5.5	4.5	4.4	1.9	2.7	2.4	10.5
4	67	4.5	3.9	4.7	1.8	2.4	2.2	11.0
5	67	3.9	3.5	4.9	1.7	2.2	2.1	11.5
6	67	3.5	3.2	5.1	1.6	2.1	2.0	12.0

$\dot{n} = 180 \mu$ moles / s $T_{BM} = 2$ mK avec $\dot{Q} \approx 100$ nW (conduction et viscosité inclus) ; $T_{Ch} \equiv$ côté chaud ; $T_F \equiv$ côté froid.

→ - le premier échangeur est bien moins efficace en pratique, à cause de la mauvaise conduction thermique de l'³He dans l'argent fritté.
 N.B : - T_F d'un échangeur est égal à T_{Ch} du suivant ; des petites différences apparaissent lors du calcul du côté dilué, dues au fait qu'on emploie des valeurs "discrètes" de T_C / T_D ; nous avons moyenné ces valeurs pour établir cette table.

- La taille des canaux pour $T < 5$ mK a une valeur pratiquement constante : la température varie peu dans les derniers échangeurs.

- Nous avons employé les formules correspondant à une résistance de Kapitza variant en T^{-3} ; le même calcul peut être effectué avec celles que nous avons déduites dans le cas où $R_K \propto T^{-2}$. L'accord avec les mesures est alors meilleur pour $T < 10$ mK.

Comme tous les calculs concernant les réfrigérateurs à dilution, celui-ci implique de nombreuses approximations ; en particulier, on ne connaît pas exactement la distribution des entrées de chaleur, ni la répartition du flux de chaleur généré par la viscosité.

Cependant, il a l'avantage de tenir compte du fait que la température du concentré est inférieure à 2.75 fois celle du dilué (ceci étant fondamental aux plus basses températures), et de fournir un moyen très simple de calculer le réfrigérateur, d'analyser ses performances, et de l'améliorer.

En effet, il convient de n'ajouter les derniers échangeurs qu'une fois que l'on connaît les résultats des premiers ; on peut ainsi déterminer les paramètres du calcul avec plus de précision, et optimiser les derniers échangeurs, les plus importants.

- Système de Pompage

Le débit d' ^3He dans le réfrigérateur peut être limité au niveau de la partie haute température de l'échangeur continu, côté dilué (voir § précédents). Si le diamètre des échangeurs est correctement calculé, la principale limitation provient du système de pompage.

Le débit se calcule alors en tenant compte des caractéristiques de la pompe (vitesse de pompage), de la pression dans l'évaporateur (fixée par sa température), et de la perte de charge dans les lignes.

La conductance des lignes de pompage dépend de la température ; ainsi :

$$C = \alpha \frac{D^3}{L} \sqrt{T} J \quad \begin{array}{l} \alpha = 2.2 \text{ (} ^3\text{He)} \\ \alpha = 1.9 \text{ (} ^4\text{He)} \end{array}$$

C = conductance en l/s ; D = diamètre de ligne, et L = longueur exprimée en cm ; T est la température en K.

Le facteur J dépend du régime (visqueux ou moléculaire) ; il est obtenu à partir de la figure II-19, calculée par Gianèse, en fonction de $x = \frac{D \bar{P}}{T^{1.147}}$, où \bar{P} est la pression moyenne en torr.

La perte de charge sur une ligne à température variable est alors fournie par l'expression :

$$\Delta P \text{ (torr)} = 6.24 \times 10^{-5} \dot{n} \left[\mu\text{moles/s} \right] \sum_i \frac{T_i \text{ K}}{C_i \text{ l/s}}$$

$$\text{soit } \Delta P = 6.24 \times 10^{-5} \dot{n} \sum_i \frac{\sqrt{T_i} L}{\alpha D^3 J}$$

Une description détaillée est donnée par Laumond (thèse, 1972), et Schumacher (thèse, 1978).

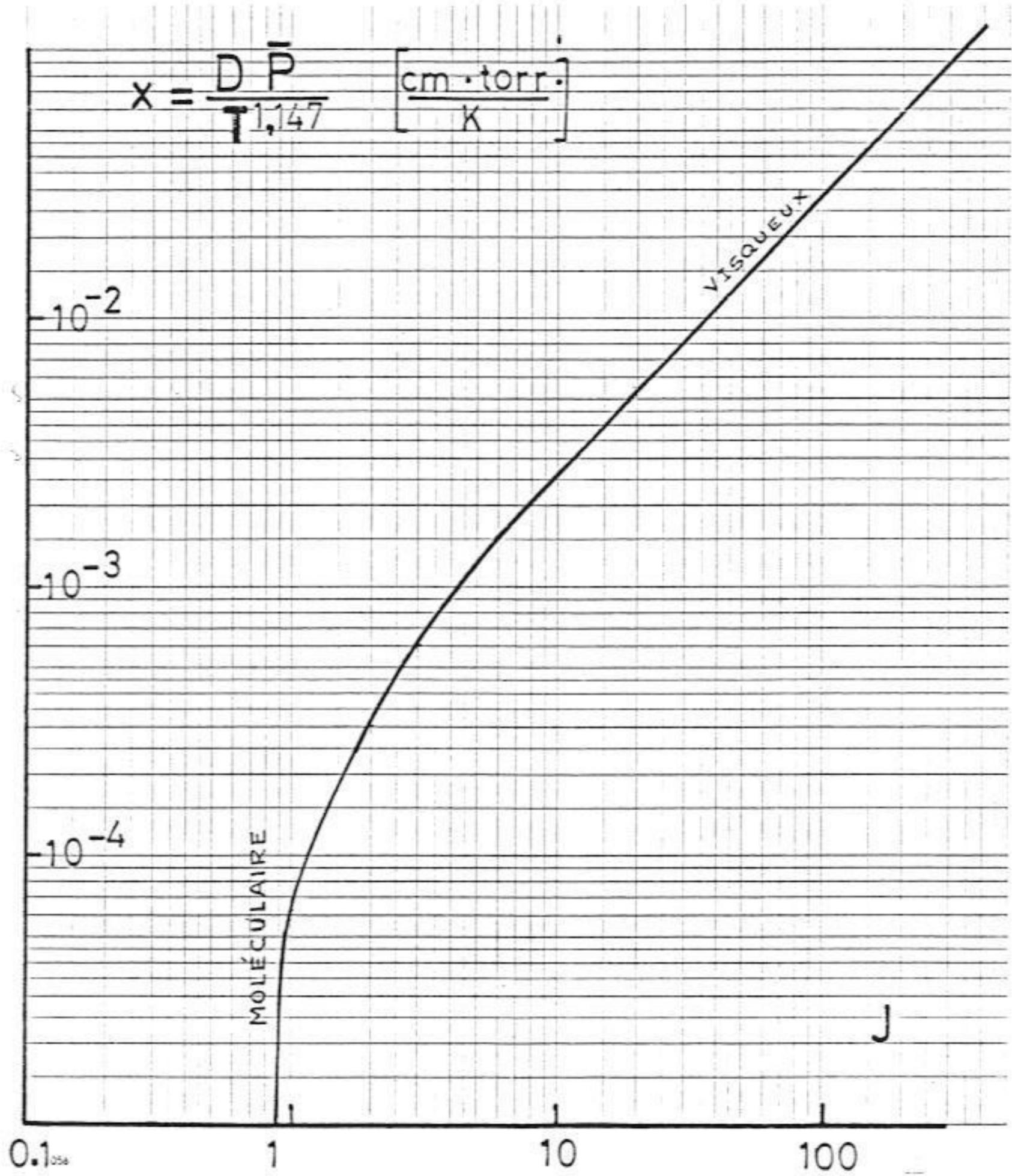


Fig. II-19 : Diagramme permettant de calculer la conductance des lignes de pompage.

Le système de pompage installé sur le réfrigérateur à dilution comporte deux pompes primaires Alcatel 2012 H ($12 \text{ m}^3/\text{h}$ chacune) en parallèle. La pression absolue de refoulement du mélange est de l'ordre de 0.5 bars.

Un deuxième étage de pompage est constitué par deux pompes à diffusion à vapeurs de mercure (Edwards 2 M 4 A) en parallèle ; la pression maximale de refoulement (~ 30 torrs) est atteinte pour un débit $\sim 500 \mu\text{moles} / \text{s}$, qui correspond à une température d'évaporateur $\sim 0.8 \text{ K}$ et une pression d'évaporateur ~ 0.1 torr.

Plusieurs pièges à la température de l'azote liquide sont utilisés pour éviter (en principe...) la diffusion du mercure dans le réfrigérateur et les pompes primaires.

Nous montons actuellement un nouveau système de pompage : une pompe Roots (Pfeiffer WKP 500) couplée à une pompe primaire Alcatel 2060 H ($60 \text{ m}^3/\text{h}$). Ce système devrait permettre des résultats équivalents quant au débit, et un fonctionnement sans surprises pendant la durée d'une expérience (plusieurs mois).

II - C - EFFET POMERANCHUK

a) Introduction.

En 1950 Pomeranchuk a suggéré la possibilité de refroidir un mélange ^3He solide- ^3He liquide par compression adiabatique à très basse température.

En effet, au-dessous de 300 mK l'entropie du liquide de Fermi (cf. § II-B) devient inférieure à celle du solide, qui est de l'ordre de $R \ln 2$ à cause des degrés de liberté du spin nucléaire (cf. § IV-B). La formation de solide, à entropie constante, implique un refroidissement de l'ensemble.

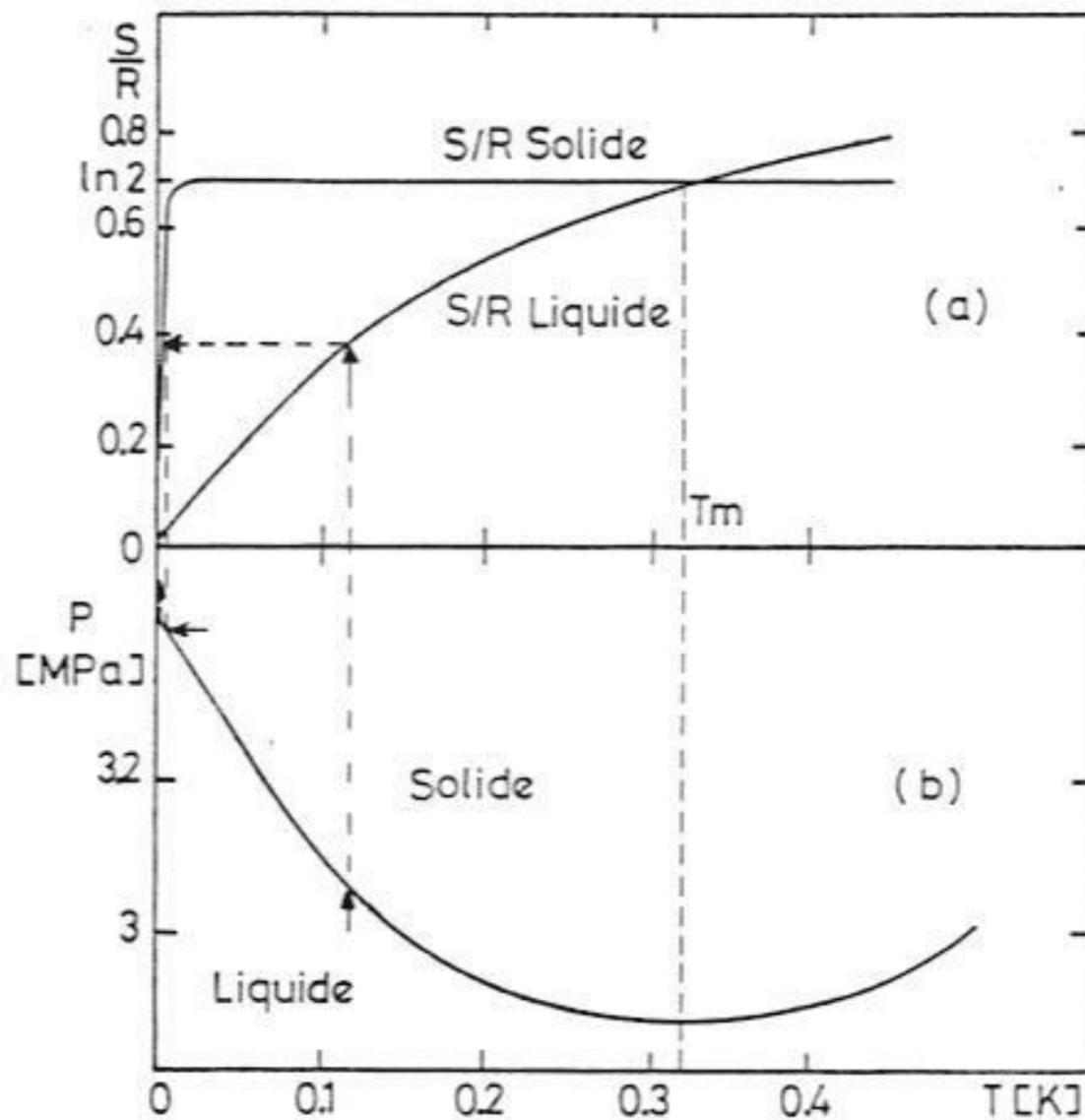


Fig. II-20a.

La figure II-20 illustre ce processus, décrit par l'équation de Clausius-Clapeyron (cf. § IV-B). La température minimale est atteinte en principe lorsque tout l'échantillon est solidifié ; l'entropie du solide, nécessairement égale à l'entropie initiale du liquide, est très inférieure à $R \ln 2$. D'après Pomeranchuk, cette température devait correspondre à l'ordre magnétique du solide sous l'effet des interactions dipolaires nucléaires, c-à-d $T \sim \mu\text{K}$. Bernardes et Primakoff (1960) ont montré que les interactions d'échange dans le solide devaient augmenter la température d'ordre jusqu'à

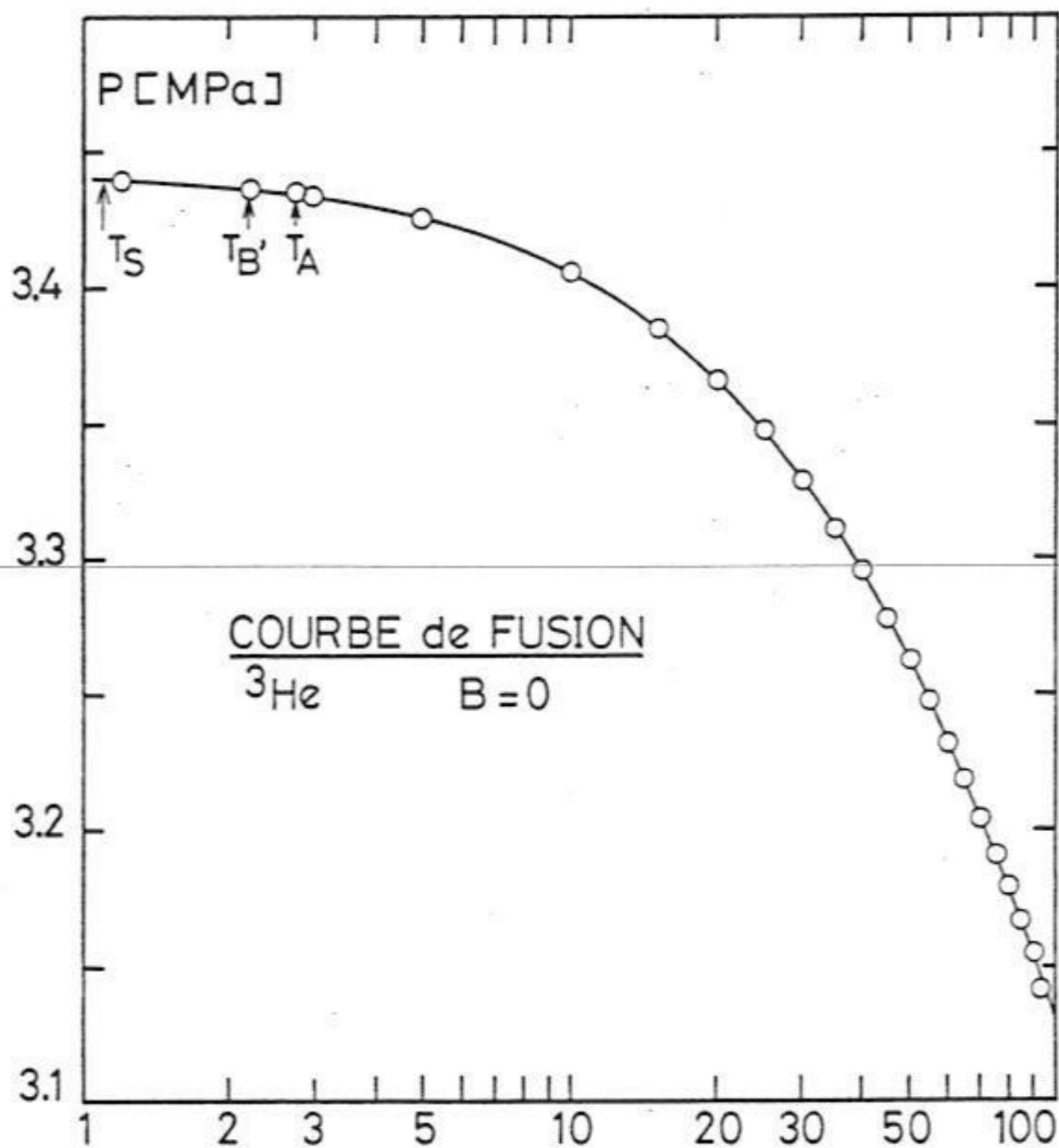


Fig. II-21 b : Courbe de fusion de l' ^3He à champ nul, d'après Halperin et al. (1978).

un mK environ, limitant ainsi la gamme de températures de la réfrigération Pomeranchuk.

Cette méthode a été très efficace pour étudier l'ordre magnétique du solide : Halperin et al. (1974, 1978) ont ainsi mis en évidence une transition du premier ordre vers un état antiferromagnétique à champ nul et $T \sim 1 \text{ mK}$, et nous avons montré (Godfrin et al. 1980) que la température d'ordre devient supérieure à 3 mK à fort champ.

Ainsi, la réfrigération Pomeranchuk permet à peine d'atteindre les températures minimales des meilleurs réfrigérateurs à dilution ou d'un étage à désaimantation nucléaire très modeste ; elle a été pratiquement abandonnée au profit de ces techniques, sauf pour l'étude de l' ^3He liquide ou solide sur la courbe de fusion, où elle demeure un instrument remarquable.

b) Cellules expérimentales.

L' ^3He liquide est confiné dans une cellule à parois déformables sous l'action d'une pression extérieure. En pratique celle-ci est transmise par de l' ^4He dont la pression est contrôlée de l'extérieur.

Le minimum de la courbe de fusion de l' ^3He implique la présence de solide dans la ligne de remplissage de la cellule ; celle-ci est ainsi isolée de l'extérieur, et le système évolue à nombre d'atomes constant ("méthode du capillaire bloqué").

Bien que la courbe de fusion présente également un minimum, on n'observe pas le blocage des lignes correspondantes ; ceci est dû au fait que le minimum est peu prononcé, et la surpression de l' ^4He n'est jamais suffisante pour obtenir la nucléation du solide.

Le prérefroidissement de la cellule à des températures dans la gamme 2 à 50 mK s'effectue au moyen d'un réfrigérateur à dilution ; un échangeur thermique en poudre d'Ag ou Cu frittée assure le contact thermique. Un interrupteur thermique supraconducteur est souvent intercalé entre la cellule et le réfrigérateur ; ceci n'est pas nécessaire à $T \lesssim 5 \text{ mK}$; les temps d'équilibre thermique devenant très longs devant les temps de mesure. (Cf. appendice I).

La plupart des cellules utilisées jusqu'à présent sont métalliques (alliage de bronze-béryllium, matériau ayant d'excellentes propriétés mécaniques et magnétiques). Leur géométrie est relativement compliquée, (disques, soufflets), ce qui provoque en général un chauffage par écrasement du solide dès que la fraction formée atteint $\sim 20 \%$.

Leur principal inconvénient, cependant, est de ne pas permettre, sous cette forme, des mesures de résonance magnétique nucléaire, la radio fréquence ne pénétrant

pas dans la cellule métallique.

Une première solution consiste à prolonger la cellule par une cavité en matière plastique ; dans ce cas on n'a accès qu'à une fraction du solide formé.

Les livres de Betts (1976) et Lounasmaa (1974) décrivent les principaux dispositifs expérimentaux de ce type.

Greenberg (1977, communication privée) a réalisée une cellule originale, entièrement en matière plastique (nylon). Celle-ci a été perfectionnée par Frossati (thèse, 1978) grâce à l'utilisation d'une membrane en Kapton (matière plastique aux propriétés mécaniques excellentes) d'une épaisseur $\sim 50 \mu$ et une cellule en Araldite, compacte, particulièrement adaptée aux mesures de RMN et la thermométrie (cf. § III-D), (figure II-21).

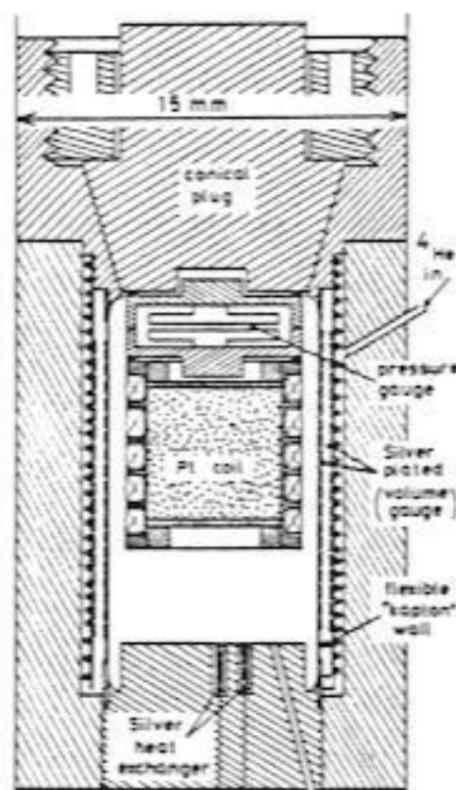


Fig. II-21 : Cellule Pomeranchuk en matière plastique.

Nous avons réalisé plusieurs cellules de ce genre, et publié une partie des résultats (Frossati et al. 1978). Le point critique est évidemment la membrane : celle-ci doit supporter une différence de pression de l'ordre de 3.4 MPa (lorsque l' ^3He se trouve sur la courbe de fusion et la pression de l' ^4He est nulle) sans se déformer de façon permanente.

D'autre part, lorsque la pression de l' ^4He est augmentée jusqu'à sa valeur maximale (2.5 MPa, pression de solidification), la membrane doit se déformer élastiquement de façon à solidifier entièrement l' ^3He liquide contenu dans la cellule.

Ceci correspond à une réduction du volume de l'ordre de 5 % (différence relative des volumes molaires du solide et du liquide, cf. § II-B).

La déformation requise est à la limite de la rupture ; il sera donc important d'éviter les "defauts" sur la membrane, et en particulier de renforcer les points où la contrainte est maximum.

On ne dispose pas actuellement de membranes de Kapton cylindriques en une seule pièce. Il est donc nécessaire de les fabriquer à partir de feuilles de faible épaisseur enroulées en couches successives sur un mandrin cylindrique en Teflon, et collées entre elles avec une résine époxy (Stycast 1266). La résine est appliquée en couches très minces, l'excédent étant éliminé avec un rouleau en Teflon, avant l'enroulement. Celui-ci s'effectue à la main, en prenant soin d'éviter toute inclusion de bulles. La fin de l'enroulement doit se superposer légèrement (~ 1 mm) avec le début de la dernière couche, afin d'éviter un point faible favorisant la rupture. Ainsi, le nombre de couches est un entier, et doit être choisi en fonction de l'épaisseur de la feuille de Kapton de départ et du diamètre de la cellule, de façon à avoir une pression d'éclatement $\gtrsim 4$ MPa.

Les meilleures membranes, pour des diamètres de 0.4 à 2 cm, sont obtenues avec des feuilles de Kapton d'une épaisseur de 14 μ , faciles à enrouler. Des essais avec des feuilles de 8 μ , difficiles à manipuler à cause de leur charge électrostatique ont été peu satisfaisants.

Après polymérisation de la colle dans un four à $\sim 60^\circ\text{C}$, la membrane est coupée au tour à la dimension choisie ; le mandrin en Teflon se dégage aisément en le mettant dans de l'azote liquide.

Afin de renforcer les extrémités (endroit où la déformation sera maximum), on y enroule des bandes en forme de trapèze très allongé, en Kapton, doublant approximativement l'épaisseur de la membrane sur le bord, et s'annulant progressivement sur une distance ~ 1 mm (Frossati, thèse, 1978).

Il est nécessaire d'effectuer un certain nombre d'essais afin de déterminer le nombre de couches optimum. La membrane est fermée aux extrémités par un bouchon en Araldite ; un capillaire permet d'injecter de l' ^4He sous pression. L'ensemble est placé dans de l'azote liquide, et on augmente la pression jusqu'à éclatement.

La figure II-22 représente la pression d'éclatement en fonction du nombre de tours pour une cellule d'un diamètre de 19 mm, et de 5.5 cm de hauteur, (munie de 9 tours de bandes de renfort en "dégradé"). Dans ce cas, 9 tours sont suffisants, l'épaisseur de la membrane est de l'ordre de 180 μ , soit 9 couches de Kapton de 14 μ , et 8 couches de colle de l'ordre de 7 μ .

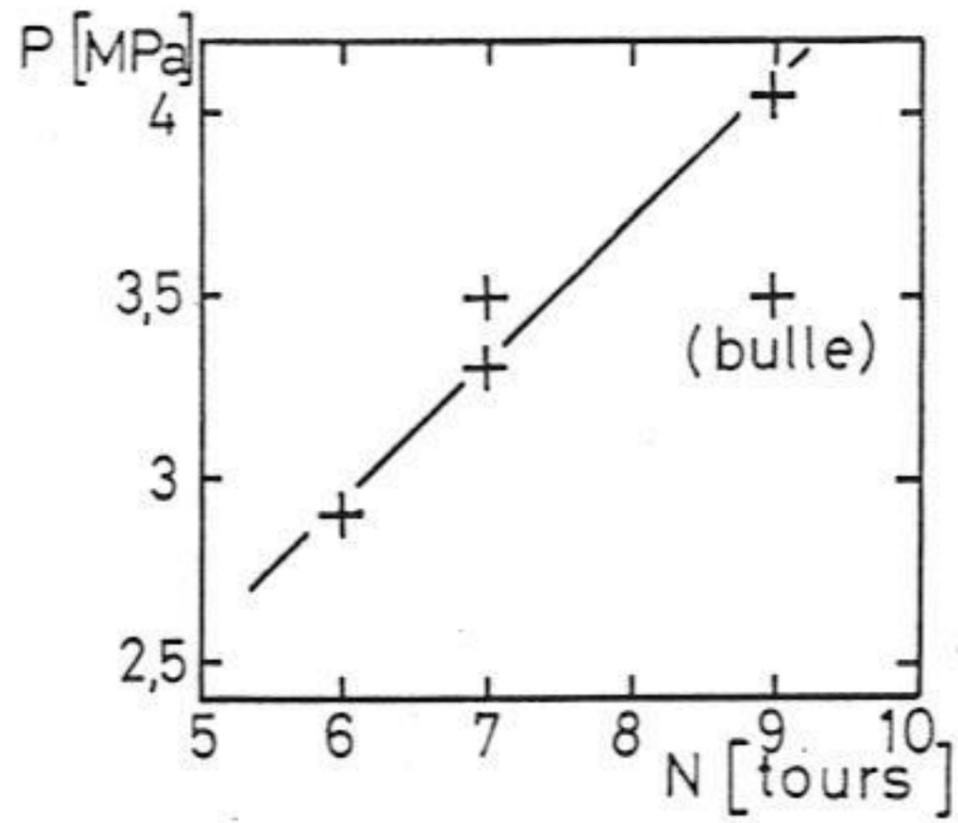


Fig. II-22 : Pression d'éclatement d'une membrane de Kapton de 19 mm de diamètre en fonction du nombre de tours.

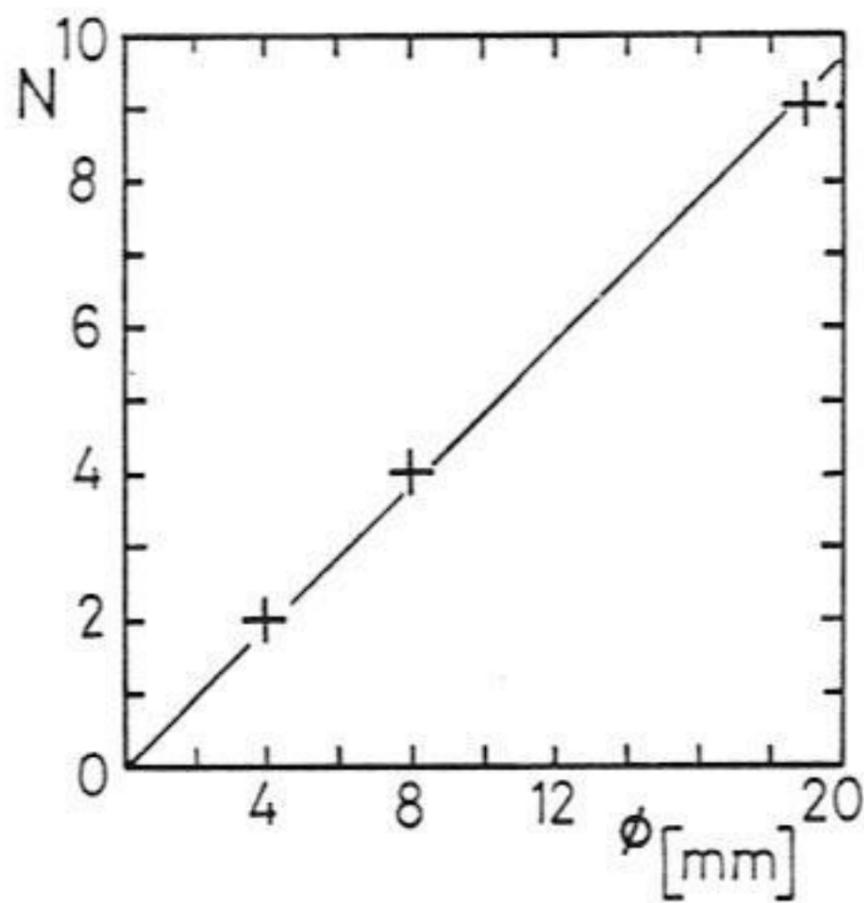


Fig. II-23 : Nombre de tours optimum en fonction du diamètre de la membrane.

La figure II-23 montre le nombre de couches optimum en fonction de l'épaisseur, avec du Kapton de 14 μ . Le nombre de couches étant nécessairement entier, ce diagramme détermine les diamètres utilisables.

La membrane est ensuite collée à chaque extrémité sur deux bouchons en Araldite ; un cylindre du même matériau complète la cavité destinée à l' ^4He (voir figure II-21).

Jauge de volume : On évapore une couche d'argent sur la membrane et sur la face intérieure du cylindre, de façon à obtenir les deux électrodes d'un condensateur sensible aux changements de volume de la cellule. La déformation de la membrane a lieu principalement près des bords ; on a donc en première approximation un condensateur plan, de capacité (en pF) :

$$C = 0.088 A / d$$

où A est la surface d'une électrode en cm^2 , et d leur séparation en cm. On obtient ainsi des capacités de quelques dizaines de pF pourvu que l'écartement soit de l'ordre de 0.5 mm au plus. La variation de C^{-1} est proportionnelle à d , et par conséquent à la variation dV du volume de la cellule. En suivant la procédure de Halperin et al. (1978), on écrit :

$$V = V_0 + \alpha (P_3 - P_4)$$

Cette relation, expérimentalement vérifiée, décrit la linéarité des changements de volume en fonction de la différence de pression entre les deux côtés de la membrane. Ainsi $dV / V = d(P_3 - P_4) \alpha / V \approx d(P_3 - P_4) \alpha / V_0$.

Soit $k = \alpha / V_0$, et K la compressibilité de l' ^3He liquide : $K = -dV / V dP_3$.

Lorsqu'on n'a que du liquide dans la cellule, on obtient :

$$\frac{d(P_3 - P_4)}{dP_3} = -K / k$$

Cette valeur peut être mesurée expérimentalement.

$$\text{Or } K = 9.172 \times 10^{-3} \text{ bars}^{-1} - 1.27 \times 10^{-4} P_3 \text{ (bars}^{-2}\text{)}$$

$$\text{Pour } P = 34.36 \text{ bars, } K = 4.81 \times 10^{-3} \text{ bars}^{-1}.$$

On peut ainsi calculer α , et en estimant V_0 , connaître le volume de la cellule en fonction de $P_3 - P_4$, et étalonner ainsi la jauge de volume.

Thèse Frossati : variation de rayon de la cellule : $\Delta R \approx \frac{PR^2}{Eh}$ où $P = P_3 - P_4$ (pression)
 $R =$ rayon cellule
 $E =$ module de Young
 Kapton $E = 6 \times 10^9 \frac{\text{N}}{\text{m}^2}$ CuBe $E = 2.7 \times 10^{10} \frac{\text{N}}{\text{m}^2}$
 $h =$ épaisseur de la membrane

$$\Rightarrow \frac{\Delta V}{V} \approx \frac{2PR}{Eh}$$

Calcul du pourcentage de solide dans la cellule.

Soient v_l et n_l le volume molaire et le nombre de moles de liquide dans la cellule, v_s et n_s ceux du solide.

$$V = n_l v_l + n_s v_s \quad \Delta v = v_l - v_s$$

$$dV = -dn_s \cdot \Delta v + n dv_s$$

La fraction de solide est $x_s \equiv n_s / n$, n étant le nombre de moles d' ^3He ;
 $dx_s = dn_s / n$ ($n = \text{constant}$ dans une cellule Pomeranchuk).

Si l'on considère comme état initial les valeurs de V , P et x correspondant à l'entrée sur la courbe de fusion à la compression (début de formation de solide) :

$$dV = V - V_{CF} \quad dP = P - P_{CF} \quad x_s \equiv dx_s \quad \text{et} \quad V_{CF} = n v_{CF}$$

$$\text{Or } dV / V = k d(P_3 - P_4) \quad \text{et} \quad dv_s / v_s = -K dP_3 \quad (\text{voir plus haut})$$

$$\Rightarrow dV / V = \frac{-x_s \Delta v + dv}{v_{lCF}}$$

$$\Delta V = \int_{V_{CF}}^V (-dn_s \Delta v + n dv_s) = -n_s \Delta v + n \Delta v_s$$

$$\Delta V / V = \frac{-n_s \Delta v + n \Delta v_s}{n v_{lCF}} = -x_s \Delta v / v_{lCF} + \Delta v_s / v_{lCF}$$

$$\text{Or } \Delta V / V = k \Delta(P_3 - P_4)$$

$$\Rightarrow k \Delta P_3 - k \Delta P_4 = -x_s \Delta v / v_{lCF} - \frac{K v_s \Delta P_3}{v_{lCF}}$$

$$\text{d'où} \quad x_s = \frac{v_{lCF}}{\Delta v} \left[k \Delta P_4 - \left(k = K \frac{v_s}{v_{lCF}} \right) \Delta P_3 \right]$$

Soit :

$$x_s = \frac{v_{lCF}}{\Delta v} k \left[\Delta P_4 - \left(1 + \frac{k}{K} \frac{v_s}{v_{lCF}} \right) \Delta P_3 \right]$$

Avec les valeurs de Halperin et al. (1978) :

$$v_{lCF} \sim 25.5 \text{ cm}^3$$

$$\Delta v = 1.314 \text{ cm}^3$$

$$v_s \sim 24.0 \text{ cm}^3$$

$$K = 4.81 \times 10^{-3} \text{ bars}^{-1}$$

et la valeur mesurée de K/k (voir § "Jauge de volume"), cette expression fournit directement la fraction de solide formé en fonction de la différence des pressions initiales et finales de ^3He et ^4He .

Dans le cas de la cellule employée pour les mesures sur ^3He solide (chapitre IV), nous avons mesuré $K/k = 3.25$, soit :

$$x_s = 2.88 \times 10^{-2} (\Delta P_4 - 4.06 \Delta P_3)$$

Le solide est souvent formé $T = \text{constante}$, soit $P_3 = \text{constante}$; dans ce cas, $\Delta P_3 = 0$.

Jauge de Pression.

Nous avons employé une jauge de pression du type Straty-Adams (1969) modifiée par Frossati (non publié).

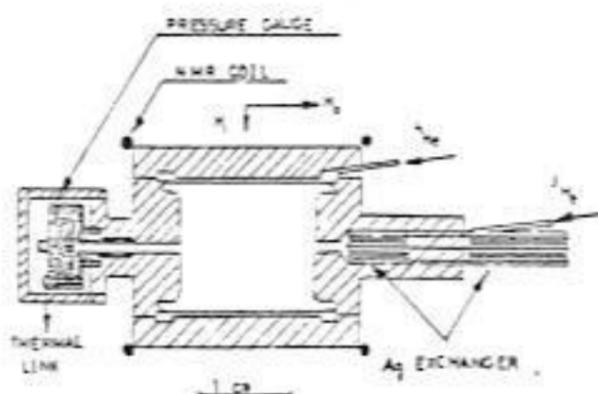


Fig. II-24.

La figure II-24 montre la disposition de la jauge, reliée à la cellule par un canal de 1 mm de diamètre et 1 cm de longueur, afin de la maintenir en dehors du champ RF de la bobine de RMN. Lorsque la quantité de solide dans la cellule est importante, on observe un blocage du canal, et la jauge ne répond plus aux variations de pression.

Ceci ne représente pas un problème majeur, étant donné que nos mesures ont lieu avec une faible quantité de solide, pour diminuer les constantes de temps d'équilibre thermique.

La jauge de pression est constituée de deux électrodes de bronze béryllium montées sur un support déformable en Araldite, dont l'épaisseur est ajustée a posteriori pour obtenir la sensibilité requise. L'ensemble est placé dans un boîtier en Araldite scellé, fournissant la pression de référence, essentiellement nulle grâce au cryopompage.

Nous avons également employé des jauges "flottantes" ; dans ce cas les électro-

des sont contenues dans un boîtier, la pression s'exerçant sur les deux faces. Les électrodes, en argent évaporé sur de l'araldite, posent alors moins de problèmes de thermalisation ou absorption de radiofréquence.

Il est important d'éviter la présence de matières plastiques entre les électrodes ; dans le cas contraire, il faut tenir compte de la variation de leur constante diélectrique en fonction de la température et de la tension (cf. § III-F).

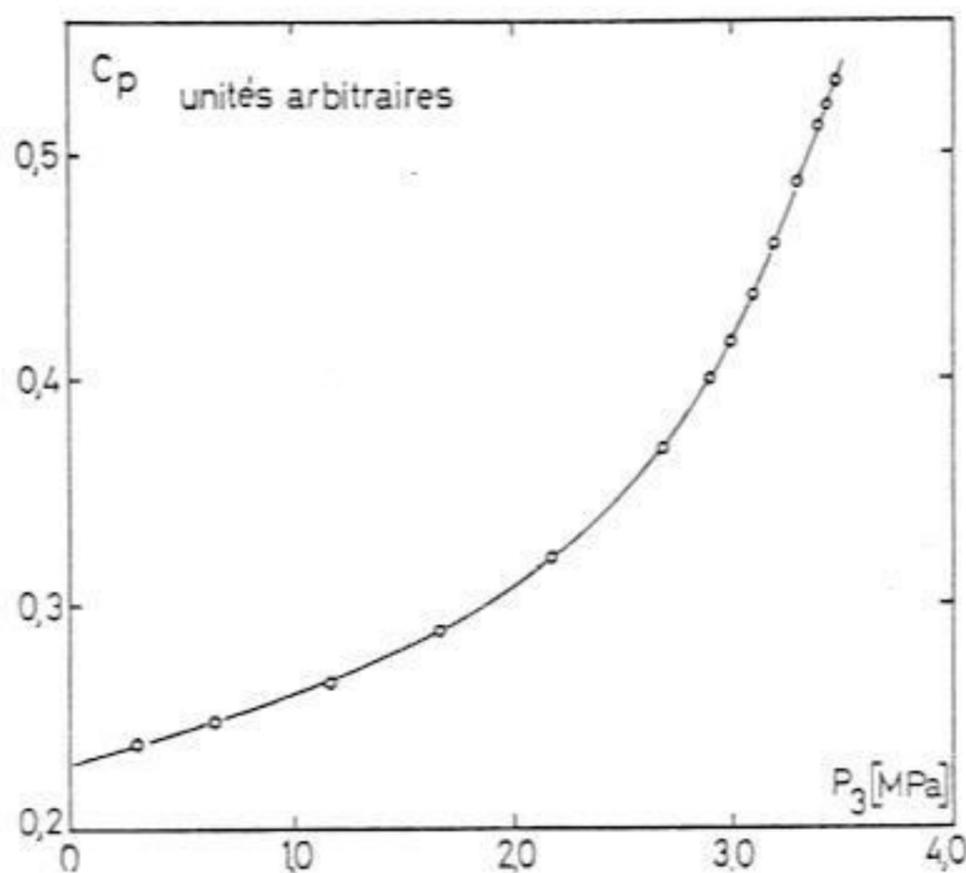
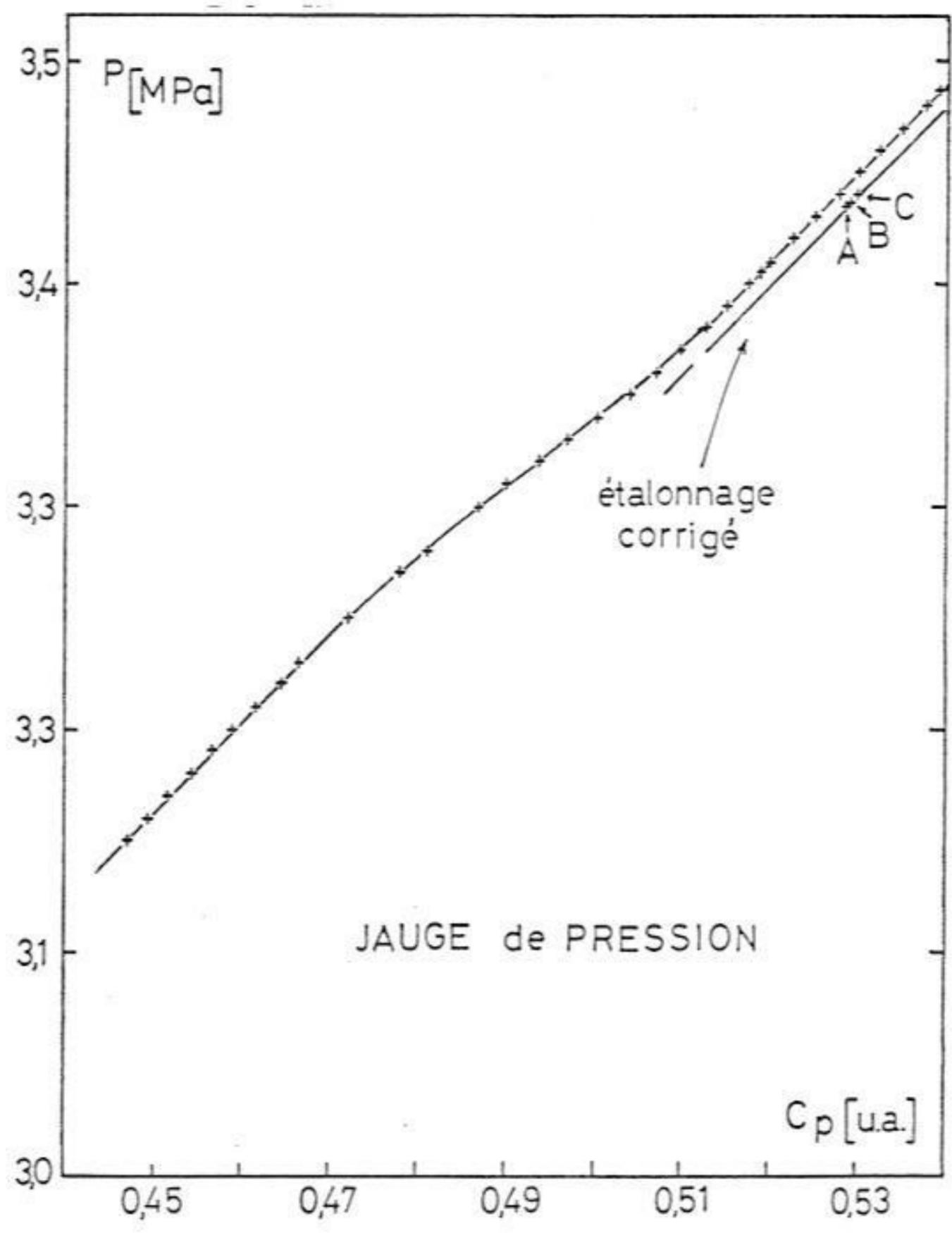


Fig. II-25 : Etalonnage de la jauge de pression.

Les figures II-25 et II-26 montrent un étalonnage typique, comparant la capacité de la jauge de pression C_p à la pression mesurée soit par un manomètre à aiguille de précision, soit par une jauge de Bourdon en quartz (Texas Instruments). Dans ce dernier cas, la diffusion de l'hélium dans le quartz rend la mesure peu précise à hautes pressions.

La déviation à la linéarité de $C_p(P)$ à $P \sim 3.3$ MPa provient de la jauge, et non du système d'étalonnage. Toutes les mesures sont effectuées au-dessus de 33.8 bars, c-à-d dans la zone linéaire, dont la pente dC_p / dP peut être déterminée avec précision.

Fig. II-26 : Etalonnage de la jauge de pression.



L'observation des transitions A, B' et C (cf. § III-d) permet d'améliorer la précision absolue en utilisant les valeurs de Halperin et al. (1978) pour P_A , $P_{B'}$ et P_C . Ceci implique un décalage de l'étalonnage de $C_p(P)$ l'ordre de 0.01 MPa (voir figure II-26). Les différences entre ces pressions, qui impliquent uniquement la connaissance de dP / dC_p , sont en excellent accord avec les valeurs de Halperin et al. (cf. § IV-E-c-1).

La sensibilité de la jauge employée est supérieure à 3 Pa, et la reproductibilité meilleure que 10 Pa (tant que la jauge reste à des pressions ~ 3.4 MPa avec des écarts < 0.1 MPa), ceci étant vérifié en comparant les résultats de plusieurs observations de P_A , $P_{B'}$ et P_C à champ nul.

CHAPITRE III

LA THERMOMETRIE AUX TRES BASSES TEMPERATURES

III - A - INTRODUCTION

Les techniques décrites au chapitre précédent permettent d'atteindre des températures dans la gamme du millikelvin. La mesure de ces températures est au moins aussi complexe que leur obtention : vers 1 mK, par exemple, la précision de l'échelle de températures est actuellement inférieure à 5 %. Nos expériences ont exigé l'adaptation des techniques traditionnelles et le développement de nouveaux thermomètres, que nous décrivons dans ce chapitre.

Thoulouze (1970), Weyhmann (1973), Lounasmaa (1974), Hudson et al. (1975), Parker et Corrucini (1975), Betts (1976) et Richardson (1977) ont décrit de nombreux types de thermomètres, et analysé leurs limitations : domaine d'utilisation, sensibilité, précision, contact thermique entre le thermomètre et l'échantillon.

On distingue habituellement deux types de thermomètres ; lorsque la loi physique décrivant la variation thermique du paramètre mesuré est connue théoriquement et expérimentalement digne de confiance, le thermomètre est appelé primaire. Il permettra d'étalonner les thermomètres secondaires, en général plus sensibles, dont on ignore la loi précise de variation.

Nous avons surtout utilisé comme thermomètre primaire le paramagnétisme électronique vers les "hautes températures" (10 mK à 5 K), et le paramagnétisme nucléaire au dessous de 100 mK.

III - B - THERMOMETRES MAGNETIQUES : PARAMAGNETISME ELECTRONIQUE

Le thermomètre le plus employé actuellement en dessous de 1K est le nitrate double de Cérium Magnésium : $2 \text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 3 \text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 24 \text{H}_2\text{O}$ ou "CMN". Le paramètre thermométrique mesuré est la susceptibilité magnétique $\chi(T)$; celle-ci suit une loi de Curie-Weiss dans la gamme de températures 5 mK - 4 K. Les ions magnétiques de

Cérium interagissent faiblement par interaction dipolaire, étant séparés par un nombre important de molécules d'eau ; il en résulte une température d'ordre extrêmement basse pour un système de spins électroniques: 1,9 mK.

Les propriétés physiques du CMN ont été étudiées en particulier par Mess et al. (1969), Giaucque et al. (1973) et Fisher et al (1973) ; son application à la thermométrie est discutée par les auteurs cités dans l'introduction de ce chapitre.

Pour un système de spins sans interaction, la valeur de l'aimantation que l'on obtient par un calcul de physique statistique élémentaire est :

$$M = M_0 B_j(x) \quad \text{avec} \quad x = g \mu_B JB / k_B T$$

où M_0 est l'aimantation à saturation, B_j la fonction de Brillouin, J le spin, g le facteur g spectroscopique, μ_B le magnéton de Bohr et B le champ magnétique.

Au premier ordre en x , on obtient :

$$\chi = \mu_0 M / B = \mu_0 N J(J+1) g^2 \mu_B^2 / 3 k_B T \quad (\text{système international d'unités})$$

où N est le nombre d'atomes par unité de volume ; d'où :

$$N = N_0 / V_m \quad (N_0 \equiv \text{nombre d'Avogadro, } V_m \equiv \text{volume molaire})$$

$$\implies \chi = \mu_0 N_0 J(J+1) g^2 \mu_B^2 / 3 k_B V_m T \equiv \frac{C}{T}$$

où $C \equiv \mu_0 N_0 J(J+1) g^2 \mu_B^2 / 3 k_B V_m$ est la constante de Curie.

L'effet des interactions entre les spins peut être décrit par un "champ moléculaire" (Champ de Weiss) : ce champ magnétique fictif B_M est supposé proportionnel à l'aimantation : $B_M = \mu_0 \lambda M$.

Le champ agissant sur chaque spin (champ local B) est la somme du champ extérieur B_0 et B_M :

$$B = B_0 + B_M \implies \mu_0 M = \chi (B_0 + B_M) = \frac{C}{T} (B_0 + B_M)$$

On déduit aisément que $\chi \equiv \mu_0 M / B_0 = \frac{C}{T - T_C}$ avec $T_C = \lambda C$ au dessus de T_C (Température de Curie) ; au-dessous de T_C , le système s'ordonne sous l'effet du champ moléculaire.

En pratique, il faudra ajouter au champ extérieur et au champ moléculaire, le champ démagnétisant. Celui-ci ne sera uniforme dans l'échantillon que pour un ellipsoïde de révolution aimanté suivant l'axe de symétrie. Sa valeur est proportionnelle à l'aimantation :

$$B_D = - \zeta \mu_0 M$$

où ζ est le facteur démagnétisant (pour une sphère $\zeta = 1/3$).

$$\text{Ainsi, } B = B_0 + B_M + B_D = B_0 + \mu_0 \lambda M - \mu_0 \zeta M$$

On suppose que la susceptibilité locale $\chi = \mu_0 M/B$ suit une loi de Curie :
 $= C/T$; la susceptibilité mesurée est donnée par l'expression

$$\chi_{\text{mes}} = \mu_0 M/B_0$$

On en déduit que $\chi_{\text{mes}} = \chi_0 + C/[T - (\lambda - \zeta)C] =$

$$\boxed{\chi_{\text{mes}} = \chi_0 + \frac{C}{T - \Delta}} \quad \text{avec } \Delta \equiv (\lambda - \zeta)C$$

où χ_0 est un terme constant ajouté à posteriori pour tenir compte de contributions indépendantes de la température ou provenant de l'appareillage expérimental.

$\chi - \chi_0$ suit une loi de Curie-Weiss ; il est donc important, pour la thermométrie, d'estimer l'ordre de grandeur de Δ .

Le paramètre ζ est de l'ordre de 1 (1/3 pour une sphère) ; pour un cristal cubique et des interactions dipolaires, $\lambda = 1/3$ et reste de cet ordre pour d'autres structures. On s'attend donc à $\Delta = 0$ pour un échantillon sphérique d'un cristal à symétrie cubique, et à un Δ assez faible ($\Delta \lesssim C$ en général), pourvu que les interactions soient d'origine dipolaire.

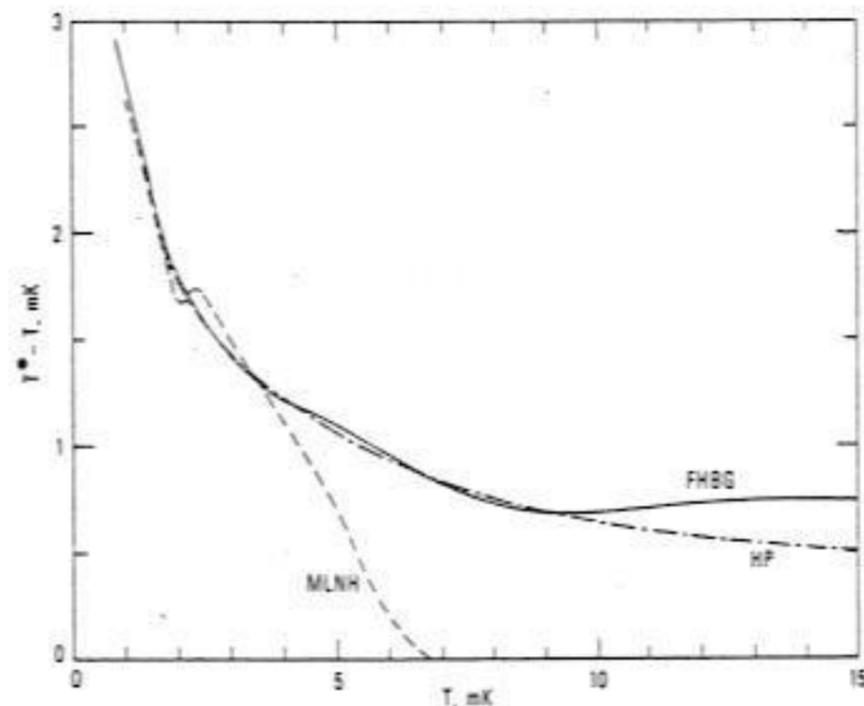
Dans le cas du CMN, $C = 1,04 \times 10^{-2} \text{ K}$ (A.H. Cooke, 1955), avec la définition de C correspondant au système international d'unités ; Δ serait donc $\lesssim 10 \text{ mK}$.

Lorsque le CMN est employé comme thermomètre dans cette gamme de températures, on définit une "température magnétique"

$$T^{\ddot{}} = C(\chi_{\text{mes}} - \chi_0) \implies \boxed{T = T^{\ddot{}} + \Delta}$$

Pour un monocristal sphérique, $T^{\ddot{}}$ est noté T^{\odot} ; le CMN a une structure romboédrique (Zalkin et al., 1963), et Δ n'est pas nul : $\Delta \equiv \Delta^{\odot}$; de plus, Δ^{\odot} dépend de la température près de T_c (en pratique, en dessous de 10 mK).

La figure III - 1 représente la variation de $T^{\odot} - T \equiv -\Delta^{\odot}$ en fonction de T observée par Mess et al. (1969), Fisher et al. (1973) et Hudson et Pfeiffer (1972).



Magnetic temperature T^* for CMN single-crystal spheres compared with absolute temperature T . The three lines summarize the results of Mess *et al.*¹⁷ (---), Fisher *et al.*^{15b} (—), and Hudson and Pfeiffer¹⁴ (— · —).

Fig. III-1.

Au-dessus de 10 mK, la valeur de Δ^{\oplus} peut être calculée théoriquement ; d'après Peverley et Meijer (1967), $\Delta^{\oplus} = -0.273$ mK. Expérimentalement,

$$\Delta^{\oplus} = -0.273 \text{ mK} - 0.0042 / T \text{ (mK)}^2 \quad (\text{Hudson et Pfeiffer, 1972}).$$

et $\Delta^{\oplus} = -0.75$ mK (Giauque *et al.*, 1973).

L'indétermination sur Δ^{\oplus} est donc importante ; d'autre part, les monocristaux sphériques de CMN ne peuvent être utilisés comme thermomètres dans l'hélium liquide au dessous de 20 mK : leur faible surface rend l'échange thermique difficile (Lounasmaa, 1974 ; Hébral, thèse, 1978).

En pratique, on emploie des poudres de CMN, dont le taux de compactage est de l'ordre de 60 % et le dimension des grains $\leq 100 \mu$. La géométrie habituelle est celle d'un cylindre dont le diamètre est égal à la hauteur (Wheatley, 1970).

Dans ce cas, on obtient en général une valeur inférieure à 0.5 mK ; avec le système décrit au paragraphe suivant, nous avons mesuré $\Delta < 0.1$ mK pour $T > 5$ mK ; par comparaison avec la transition superfluide T_A (cf. § III - D) nous avons obtenu $\Delta = 0.25$ mK à T_A (≈ 2.75 mK).

Meijer et Beduz (1973) ont fourni des arguments théoriques expliquant la faible valeur de Δ dans les poudres de CMN.

La mesure de la susceptibilité du CMN s'effectue généralement au moyen d'une inductance mutuelle : un champ alternatif basse fréquence (~ 20 Hz) est produit par un enroulement primaire ; le secondaire est constitué de deux enroulement opposés. Ainsi, l'inductance mutuelle M mesurée ne sera due qu'à la différence des inductances de chaque moitié. Une partie constante provient d'une compensation imparfaite des secondaires. Le CMN logé dans un des demi-secondaires modifie l'inductance mutuelle proportionnellement à sa susceptibilité.

Abel et al, (1964) ont analysé en détail ce type de thermomètres ; on trouvera dans cet article les formules permettant de calculer tous les paramètres de ce système.

Nous avons utilisé des mutuelles de très petite taille, particulièrement adaptées à la recherche aux très basses températures. La réduction du signal est compensée par un bruit plus faible, et surtout grâce à l'emploi de ponts d'inductance mutuelle très sensibles, développés au C.R.T.B.T., (fabriqués sous licence ANVAR par la société Barras Provence), dont la sensibilité est de 10^{-8} Henry.

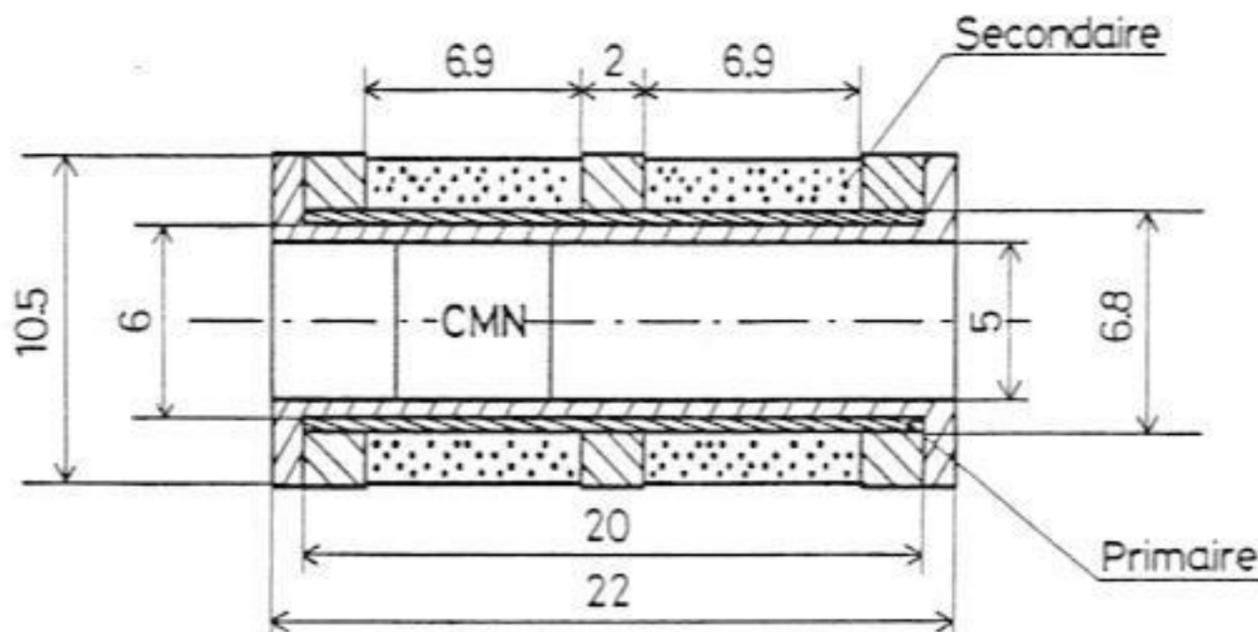


Fig. III-2 : Inductance mutuelle au CMN.

Les détails de construction de nos mutuelles sont donnés sur la figure III-2 ; les mandrins sont faits en Araldite. Le primaire est bobiné en fil supraconducteur (Niobium-Titane Cuivre, diamètre 70μ), en 4 couches de 220 spires.

Le secondaire (dans ce cas 1500 spires par demi-secondaire) peut être bobiné avec le même fil, ou bien en fil de cuivre (70μ). L'ensemble est fixé sur un bouchon conique en araldite afin de pouvoir le monter aisément dans la boîte à mélange.

L'étalonnage est effectué entre 1 K et le point λ de 1^4He : l'inductance mutuelle est placée dans un bain d' 1^4He pompé au moyen d'une pompe primaire.

Deux manomètres, l'un à mercure, l'autre à huile, permettent de mesurer la tension de vapeur ; la valeur de température correspondante est fournie par la Table du National Bureau of Standards (NBS monograph 10).

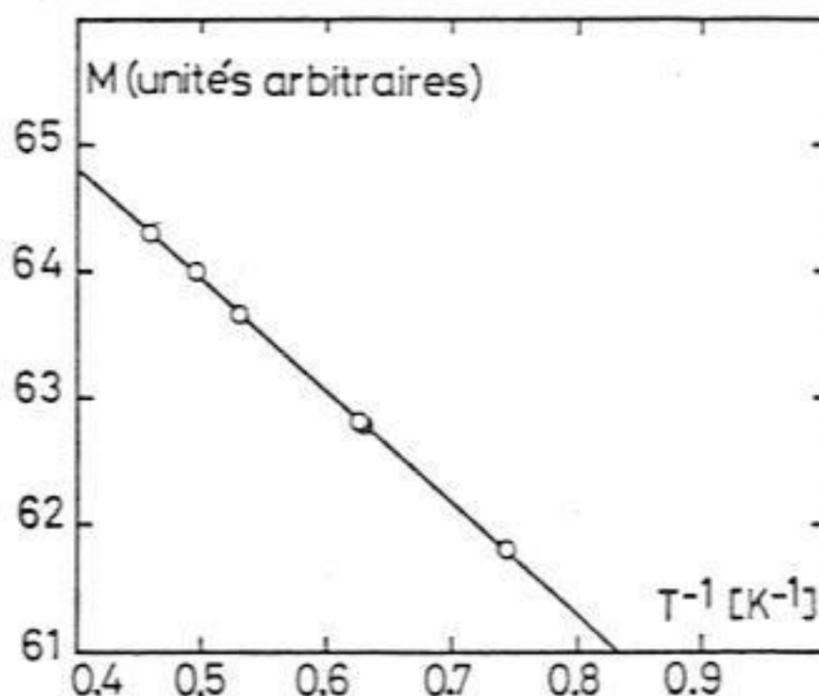


Fig. III-3 : Etalonnage de l'inductance mutuelle.

La figure III-3 représente un étalonnage typique ; l'inductance mutuelle varie suivant la loi

$$M = M_0 + \frac{A}{T}$$

Dans le cas de la mutuelle décrite précédemment,

$$M_0 = 68.25\Omega \quad \text{et} \quad A = 8.64\Omega/\text{K}$$

(la lecture du pont est donnée en Ω ; une variation de $10^4\Omega$ correspond à 3.3 mH). Dans nos mesures, l'incertitude sur A est inférieure à 0.5 %.

Nous avons vérifié la dépendance en température de M par résonance magnétique nucléaire du platine (décrite au § III-C) ; pour $T \gtrsim 5$ mK, $T'' = T \pm 0.1$ mK (fig. III-4). La dispersion à $T < 4$ mK est due à une mauvaise thermalisation du CMN (constante de temps de l'ordre de quelques heures).

Certaines précautions doivent être prises lors de l'emploi du CMN en thermométrie. Butterworth et al. ont mis en évidence l'augmentation de la constante de Curie par deshydratation du sel lors d'un pompage prolongé (figure III-5).

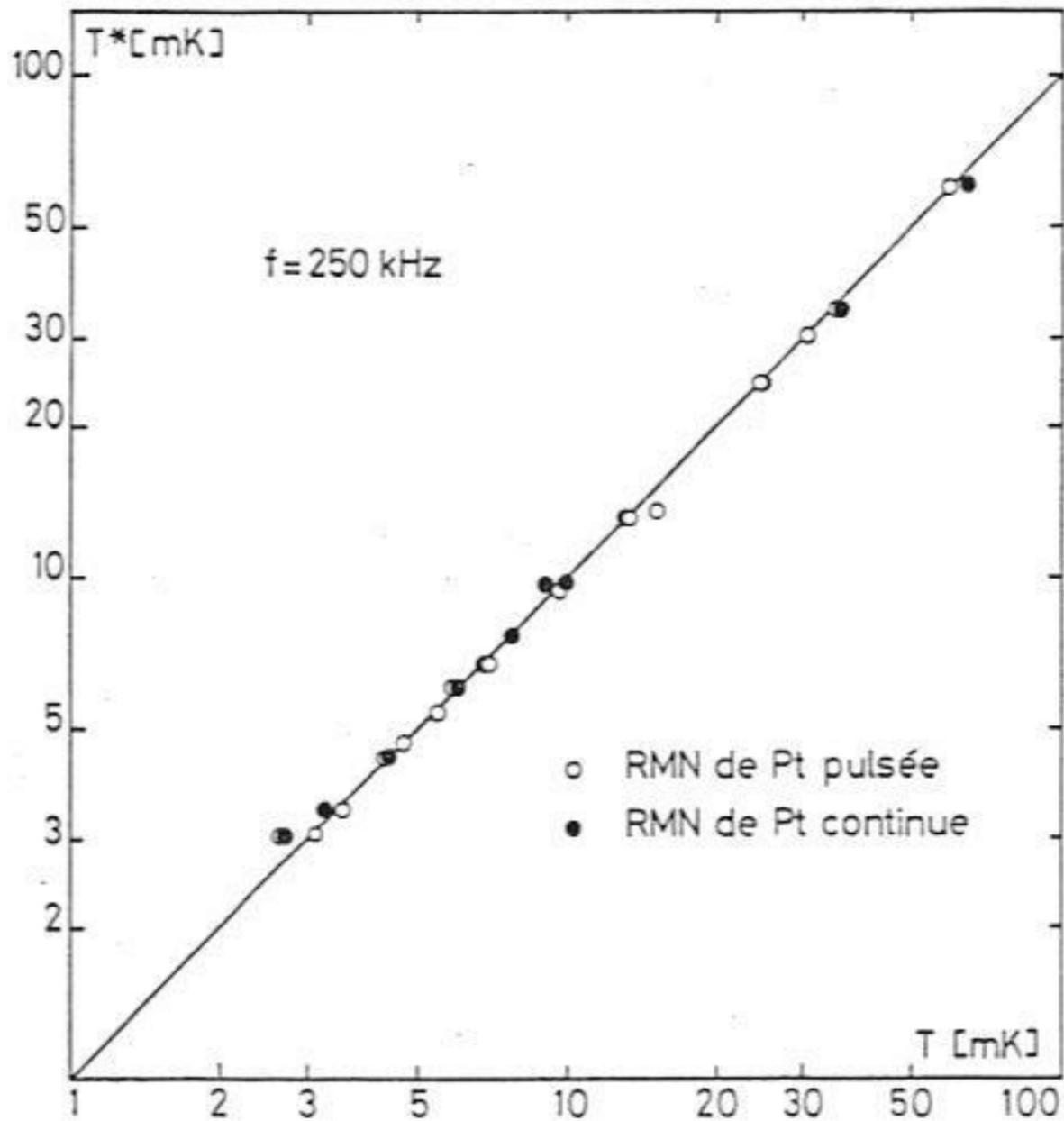


Fig. III-4 : Température du CMN (T^*) en fonction de la température du platine (T).

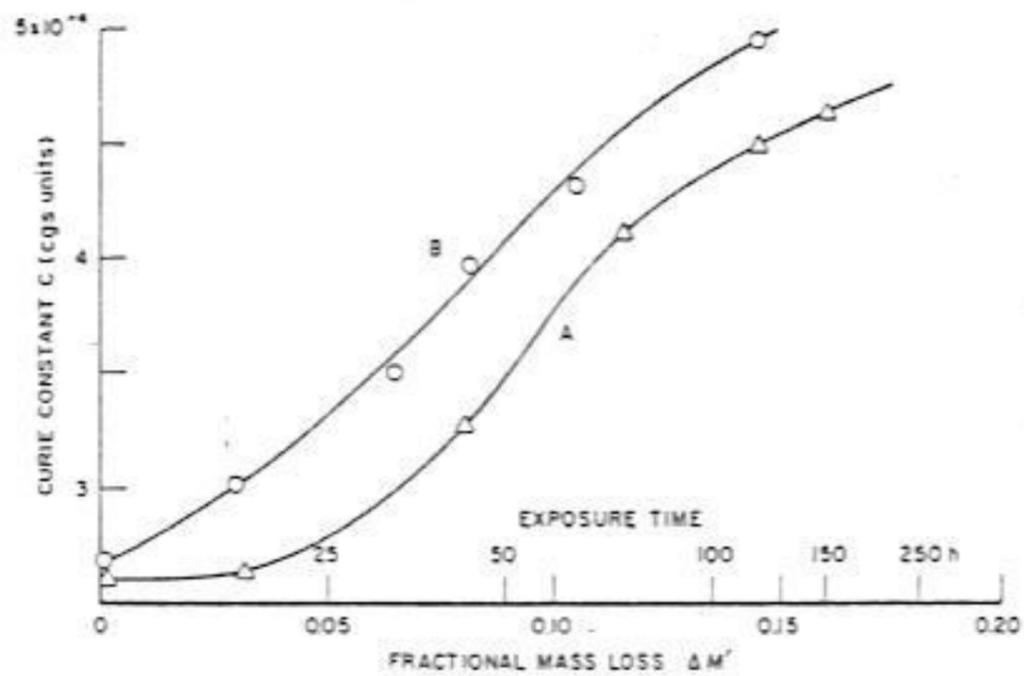


Fig. 3. Graph showing the variation of the Curie constant per gram of starting material with the mass loss of dehydration. The upper abscissa scale roughly indicates the necessary duration of vacuum exposure at 25°C.

Fig. III-5 : Effet du pompage sur la constante de Curie du CMN.

Cet effet a été attribué à un changement du champ cristallin sur l'ion Ce^{3+} conduisant à un accroissement du facteur g associé au doublet fondamental.

En pratique, il suffit de limiter le temps de pompage à température ambiante. Lorsqu'une grande précision est requise, il est utile de vérifier l'étalonnage à l'aide de "points fixes thermométriques" : transitions supraconductrices (Soulen, 1974), transitions A et B' de 3He superfluide (cf. § III-D).

L'effet du champ de mesure alternatif b et du champ extérieur B_0 a été étudié par Dawber et al, (1979) et Hudson, (1979) ; ces auteurs ont mis en évidence les effets dus au temps de relaxation spin réseau T_1 , qui devient supérieur à la période de mesure $\tau \equiv 2\pi \omega^{-1}$ à $T \lesssim 2K$. (Van der Bilt, 1978).

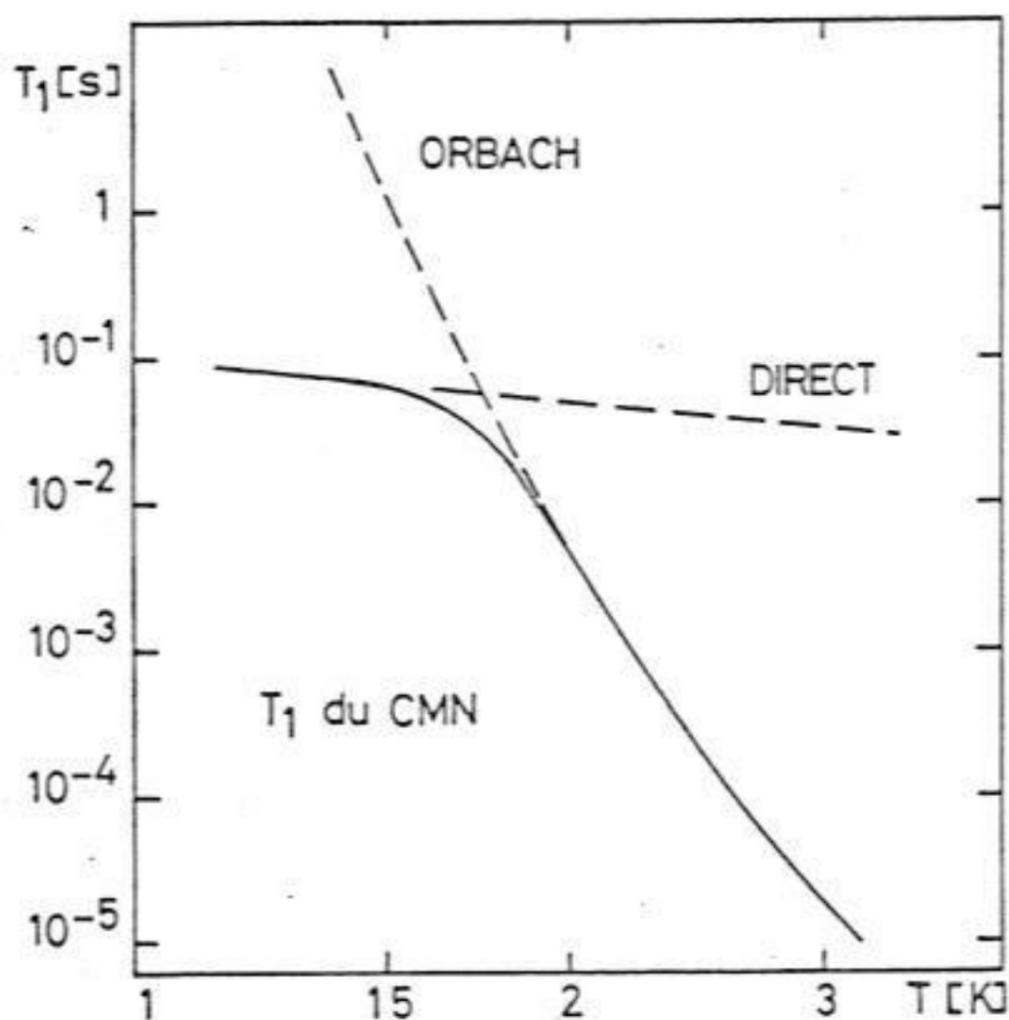


Fig. III-6 : Temps de relaxation T_1 du CMN.

Pour $T \gtrsim 2K$, $T_1 < \tau$, et on mesure χ_T , la susceptibilité isotherme ; en dessous de 2K, $T_1 > \tau$, et la mesure fournit χ_S , la susceptibilité adiabatique, inférieure à χ_T : $\chi_S \approx \chi_T (1 - \frac{1}{8} (b_0/b_i)^2)$ où b_i est le "champ interne".

Pour le CMN, $b_i = 4$ mT ; b_0 , par conséquent, ne devra pas dépasser 0.1 mT ; Pour un courant de mesure de 330 μA , le système de mutuelle que nous utilisons fournit un champ $b_0 < 0.012$ mT.

Mesure de la susceptibilité statique

Au cours d'expériences préliminaires sur l'aimantation de ^3He solide nous avons mesuré la susceptibilité statique du CMN à l'aide d'un magnétomètre à effet Josephson, ou SQUID (Giffard et al. (1972) ; Godfrin (1973) ; Lounasmaa (1974)).

Cet appareil, d'une extraordinaire sensibilité, est particulièrement adapté aux petits échantillons : quelques mm^3 de CMN suffisent ; toutefois, la valeur de Δ peut être affectée par le manque de statistique sur la "moyenne de poudres".

La figure III-7 représente la tension du SQUID (proportionnelle à l'aimantation du CMN) en fonction de l'inverse de la température (fournie par l'inductance mutuelle de CMN décrite précédemment).

Le SQUID est environ 100 fois plus sensible que la mutuelle, mais l'incertitude due à celle-ci n'est pas décelable à l'échelle du graphe.

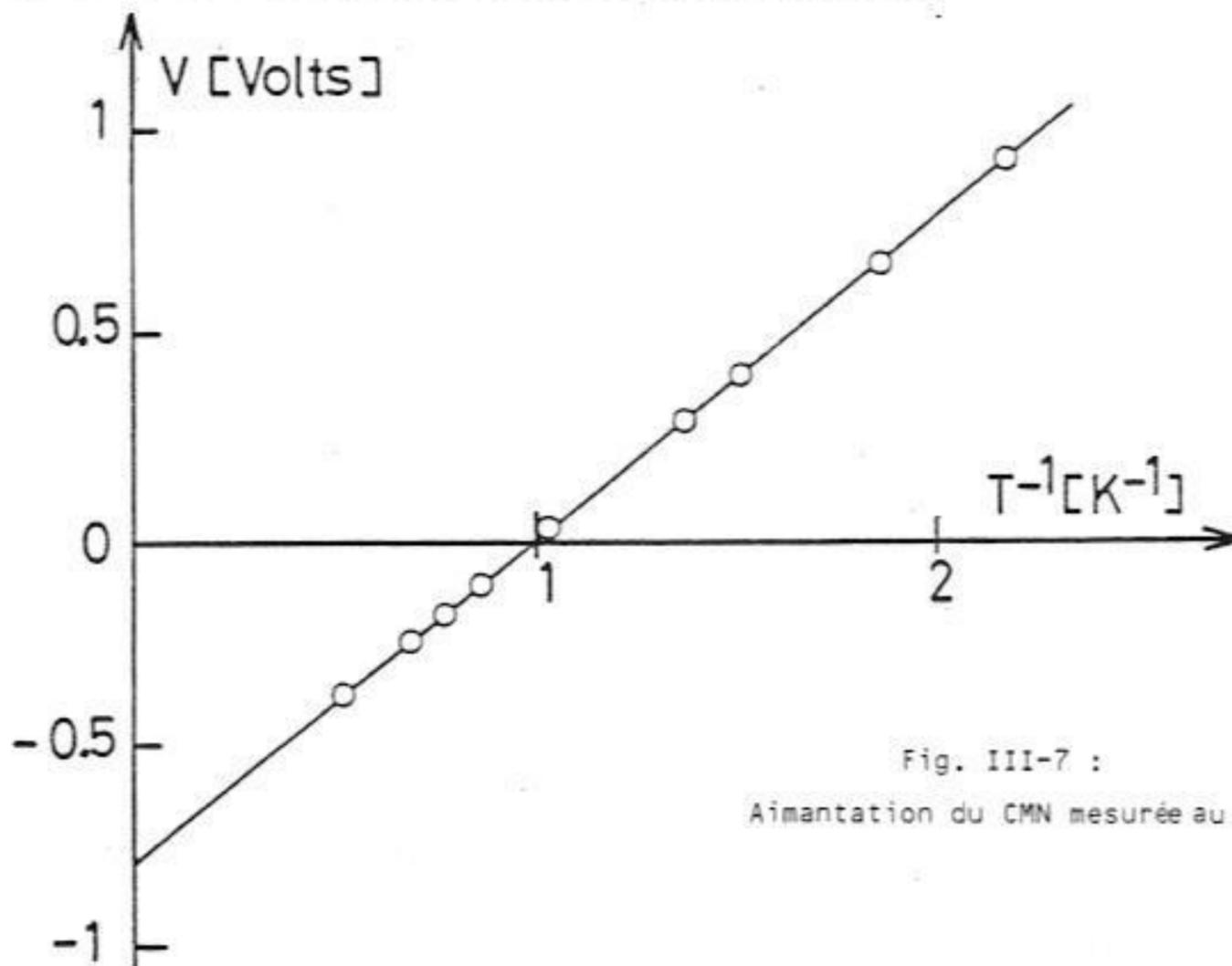


Fig. III-7 :
Aimantation du CMN mesurée au SQUID.

Le système de mesure est très simple ; on trouvera une description détaillée dans les trois références citées précédemment.

Thermométrie magnétique avec du CMN dilué au lanthane

Il est possible de diminuer l'interaction dipolaire entre les ions Ce du CMN en les remplaçant par du Lanthane ; on obtient ainsi un sel dont la température d'ordre est inférieure à celle du CMN : le CLMN

Celui-ci a été étudié par Abraham et al. (1969), Koláč et al. (1973), Fujii et al. (1978) et Paulson et al. (1979). D'après Paulson et al.,

$$T = T'' + 0.1 \text{ mK} \quad \text{pour} \quad T \gtrsim 2 \text{ mK}$$

Nous avons construit une inductance mutuelle (semblable à celle qui a été décrite précédemment), avec du CLMN (5 % de Ce dans 95 % de lanthane.) ; la sensibilité est réduite proportionnellement à la concentration en Cérium, mais demeure supérieure à celle des thermomètres à résonance nucléaire du platine (§ III-C).

III - C - THERMOMETRIE PAR RESONANCE MAGNETIQUE NUCLEAIRE

a) INTRODUCTION

Nous avons montré au paragraphe précédent que les interactions entre spins électroniques, responsables de l'ordre magnétique, limitent l'application à la thermométrie du paramagnétisme électronique.

Les moments magnétiques nucléaires, inférieurs de trois ordres de grandeur aux moments électroniques, peuvent suivre une loi de Curie jusqu'à des températures de l'ordre du microkelvin.

Certaines précautions doivent être prises :

- Si le spin nucléaire J est supérieur à $1/2$, le cristal doit avoir une symétrie cubique, afin d'éviter les interactions quadripolaires électriques (pouvant atteindre 10 mK).

- Le cristal ne doit pas être ordonné magnétiquement, car le champ agissant sur un noyau ne serait plus le champ appliqué B_0 mais la somme de B_0 et du champ interne B_i .

- La présence d'impuretés, surtout si elles sont magnétiques, peut affecter la loi de Curie (Effet Kondo, verre de spin, termes quadripolaires additifs).

$$\chi_n \equiv \frac{\mu_0 M}{B} = \mu_0 N_0 J(J+1) g_n^2 \mu_n^2 / 3k_B V_m T \equiv \frac{C_n}{T}$$

où g_n est le facteur g du noyau, et μ_n le magnéton nucléaire ($g_n = 5.051 \times 10^{-27} \text{ Am}^2$)

Les susceptibilités nucléaires sont par conséquent 10^6 fois inférieures aux susceptibilités électroniques ; elles sont cependant mesurables : en statique, au moyen d'un SQUID (cf. § III-B), ou en dynamique, par résonance magnétique nucléaire (RMN).

Cette dernière méthode est la plus couramment employée, sous deux formes :

continue (EMN - C) ou pulsée (RMN - P).

Une nouvelle technique, la RMN à SQUID, combine les avantages des deux méthodes, mais n'est actuellement employée qu'à faible champ magnétique.

Les principes et les méthodes de la RMN sont décrits en détail par Foke (1956), Abragam (1961), Slichter (1963), Schumacher (1970), Martin et al. (1980), etc... Nous rappelons ici les principales formules dont nous ferons usage par la suite.

b) RMN CONTINUE

L'aimantation d'un système de spins placés dans un champ magnétique statique B_0 orienté suivant l'axe z , et un champ transverse $B_x = 2B_1 \cos \omega t$ (où $B_1 \ll B_0$), peut être décrite par l'équation de Bloch (1946) :

$d\vec{M} / dt = \gamma_n \vec{M} \times \vec{B} - (M_x \vec{i} + M_y \vec{j}) / T_2 - (M_z - M_0) \vec{k} / T_1$ dont les solutions sont :

$$M_z = \frac{\chi B_0}{\mu_0} \frac{1 + (\omega_0 - \omega)^2 T_2^2}{1 + (\omega_0 - \omega)^2 T_2^2 + \gamma_n^2 (B_1)^2 T_1 T_2}$$

$$M_x = (\chi' \cos \omega t + \chi'' \sin \omega t) 2B_1 / \omega_0$$

avec
$$\chi' = \frac{1}{2} \chi \omega_0 \frac{T_2^2 (\omega - \omega_0)}{1 + T_2^2 (\omega_0 - \omega)^2 + \gamma_n^2 B_1^2 T_1 T_2}$$

et
$$\chi'' = \frac{1}{2} \chi \omega_0 \frac{T_2}{1 + T_2^2 (\omega_0 - \omega)^2 + \gamma_n^2 B_1^2 T_1 T_2}$$

χ représente la susceptibilité statique ; γ_n , le facteur gyromagnétique du noyau, défini par la formule $\vec{\mu} = \gamma_n \vec{J}$, μ étant le moment magnétique et J le spin du noyau ; M_0 est la valeur de l'aimantation à l'équilibre.

Dans un champ externe B_0 , le couple sur le moment magnétique $\vec{\mu}$ est $\vec{\mu} \times \vec{B}_0$; il en résulte une précession à la fréquence de Larmor ω_0 autour de \vec{B}_0 :

$$\omega_0 = \gamma_n B_0$$

Les formules précédentes font intervenir deux temps caractéristiques, T_1 et T_2 . Le premier est le temps de relaxation spin-réseau T_1 . Il représente la constante de temps de retour à l'équilibre de l'aimantation longitudinale M_z ; l'énergie dans le champ B_0 étant égale à $-M_z B_0$, T_1 caractérise le transfert d'énergie entre le système de spins dans le champ magnétique (réservoir d'énergie Zeeman) et le "réseau"

(phonons, échange, etc...).

L'aimantation transverse peut relaxer vers sa valeur d'équilibre en un temps $T_2 \ll T_1$: les processus " T_2 " impliquent des interactions entre spins sans modification de l'énergie Zeeman.

La puissance absorbée au champ alternatif (radiofréquence) B_x par le système de spins de volume V est

$$\dot{Q} = 2\omega \chi'' B_1^2 V / \mu_0$$

C'est cette puissance qui est habituellement détectée en RMN continue. A niveau radiofréquence (RF) constant ($B_1 = \text{Cste}$), elle passe par un maximum pour $f = \frac{\omega_0}{2\pi}$ ("fréquence de résonance"). On obtient ainsi en fonction de la fréquence (ou du champ magnétique B_0 , puisque $\omega_0 = \gamma_n B_0$) une "raie d'absorption".

La largeur de raie à mi-hauteur (puissance moitié) est

$$2\Delta\omega = \frac{2}{T_2} (1 + \gamma_n^2 B_1^2 T_1 T_2)^{1/2}$$

Le signal d'absorption maximum est obtenu pour une valeur de B_1 telle que

$$\gamma_n^2 B_1^2 T_1 T_2 = 1.$$

A la résonance $\chi'' = \chi'_{\omega_0} T_2 = 1/2 \chi' \gamma_n B_0 T_2$, ce qui implique $\chi'' \sim \chi' (\omega_0 / \Delta\omega)$; le facteur $(\omega_0 / \Delta\omega)$ est généralement très important (> 100), ce qui contribue à augmenter la sensibilité de la RMN par rapport aux méthodes classiques de mesure de susceptibilité.

Les expressions obtenues ci-dessus ne sont valables que pour les systèmes obéissant aux équations de Bloch, c'est-à-dire ceux qui présentent des interactions donnant lieu à des relaxations exponentielles caractérisées par T_1 et T_2 . Elles restent approximativement valables dans le cas général. En pratique, le niveau de radiofréquence B_1 est limitée à de faibles valeurs, de sorte que

$$\gamma_n^2 B_1^2 T_1 T_2 \ll 1$$

L'aimantation M_2 est alors voisine de l'aimantation à l'équilibre M_0 : les transitions induites par la RF ne perturbent pas de façon appréciable la population des niveaux Zeeman. On dit que "la raie n'est pas saturée", ou que la température des spins est égale à celle du réseau.

Cette condition est évidemment nécessaire lors de mesures d'aimantation

en fonction de la température par RMN.

L'inhomogénéité du champ magnétique B_0 contribue à l'élargissement de la raie de résonance : si l'inhomogénéité est ΔB_0 , la largeur de raie sera $2\Delta\omega = \gamma_n \Delta B_0$, et il faut remplacer T_2 , dans les équations précédentes, par T_2^H , (sauf dans le facteur de saturation $\gamma_n^2 B_1^2 T_1 T_2$; une discussion détaillée de la largeur de raie, malheureusement négligée dans la plupart des ouvrages sur la RMN, est donnée par Abragam, p. 48, 49 ; 1961) où

$$1/T_2^H = 1/T_2 + \frac{\gamma_n \Delta B_0}{2}$$

Le signal maximum, sans saturation (c-à-d $B_1 \ll (\gamma_n \sqrt{T_1 T_2})^{-1}$), sera :

$$\dot{Q} = 2\omega \chi'' B_1^2 / \mu_0 = 2\omega_0 \chi'' B_1^2 / \mu_0 = 2\gamma_n B_0 \chi'' B_1^2 / \mu_0$$

soit

$$\dot{Q} = \frac{1}{2} \gamma_n^2 B_0^2 B_1^2 \chi'' T_2^H / \mu_0$$

Pour N spins nucléaires suivant une loi de Curie :

$$\dot{Q} = \frac{1}{2} J(J+1) \hbar^2 N \gamma_n^4 B_0^2 B_1^2 T_2^H / 3k_B T$$

En général B_1 est choisi de sorte que $B_1^2 \gamma_n^2 T_1 T_2 \sim 1$ (près de la saturation)

$$\dot{Q} \sim \frac{1}{6} \frac{J(J+1) \hbar^2 N \gamma_n^2 B_0^2 T_2^H}{k_B T_1 T_2 T}$$

Afin d'avoir une bonne sensibilité, il est par conséquent souhaitable d'avoir :

- un champ B_0 (donc une fréquence) de travail élevé,
- un grand γ_n ,
- un T_2^H important, ce qui implique un champ B_0 homogène et T_2 relativement long,
- T_1 doit être court, afin de permettre un champ B_1 important sans saturer la résonance.

La table III-1 permet de comparer les valeurs de J, μ, γ_n, T_1 , et T_2 pour le ^{63}Cu et le ^{195}Pt . D'après les critères énoncés ci-dessus, il est évident que le platine présente d'excellentes qualités pour son application à la thermométrie. (Lounasmaa (1974), Alloul et Froideveaux (1967), Aalto et al. (1973)).

TABLE III-1	^{63}Cu	^{195}Pt
J	3/2	1/2
μ/μ_n	2.2206	0.6004
$\frac{10^{-6}}{2} \gamma_n [\text{rad T}^{-1}\text{s}^{-1}]$	11.285	9.153
$T_1 T [\text{smK}]$	1090	30
$T_2 [\mu\text{s}]$	80	1000

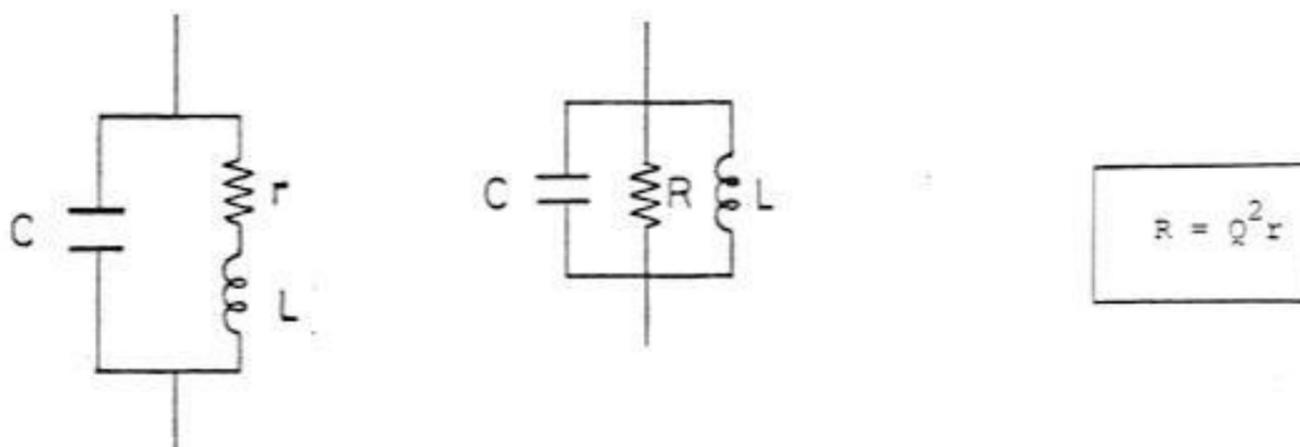
La détection de la puissance absorbée s'effectue au moyen d'un Q-mètre.

L'échantillon est placé dans une bobine (d'inductance L et de résistance r). Une capacité C additionnelle permet de faire résonner le circuit à la fréquence de résonance ω_c .

L'ensemble est alimenté par un générateur de radiofréquence (source de courant RF). La tension sur le circuit résonant est amplifiée puis détectée.

Lorsque le champ magnétique extérieur passe par la valeur $B_0 = \omega_c / \gamma_n$, c.à.d $\omega_0 = \omega_c$, l'absorption d'énergie du champ RF de la bobine par le système de spins lors de la résonance nucléaire se traduit par un changement du signal de sortie, la raie d'absorption RMN.

Pour un amortissement faible, le circuit RLC avec une résistance "série" r est équivalent au circuit "parallèle" :



Où Q est le facteur de surtension ; $Q = 2\pi \frac{\text{Energie emmagasinée en crête dans } L \text{ ou } C}{\text{Energie dissipée par période}}$

$$Q = \frac{1}{C \omega_c r} = C \omega_c R = \frac{L \omega_c}{r} = \frac{R}{L \omega_c}$$

$$L = (1 + \chi) L_0$$

où $\chi \equiv \chi' - i\chi''$, l'inductance de la bobine est donc complexe.

N.B. : dans le système c.g.s cette formule s'écrit $L = (1 + 4\pi\chi) L_0$.

Si l'échantillon ne remplit pas tout l'espace, χ doit être multiplié par le facteur de remplissage η ; celui-ci peut-être défini par la formule :

$$\eta = \frac{\int_V B_1^2 dV}{\int B_1^2 dV}$$

où la première intégrale est prise sur le volume de l'échantillon (V), et la deuxième sur tout l'espace.

Des formules pratiques pour le calcul de η sont données par Hill et Richards (1968).

L'impédance de la bobine est $Z_L = r + i\omega [1 + \eta(\chi' - i\chi'')] L_0$, soit :

$$Z_L = (r + \omega L_0 \eta \chi'') + i(1 + \eta \chi') \omega L_0$$

L'impédance du circuit parallèle RLC équivalent est :

$$Z(\omega) = \left[\frac{1}{r + jL_0 \omega (1 + \chi \eta)} + jC\omega \right]$$

et si le circuit est accordé à la fréquence $\omega_c = (LC)^{-1/2}$ (Abraham, p. 79, (1961))

$$Z(\omega_c) = R \left[\frac{1 + jQ\eta\chi}{1 + \eta\chi - j/Q} \right]^{-1}$$

Pour $Q \gg 1$ et $Q\eta\chi \ll 1$ (ces conditions sont généralement satisfaites), on obtient :

$$Z = R [1 - j\eta Q\chi] = R [(1 - \eta Q\chi'') - j(\eta Q\chi')]$$

Il y a une absorption supplémentaire $R\eta Q\chi''$, en phase avec le courant i , et une dispersion $R\eta Q\chi'$.

Au premier ordre, la tension sur le circuit à la fréquence ω_c est $V = V_0 + \Delta V$, où $\Delta V = -V_0 \eta Q\chi''$ (on néglige les termes en χ'^2 ou χ''^2 dans le calcul de $|Z|$), et $V_0 = R i_0$.

La variation relative de la tension de sortie est donc :

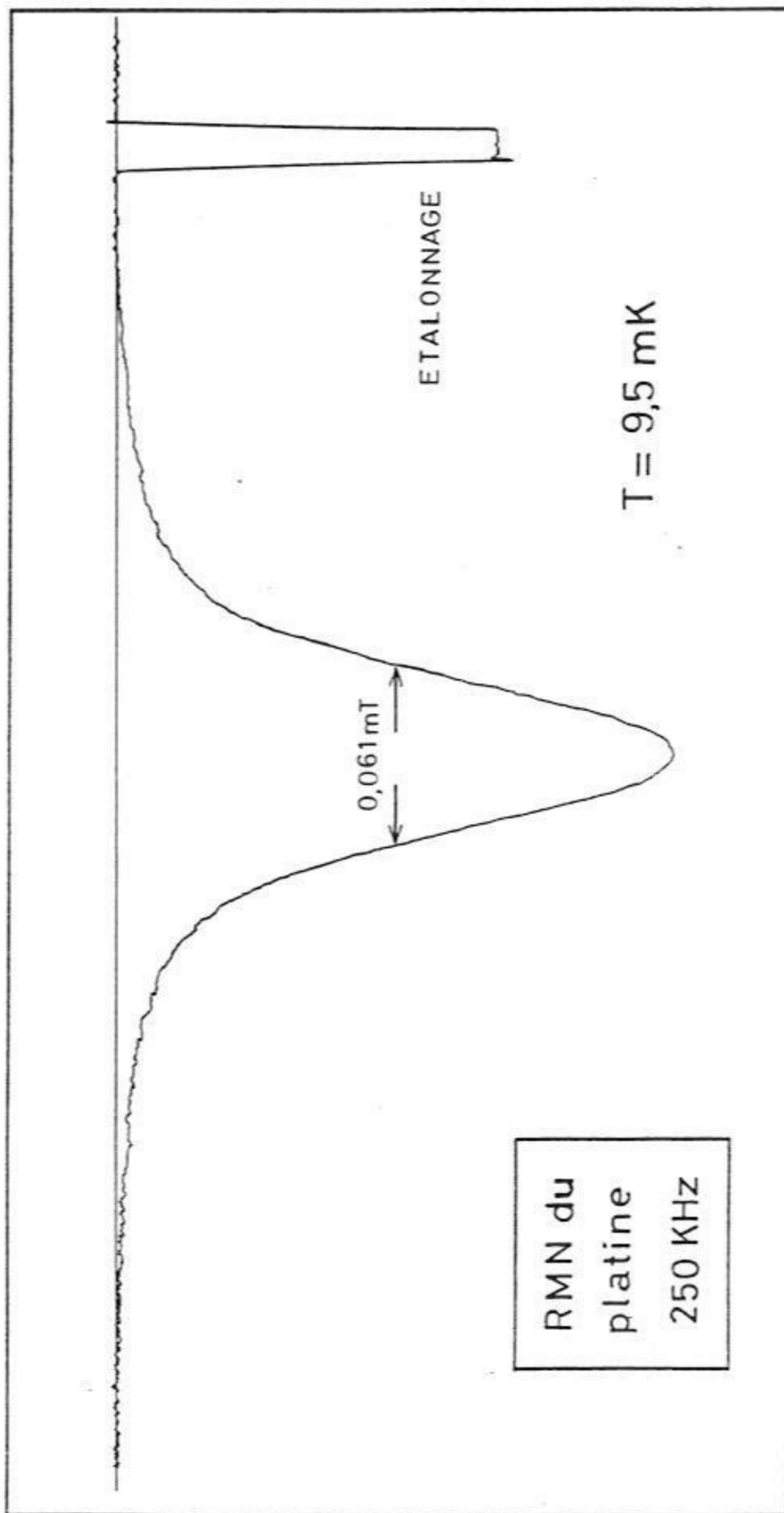


Fig. III-9 : Raie d'absorption du platine à 250 KHz.

$$\boxed{\frac{\Delta V}{V_0} = \eta Q \chi''} \quad \text{soit} \quad \frac{\Delta V}{V_0} = \frac{1}{2} \chi \omega_0 T_2^* \eta Q$$

La hauteur du signal d'absorption est donc proportionnelle à la susceptibilité statique χ ; le nom de Q-mètre appliqué à ce système de détection trouve sa justification dans cette formule.

Les approximations effectuées dans les calculs exigent de travailler avec des valeurs de $\Delta V / V_0$ petites ($\approx 10^{-2}$). Afin de détecter ces faibles variations, on oppose un signal d'amplitude constante, soit en alternatif, avant la détection (dans ce cas, elle est obligatoirement synchrone), soit en continue après la détection. La tension d'opposition provient en général du même générateur RF ; on réduit ainsi les variations du niveau de sortie provenant du générateur.

Lorsque la largeur de raie ($\sim T_2^{*-1}$) varie, la hauteur du signal $\Delta V / V_0$ étant inversement proportionnelle à celle-ci, il suffit d'effectuer le produit de $\Delta V / V_0$ par la largeur de raie pour obtenir une quantité proportionnelle à χ .

Dans le cas général (raies dont la forme varie, ou à forme complexe) on mesure l'intégrale de $\Delta V / V_0$ sur la raie d'absorption.

Afin d'éviter de mesurer V_0 et V (deux tensions pouvant différer de plusieurs ordres de grandeur, on emploie un signal d'absorption de référence ΔV_0 (de l'ordre de ΔV , soit 0.5 % de V_0 en général), obtenu au moyen d'une atténuation du même rapport sur le courant i_0 . Les amplitudes de signal $\Delta V / V_0$ sont normalisées à celle du signal de référence, afin de s'affranchir des variations d'amplification du système.

La figure III-9 représente une raie d'absorption de ^{195}Pt à la fréquence $f = 250 \text{ KHz}$, et une température de 9.5 mK. Le champ magnétique à la résonance est de 7.8 mT.

Nous avons employé quatre Q-mètres au cours de nos mesures, suivant la fréquence et la sensibilité requises par les expériences :

1) Q - METRE W.G. CLARK

Cet instrument a été conçu et mis au point par W.G. Clark, au cours de son séjour à Grenoble. La gamme de fréquences d'utilisation s'étend de 50 KHz à 28 MHz. Des charges "bande large" ou "bande étroite" permettent de choisir la fréquence de travail et la sélectivité.

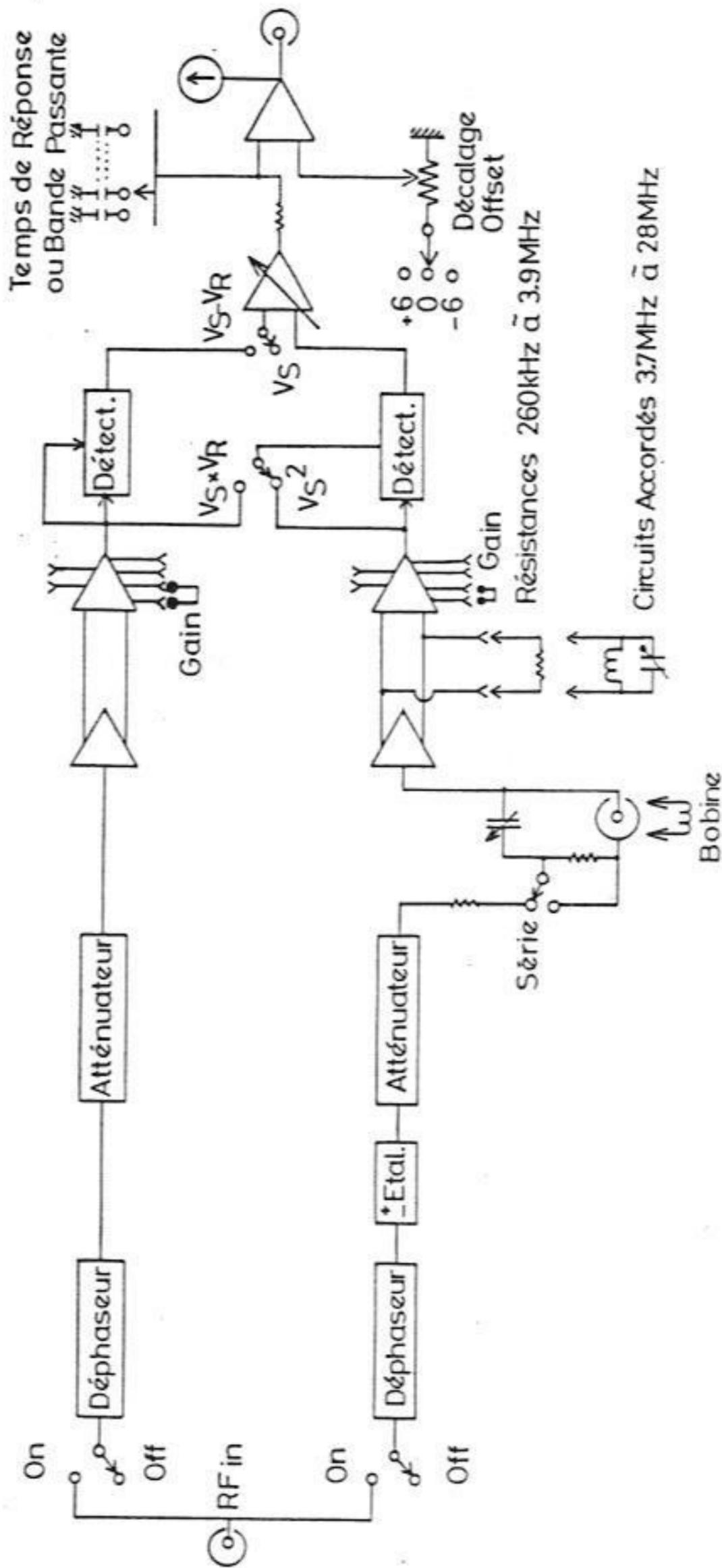


Fig. III-10 : Q-mètre W.G. Clark.

La tension sur le circuit résonnant est de $\sqrt{5}$ à 100μ Volts. Le schéma en blocs du circuit est donné sur la figure III-10.

2) Q - METRE A DETECTION SYNCHRONE PAR 124 A

Au-dessous de 200 KHz, un meilleur rapport signal/bruit est obtenu avec un circuit extrêmement simple, utilisant une détection synchrone PAR 124A :

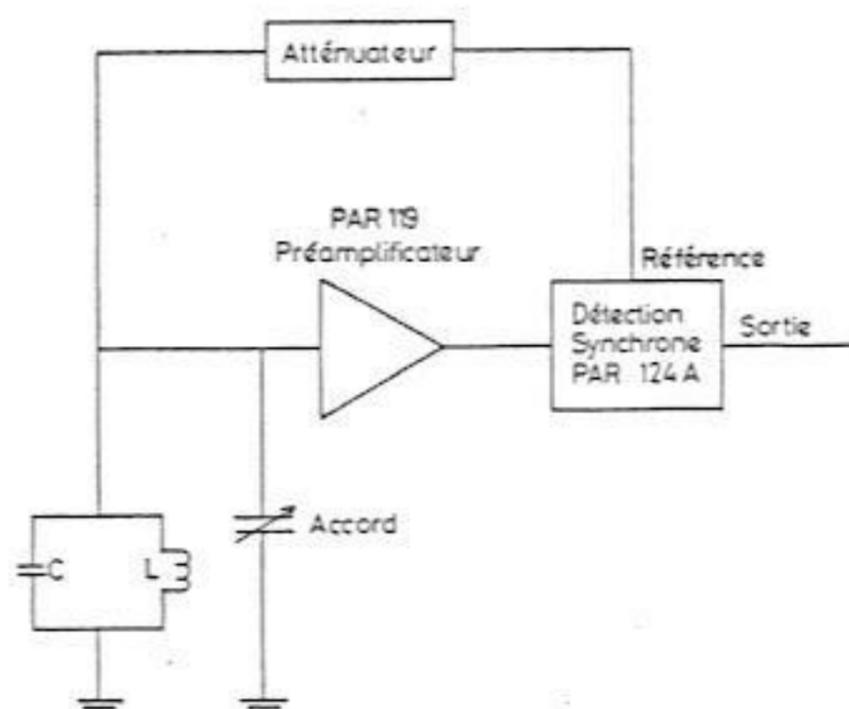


Fig. III-11 : Q-mètre à détection synchrone PAR 124 A.

3) Q - METRE Q-1

Cet instrument est une version modifiée du Q-mètre employé par M. Chapellier. La tension sur le circuit résonnant est amplifiée par le préamplificateur à large bande et haute impédance d'entrée, (dû à J.L. Bret) (figure III-12a).

Deux amplificateurs bas niveau, large bande "BCD" (types 5-35-2 et 5-20-2) sont suivis d'un détecteur à diode à faible tension seuil (Diode Schottky 2800), (fig. III-12b).

La tension d'opposition à la sortie du détecteur est obtenue soit à partir d'une alimentation séparée, soit au moyen d'un deuxième détecteur branché sur le même générateur RF, lorsque la compensation de la dérive du générateur est nécessaire.

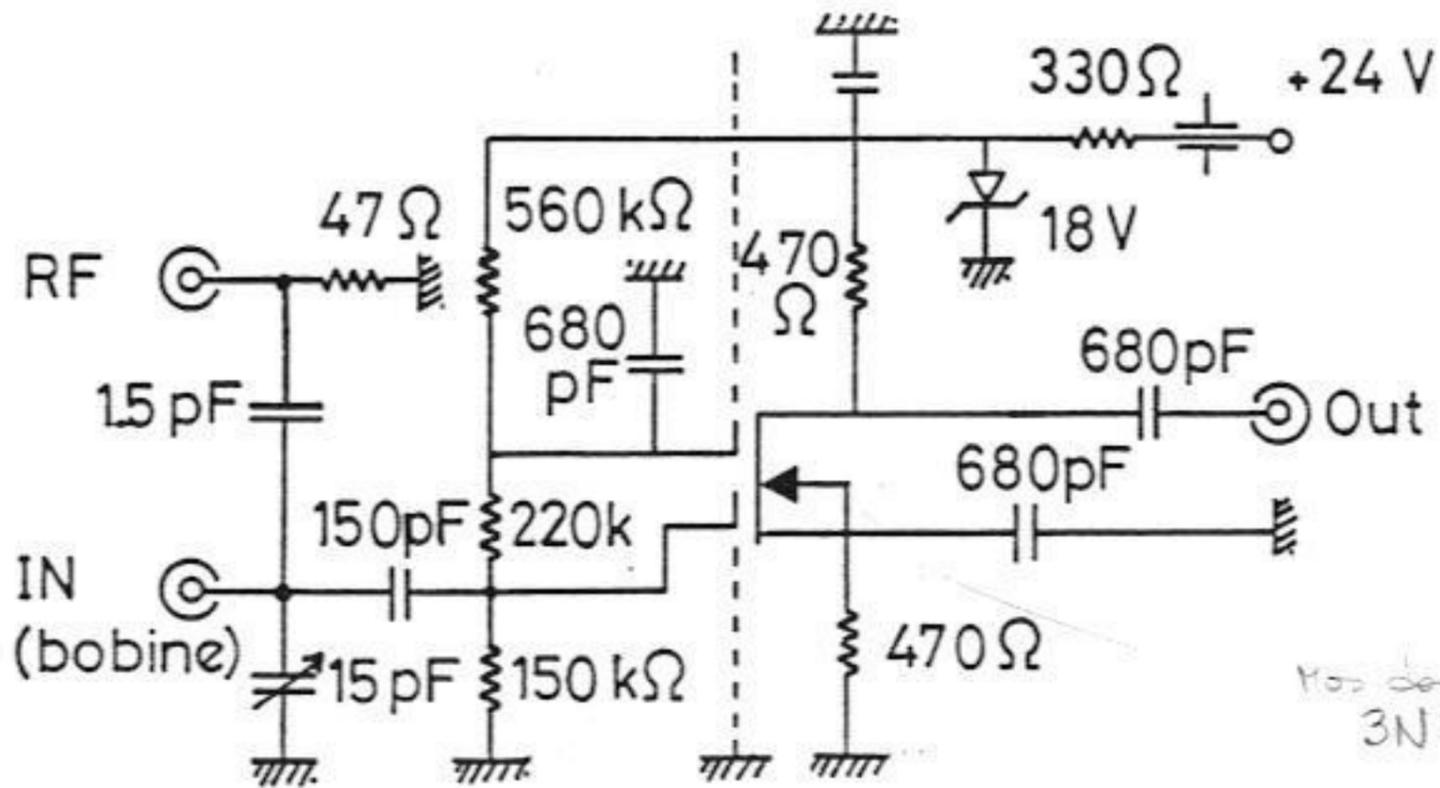
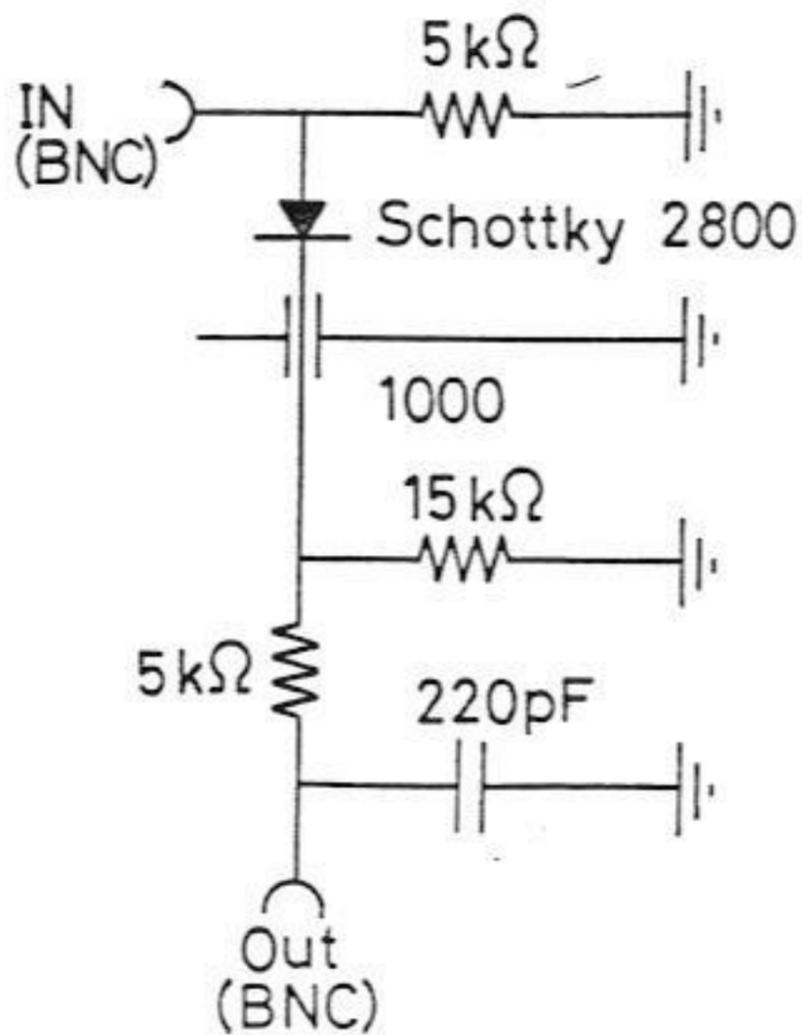


Fig. III-12a : Préamplificateur PA1.

Fig. III-12b : Détecteur D1..



Le diagramme en blocs de ce Q-mètre est représenté sur la figure III-13. Les valeurs de L et C correspondent à des mesures sur ^3He à 230 MHz.

Ce Q-mètre est utilisable entre 10 et 400 MHz ; la tension sur le circuit résonnant est comprise entre 1 et 2 mV efficaces, afin d'obtenir une tension de sortie compatible avec une détection linéaire. Avec une bande passante de 10 Hz, le bruit est $\leq 50 \mu\text{V}$ sur un signal de 0.75 Volts en sortie et 1.3 mVeff. sur le circuit résonnant.

4) Q-METRE Q-2

Avec J.L. Bret, nous avons modifié le Q-mètre précédent, afin d'augmenter la sensibilité et la plage de détection linéaire.

La chaîne de signal est identique au Q-mètre Q-1 ; la chaîne de référence est munie d'un trombone afin d'ajuster la phase du signal de référence. Les deux chaînes sont alimentées par un générateur RF au moyen d'un diviseur Mini-Circuits ZMSC 2-1.

Un mélangeur Mini-Circuits ZLW 1-1 redresse le signal (la référence et le signal ayant la même fréquence) ; la phase est ajustée au moyen du trombone en maximisant le signal de sortie.

Une opposition en tension continue permet d'observer les variations ΔV (signal RMN) de la tension de sortie V.

Le bruit est inférieur à $5 \mu\text{V}$ (avec une bande passante de 10 Hz) sur un signal de 100 mV en sortie, et 0.3 mV efficaces sur le circuit résonnant.

Ces caractéristiques sont maintenues lorsque le Q-mètre est couplé au système d'acquisition de données décrit ci-dessous.

c) SYSTEME D'ACQUISITION DE DONNEES

Le signal RMN fourni par le Q-mètre se traduit en un graphe d'absorption, c-à-d une courbe en forme de cloche, en fonction du champ magnétique (ou de la fréquence). L'aire de la courbe d'absorption peut être mesurée par découpage, par pesée, au planimètre, etc.

Ces méthodes mettent la patience de l'expérimentateur à rude épreuve, et limitent le nombre et la précision des mesures.

Nous avons mis au point un système de RMN permettant d'effectuer les mesures, emmagasiner et analyser les résultats ; ce travail a été réalisé avec MM. J.L. Bret, J.L. Chemin et B. Waksman.

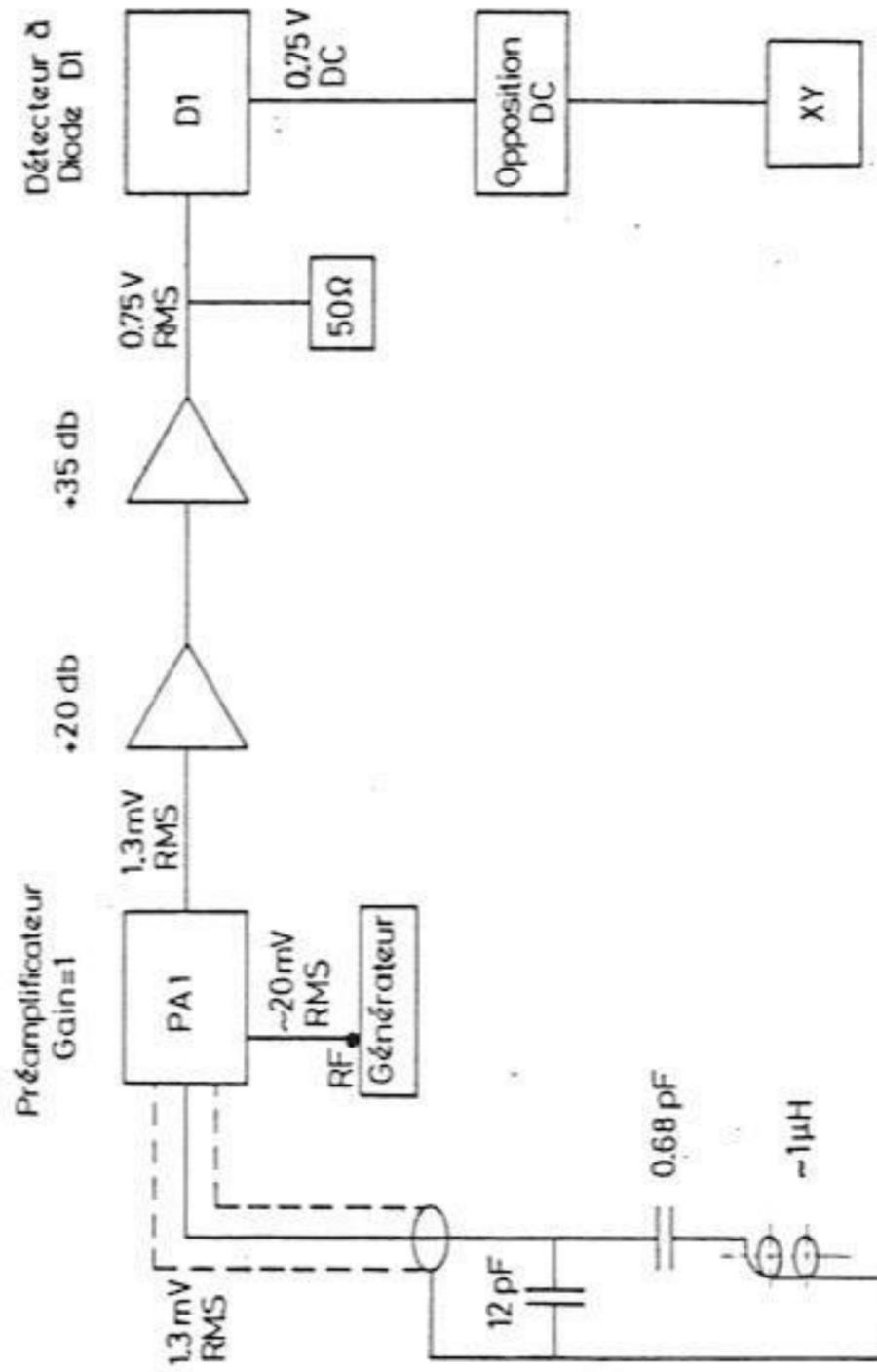
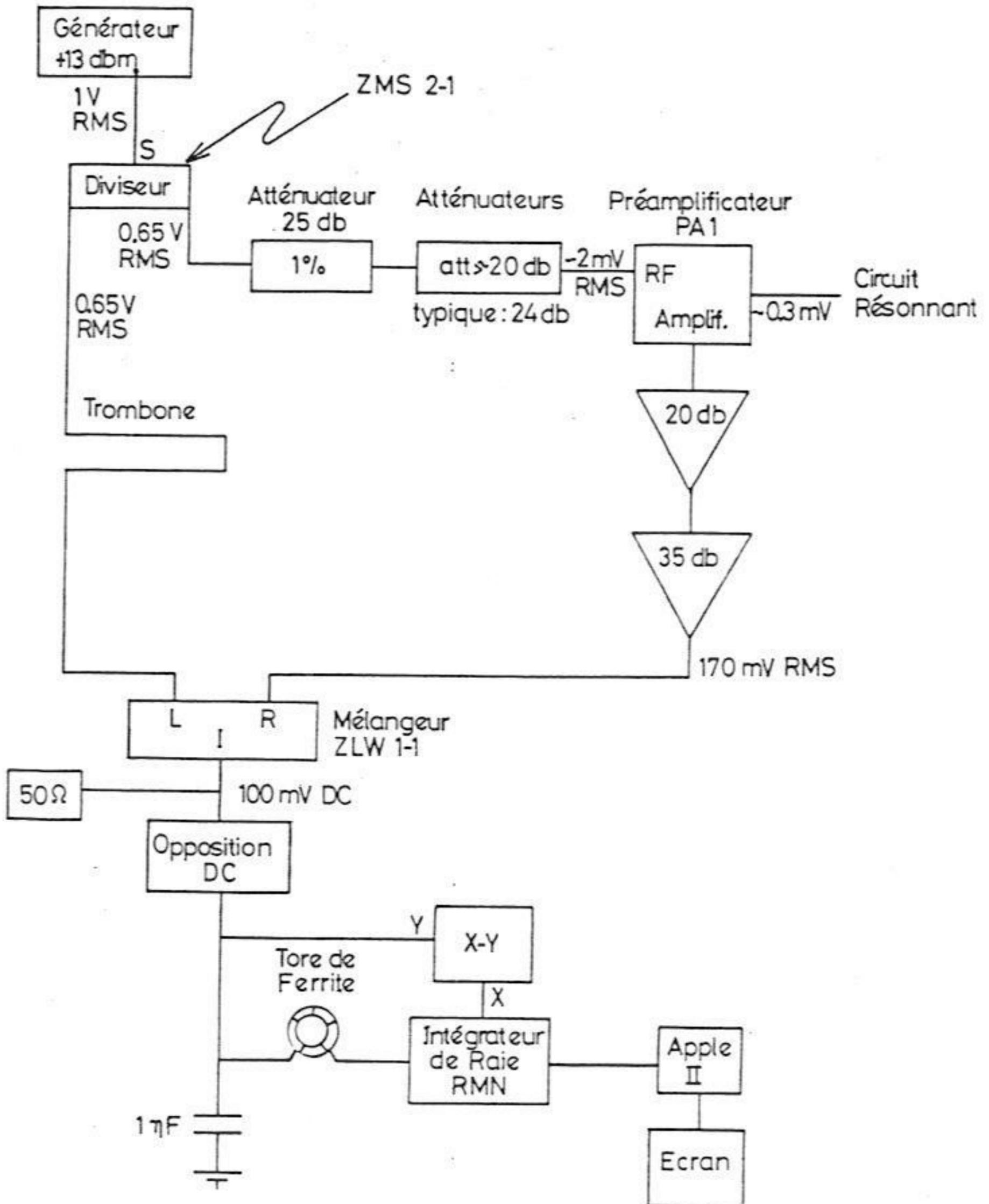


Fig. III-13 : Q-mètre Q1.

Fig. III-14 : Q-mètre Q-2.



L'acquisition de données et le calcul sont effectués par un mini ordinateur APPLE II et un système de disquettes.

Un tiroir de contrôle génère un signal de balayage du champ magnétique (ou de la fréquence) et déclenche l'ordinateur. Celui-ci effectue 1024 mesures sur la raie RMN ; les 100 premières et les 100 dernières permettent de déterminer la "ligne de base" (c-à-d la tension sans absorption RMN), même s'il existe une dérive de tension.

L'aire de la courbe sous la ligne de base est calculée et normalisée suivant le signal étalonné (absorption de référence décrite précédemment) et suivant la constante expérimentale reliant la tension de balayage au champ magnétique de balayage.

La courbe est affichée sur un écran de visualisation, ainsi que le résultat de l'intégration ; l'ensemble est enregistré sur disquette, ce qui permet une comparaison immédiate de plusieurs raies RMN.

THERMALISATION DE L'ECHANTILLON

Le refroidissement du cuivre ou du platine utilisés en thermométrie n'est pas un problème simple ; a fortiori, celui de le thermaliser sur l'échantillon dont on veut mesurer la température.

Dans ^3He , liquide ou solide, il suffit d'utiliser de la poudre de platine ; les grains ($\approx 10 \mu$) présentent une résistance thermique de Kapitza R_K plus faible, par augmentation de la surface d'échange.

Les puissances de mesure devront être très faibles, surtout aux plus basses températures ($R_K \propto T^{-3}$), afin d'éviter la saturation de la raie.

Ce problème est crucial en RMN continue, la mesure exigeant l'irradiation RF du système pendant des temps de l'ordre de la seconde au moins.

Pour une poudre d'une taille de grains de l'ordre de 4μ , la surface pour 0.1 cm^3 est de l'ordre de 0.1 m^2 (pour un empilement compact de sphères dures la surface est $S = 4.44 D^{-1} \text{ cm}^2/\text{cm}^3$, où D est la taille des grains en cm).

La résistance de Kapitza étant de l'ordre de $10^{-2} \text{ T}^{-3} \text{ K}^4 \text{ m}^2 \text{ W}^{-1}$, l'élévation de température ΔT lors de la mesure est d'environ $10^{-1} \text{ T}^{-3} \text{ K}^4/\text{W}$. A 10 mK, pour avoir $\Delta T / T \approx 1\%$ (c-à-d- $\Delta T = 0.1 \text{ mK}$) la puissance de mesure est limitée à $\dot{Q} \approx 1 \text{ nW}$.

La mesure de la température d'échantillons métalliques peut s'effectuer au moyen de fils de platine, avec un contact thermique convenable (Buchal et al. 1978).

CALCUL DES BOBINES DE RMN

Pour un solénoïde infini, l'inductance en Henrys est donnée par l'expression

$$L = \mu_r \mu_0 N^2 S/l = 10^{-7} \pi^2 N^2 \frac{D^2}{l} \quad (\text{S.I.})$$

où N est le nombre total de spires, S la section en m^2 , l la longueur de l'enroulement et D le diamètre (en mètres).

Pour un solénoïde court, $L = 0.987 \cdot 10^{-6} N^2 D^2 K/l$, où K est le facteur de Nagaoka (Grover, 1964 et Grivet, 1960).

La formule d'Esnault Pelterie :

$$L = 0.987 \cdot 10^{-6} N^2 \left(\frac{D^2}{l} \right) (1 + 0.46 \frac{D}{l})^{-1}$$

fournit des valeurs avec une approximation satisfaisante.

Le facteur de surtension, $Q = \omega L/r$, dépend de la fréquence non seulement par le facteur ωL , mais aussi par la dépendance de r avec la fréquence (effet de peau).

La longueur de pénétration de peau δ est égale à $\delta = (2 / \omega \mu_r \mu_0 \sigma)^{1/2}$ où σ est la conductivité en $(\Omega \cdot \text{m})^{-1}$.

Pour le cuivre, $\sigma = 5.8 \times 10^7 (\Omega \cdot \text{m})^{-1}$ dans le vide ($\mu_r = 1$) à 20°C .

Fréquence	50 Hz	10 KHz	1 MHz	100 MHz	10 GHz
λ (m)	6×10^6	3×10^4	300	3	3×10^{-2}
δ (à 20°C)	8.5 mm	0.6 mm	60 μ	6 μ	0.6 μ
δ_{BT}	0.85 mm	60 μ	6 μ	0.6 μ	0.06 μ

Le tableau ci-dessus donne les valeurs typiques de δ en fonction de la fréquence, pour $T = 20^\circ\text{C}$ et à très basses températures (on a supposé une résistivité résiduelle inférieure de deux ordres de grandeur à ρ (20°C), (RRR = 100).

Soit a le rayon du fil. A basses fréquences ($a \ll \delta$), la résistance du fil

est $R = R_0 \left[1 + \frac{1}{48} \frac{a^4}{\delta^4} (1 + 12 a^2 / s^2) \right]$ où $R_0 = (\pi a^2 \sigma)^{-1}$ et s le pas de l'enroulement. (Cette formule n'est valable que pour $a / s < 1/8$).

L'inductance est également modifiée : $L = L_0 \left(1 - \frac{1}{96} \frac{a^4}{\delta^4} \right)$.

A HAUTES FREQUENCES ($a \gg \delta$)

$$R = R_0 \left[a/2 \delta (1 + 2a^2 / s^2) \right]$$

Cette formule n'est valable que pour $a/s < 1/8$; pour un enroulement serré la correction par effet de proximité est plus importante :

$$R = R_0 \left[(a/2\delta) K' \{ d/s, 1/D \} \right]$$

K' a la valeur maximum 5.7 pour $a/s = 1/2$ et $1/D = 0.7$:

		1 / D				
		K	1	2	3	4
$2a / s$	1	5.5	4	3.7	3.5	
	0.6	2	2	2	2	
	0.2	1.1	1.1	1.1	1.1	

L'inductance en Henrys d'une spire unique de diamètre D (en mètres), en fil de diamètre d , à hautes fréquences ($d \gg \delta$), est :

$$L = 2 \pi 10^{-7} D \left[\ln (8D/d) - 2 \right]$$

d) RMN PULSEE

Les techniques de RMN pulsée et leur application à la thermométrie à très basses températures ont été décrites dans les ouvrages suivants : Abragam (1961), Slichter (1963), Schumacher (1970), Lounasmaa (1974), ainsi que dans plusieurs publications : Walstedt et al. (1965), Aalto et al. (1972 et 1973), Bloyet et al. (1973 a et b), Symko (1969 et 1973), Avenel et al. (1970), Hensel et Smith (1974), Buchal et al. (1978).

En RMN pulsée, le champ radiofréquence transverse B_1 est appliqué pendant un temps τ inférieur aux temps caractéristiques T_1 et T_2 . Dans le champ extérieur B_0 ,

les spins précessent autour de B_0 à la fréquence $\omega_0 = \gamma_n B_0$. Le champ transverse B_1 peut être décomposé en la somme de deux champs tournants B_1^+ et B_1^- , avec des vitesses angulaires $+\omega$ et $-\omega$; lorsque $\omega = \omega_0$, B_1^+ apparaît comme un champ statique dans le repère tournant à la vitesse ω_0 lié aux spins, et son effet est important: les spins précessent autour de B_1^+ (L'effet de B_1^- , à la fréquence 2ω , est négligeable).

L'aimantation, initialement égale à \vec{M}_0 et orientée suivant \vec{B}_0 à l'équilibre, est basculée d'un angle $\hat{\theta}$ par rapport à \vec{M}_0 :

$$\hat{\theta} = \gamma_n B_1 \tau$$

On utilise habituellement soit des impulsions qui perturbent faiblement le système ($\hat{\theta} \ll 3^\circ$), soit des impulsions importantes ("pulses à 90 ou 180°"), dont l'utilisation est décrite par la suite.

La longueur des pulses est en général un multiple d'une période RF; pour $\tau = 1$ période = $2\pi \omega^{-1}$, $\hat{\theta} = 2\pi B_1 / B_0$.

Après l'impulsion, l'aimantation M précesse, autour du champ statique à la fréquence ω_0 ; M a une composante longitudinale $M_z = M_0 \cos \hat{\theta}$ et une composante transverse $M_t = M_0 \sin \hat{\theta}$. Le retour à l'équilibre est décrit par les équations de Bloch: M_z tend vers M_0 avec une constante de temps T_1 , alors que M_t s'annulera avec une constante de temps T_2 .

La tension sur la bobine, en fonction du temps, présentera (voir figure III-15):

- i) un grand maximum, dû au pulse RF de longueur τ ; ce signal sature en général les amplificateurs de l'électronique destinée à mesurer la tension sur le circuit résonnant,
- ii) une décroissance exponentielle de ce signal, avec une constante de temps $\tau_e = 2Q / \omega$, caractéristique du circuit résonant.
- iii) Lorsque les signaux précédents ont décréu, la force électromotrice \mathcal{E} induite par l'aimantation transverse $M_t = M_0 \sin \hat{\theta}$ précessant dans la bobine est:

$$\mathcal{E} = \mu_0 M_0 A \omega \sin \hat{\theta} \sin \omega t = \chi B_0 A \omega \sin \hat{\theta} \sin \omega t$$

soit

$$|\mathcal{E}| = \mu_0 M_0 A \omega \sin \hat{\theta} = \chi B_0 A \omega \sin \hat{\theta}$$

où A est la surface totale de la bobine traversée par le flux dû à M_t :

$A = \pi \phi^2 N / 4$, où ϕ est le diamètre de l'échantillon, et N le nombre de spins.

Cette formule est habituellement donnée dans le système mixte d'unités :

$$|\varepsilon| = 10^{-8} 4 \pi M \cdot A \cdot \omega \cdot \sin \hat{\theta} = 10^{-8} 4 \pi \chi \cdot B_0 \cdot A \cdot \omega \cdot \sin \hat{\theta}$$

(volts) (emu) (cm²) (rad/s) (emu) (G) (cm²)

Dans un circuit résonnant rLC, la tension est donnée par la formule $V = Q\varepsilon$; on aura donc :

$$|V| = \mu_0 M_0 QA \omega \sin \hat{\theta} = \chi B_0 QA \omega \sin \hat{\theta}$$

On observe par conséquent un signal dû à l'aimantation transverse, décroissant en général de façon approximativement exponentielle. La constante de temps (τ_M) peut avoir des causes diverses :

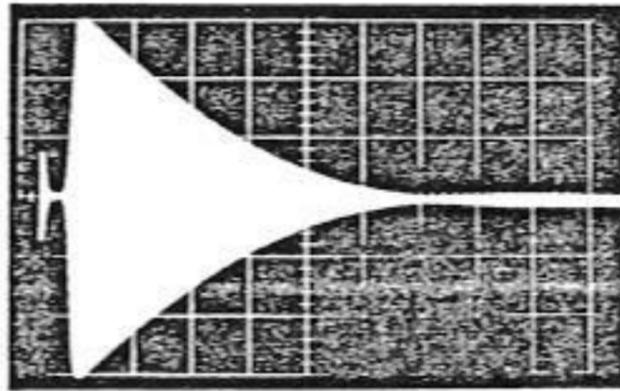
- interactions spin-spin, qui détruisent la cohérence de phase entre les spins qui précessent ; dans ce cas, $\tau_M = T_2$,
- inhomogénéité du champ magnétique B_0 : des spins situés dans des champs différent de ΔB_0 se déphasent au bout d'un temps $\tau_M = 2 / \gamma_n \Delta B_0$, et $\tau_M \equiv T_2^H$
- l'énergie magnétique est transférée au circuit résonnant, l'aimantation revenant à son orientation initiale (suivant \vec{B}_0) en un temps

$$\tau \sim \frac{2}{\omega Q \chi} \quad (\text{en cgs, } \tau \sim \frac{2}{\pi Q \chi \omega})$$

Pour $\chi_{(SI)} \sim 10^{-7}$, $Q \sim 100$ et $\omega / 2\pi \sim 1$ MHz, on obtient $\tau \sim 30$ ms, beaucoup plus long que les T_2^H habituels.

Ce signal peut être observé sur un oscilloscope, après amplification : (Figure III-15).

Lorsque T_2^H est constant, il suffit d'intégrer le signal dû aux spins, ceci est effectué électroniquement. Nous avons employé soit un système de RMN pulsée commercial (IT Bridge, modèle PLM-3, Instruments for Technology, 02211 Espoo 21, Finlande), soit un système similaire construit au laboratoire. Les fréquences de travail sont 62.5 ; 125 ; 250 KHz, le deuxième système permettant d'atteindre 500 KHz et 1MHz. La longueur des pulses peut être réglée de 2 à 198 périodes de la fréquence utilisée et les pulses organisés en séquences.



A typical nuclear free precession signal from a platinum specimen at 25 mK and in a steady field $B_0 = 45$ mT. The time scale is $200 \mu\text{sec/division}$. The number of oscillations per division at the 413 kHz resonant frequency is thus 83 so that only their envelope curve is visible. (From Aalto, Collan, Gylling and Nores 1973.)

Fig. III-15 : Signal de RMN pulsée.

Un signal proportionnel à la susceptibilité du platine est obtenu avec des impulsions ($\hat{\theta} \sim 1^\circ$) ; la figure III-4 permet de comparer la température obtenue par RMN pulsée (l'inverse du signal RMN $\propto \chi^{-1}$, donc $\propto T$) à la température magnétique T^m (cf. § III- B).

Ce graphe permet de déterminer la constante d'étalonnage, la RMN prenant le relais des autres thermomètres à plus basses températures.

THERMOMETRIE PAR MESURE DE T_1 DU PLATINE

Le temps de relaxation T_1 peut être mesuré de la façon suivante : un "pulse à 90° " bascule l'aimantation de sorte que $\vec{M} \perp \vec{M}_0$; M_z est donc nul. L'aimantation transverse s'annule en un temps $T_2 \sim 1$ ms ; l'aimantation longitudinale revient à l'équilibre en un temps T_1 de l'ordre de la seconde, il est donc possible d'effectuer plusieurs (en général, ~ 8) pulses courts ($\sim 1^\circ$, ou "pulses de mesure") pendant T_1 , qui permettent de suivre le retour à l'équilibre de M_z : on obtient une série de lectures m_i . La mesure est répétée en omettant le pulse initial à 90° ; on obtient une série de valeurs M_{0i} , qui permet de normaliser les mesures précédentes, et de tenir compte des effets de chauffage pendant la série d'impulsions.

La figure III-16 montre $1 - M_i/M_{0i}$ en fonction du temps (c-à-d de l'indice i caractérisant chacun des 8 pulses), en diagramme semi-logarithmique, afin de mettre en évidence le retour à l'équilibre exponentiel, avec une constante de temps unique T_1 : (figure III-16).

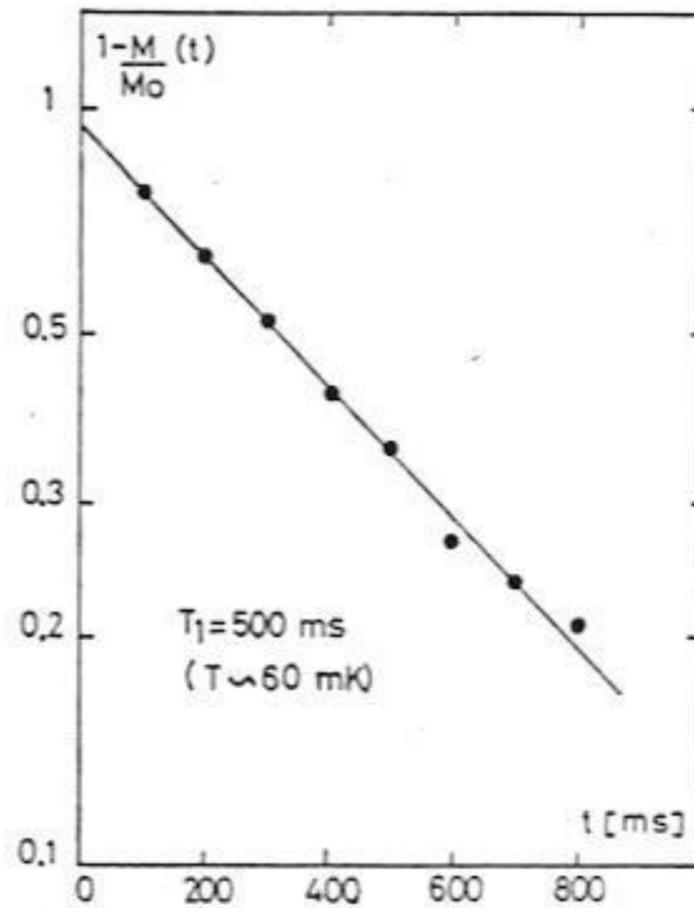


Fig. III-16 : Mesure de T_1 du platine.

La mesure de T_1 peut être employée en thermométrie ; en effet, le temps de relaxation T_1 dans les métaux est décrit par la loi de Korringa (1950) : $T_1 T = K$, où K est la constante de Korringa ; $K = 30 \text{ s mK}$ dans le platine, et 1.09 sK dans le cuivre. (Lounasmaa, 1974).

Cette relation permet l'étalonnage du thermomètre à RMN pulsée : à une température fixée, on mesure χ , puis T_1 ; on obtient T par la relation de Korringa, et par conséquent la constante reliant χ^{-1} à T .

Cependant, l'effet d'impuretés magnétiques affecte la validité de la loi de Korringa à très basses températures ; la figure III-17 montre nos mesures de $K = T_1 T$ en fonction de la température, ainsi que les mesures de groupe d'Orsay (E.J. Varoquaux, communication privée).

On observe une dépression de la constante de Korringa vers 3mK, dépendant de la fréquence et de l'échantillon ; cet effet ne semble pas avoir été observé dans la poudre de platine utilisée à Helsinki (Lounasmaa, 1974).

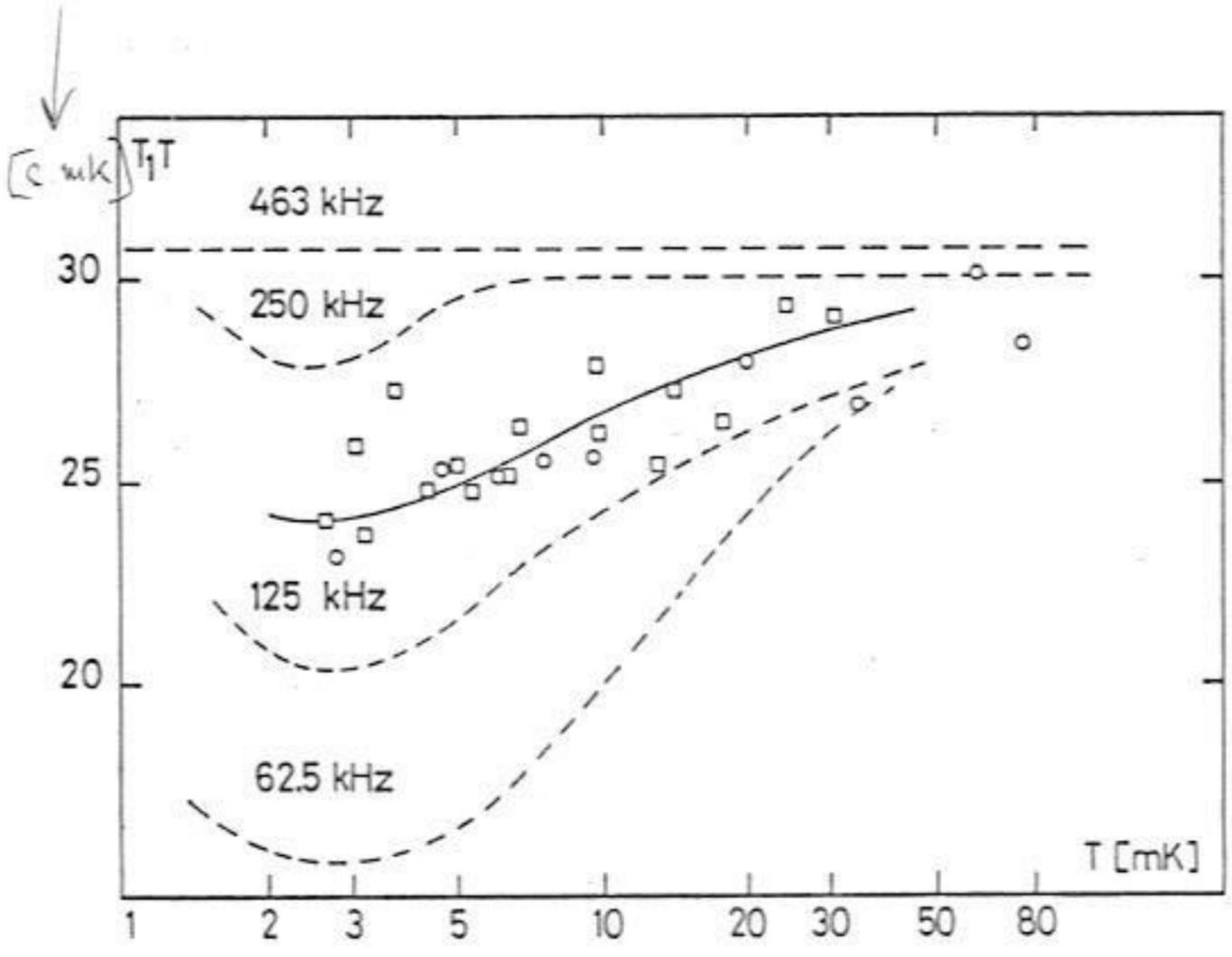


Fig. III-17 : Déviations de T_1T du platine par rapport à la loi de Korringa.

EFFETS DE CHAUFFAGE

La RMN pulsée a en principe l'avantage de mesurer l'aimantation avant l'impulsion. Une mesure répétitive, par contre, peut être faussée par le chauffage dû aux courants de Foucault, plus important qu'en RMN continue.

Pour un conducteur cylindrique de rayon r , de volume V , résistivité ρ et soumis à un champ magnétique $\dot{B} = dB / dt$ parallèle à son axe, la puissance dissipée est $\dot{Q} = r^2 V \dot{B}^2 / 8\rho$, en supposant une pénétration complète du champ magnétique. Un autre problème peut se poser lors de la mesure de T_1 : si la constante de temps de refroidissement des grains de la poudre est comparable à T_1 , on mesurera une combinaison des deux temps de relaxation.

La RMN pulsée est un outil dont la mise en oeuvre est simple ; la précision, par contre, est limitée à environ 1%, et la lecture du signal s'effectue à un taux de répétition relativement lent, à très basses températures, afin de ne pas chauffer l'échantillon.

La RMN continue exige un balayage de champ, ou de la fréquence ; ce n'est donc par un système à lecture continue. Une précision supérieure à 1% peut être facilement atteinte.

Malgré ses inconvénients, la RMN du platine constitue le thermomètre principal au-dessous de 10 mK.

III - D - COURBE DE FUSION DE ^3He

La pression d'un mélange ^3He solide- ^3He liquide dépend de façon univoque de la température. Les caractéristiques de la courbe de fusion ont été décrites au chapitre II; au-dessous de minimum de pression, la pente $| dp/dT |$ est importante, et dépasse 3MPa / K pour $T < 40$ mK.

Il est donc utile d'employer la courbe de fusion comme thermomètre, surtout lorsque les expériences ont lieu elles-mêmes dans une cellule Pomeranchuk (cf. chapitre II-C).

Grâce à des mesures thermodynamiques, Halperin et al. (1978) ont relié la pression de fusion à champ magnétique nul, P_m , à la température absolue T ; la table III-2 fournit leurs résultats entre 3 et 100 mK (1 bar = 0.1 MPa) ; dans cette gamme de températures, la courbe de fusion est décrite par l'équation suivante, où les températures sont mesurées en K, et les pressions en bars :

$$P(T) = P_A + 0.6359 \times 10^{-7} T^{-2} - 0.1044 \times 10^{-3} T^{-1} + 0.1492 - 43.86 T + 137.0 T^2 \\ - 65.38 T^3 - 1590 T^4 + 6294 T^5 \quad \text{où } P_A = 34.3420 \text{ bars est la pression de la transition A de } ^3\text{He} \text{ superfluide. (Voir table III-2).}$$

En fait, les transitions A et B du liquide, ainsi que la transition magnétique du solide (S) sont utilisés comme des points fixes thermométriques T_A , T_B , et T_S , et permettent de plus un étalonnage des jauges de pression (P_A , P_B , P_S) ; les meilleures déterminations de ces valeurs sont données dans un article de revue par Richardson (1977), et par Halperin et al. (1978). (Voir table III-3 et III-4).

Certaines de ces valeurs ont été corrigées récemment ; d'après Paulson et al. (1979), $T_A = 2.725$ mK et $T_B = 2.154$ mK ; la valeur de $T_A = 2.600$ mK choisie par le groupe de La Jolla pour son "échelle provisoire de températures" doit être changée par $T_A = 2.66$ mK (Wheathey, 1980) ; le groupe de Helsinki adopte actuellement la valeur $T_A = 2.79$ mK (^3He Symposium, Cornell University (1980), non publié).

Table III-2 : Propriétés de l'³He sur la courbe de fusion (Halperin et al. 1978).

TABLE III-2
Properties on the Melting Curve Below 0.1 K

T, K	P, bar	P - P _A , bar	dP/dT, bar/K	s ₁ /R	s ₂ /R	Δv, cm ³ /mole	v ₂ , cm ³ /mole	10 ⁻³ α ₂ , K ⁻¹	10 ⁻³ κ ₂ , bar ⁻¹
0.100	31.3127	-3.0292	-21.68	0.3536	0.6929	1.301	25.926	-11.32	5.19
0.095	31.4229	-2.9190	-22.52	0.3400	0.6929	1.302	25.911	-10.16	5.18
0.090	31.5375	-2.8044	-23.38	0.3261	0.6929	1.303	25.896	-9.06	5.16
0.085	31.6564	-2.6855	-24.26	0.3119	0.6929	1.305	25.880	-8.03	5.15
0.080	31.7799	-2.5620	-25.17	0.2973	0.6928	1.306	25.864	-7.07	5.13
0.075	31.9079	-2.4340	-26.10	0.2823	0.6928	1.307	25.847	-6.18	5.11
0.070	32.0407	-2.3012	-27.06	0.2669	0.6928	1.308	25.829	-5.35	5.10
0.065	32.1784	-2.1635	-28.04	0.2509	0.6927	1.309	25.811	-4.58	5.08
0.060	32.3212	-2.0207	-29.07	0.2345	0.6926	1.310	25.792	-3.88	5.06
0.055	32.4691	-1.8728	-30.12	0.2175	0.6926	1.311	25.773	-3.24	5.04
0.050	32.6224	-1.7195	-31.21	0.2000	0.6925	1.311	25.753	-2.66	5.02
0.045	32.7813	-1.5606	-32.32	0.1820	0.6923	1.312	25.733	-2.14	5.00
0.040	32.9458	-1.3961	-33.47	0.1634	0.6921	1.312	25.711	-1.68	4.98
0.035	33.1161	-1.2258	-34.65	0.1444	0.6918	1.313	25.690	-1.28	4.96
0.030	33.2923	-1.0496	-35.85	0.1249	0.6913	1.313	25.667	-0.93	4.94
0.025	33.4746	-0.8673	-37.06	0.1049	0.6906	1.313	25.644	-0.64	4.92
0.020	33.6629	-0.6790	-38.25	0.0845	0.6892	1.314	25.620	-0.41	4.89
0.015	33.8571	-0.4848	-39.38	0.0638	0.6884	1.314	25.596	-0.22	4.87
0.010	34.0564	-0.2855	-40.22	0.0427	0.6786	1.314	25.571	-0.10	4.84
0.005	34.2569	-0.0850	-39.33	0.0214	0.6432	1.314	25.547	-0.02	4.82
0.003	34.3331	-0.0088	-36.14	0.0129	0.5842	1.314	25.537	0.00	4.81

Les températures exprimées dans l'échelle provisoire de La Jolla (T_{LJ}) avec $T_A = 2.600$ mK se comparent à celles du groupe de Helsinki (T_{HKi}) au moyen des formules $T_{LJ}^{mK} = T_{LJ} + 0.10$ mK et $T_{LJ}^{mK} = 0.900 T_{HKi} + 0.114$ mK où T^{mK} désigne la température magnétique (cf. § III-B).

Malgré l'accord relativement bon entre ces différentes déterminations, il est inquiétant de constater que la température de transition supraconductrice du tungstène est :

$$T_W = (15.45 \pm 0.10) \text{ mK} \quad \text{d'après le NBS, alors que le même échantillon}$$

transite à :

$$T_W = (16.88 \pm 0.10) \text{ mK} \quad \text{d'après l'échelle de Helsinki, l'origine de cette dif-}$$

férence étant inconnu actuellement.

L'utilisation de cellules Pomeranchuk en thermométrie a été décrite par Lounasmaa (1974), Hudson et al. (1975), Richardson (1977), Halperin et al. (1978), Osheroff et Yu (1980), en champ magnétique externe B_0 nul, et par Kummer et al. (1977), Schuberth et al. (1979) et Godfrin et al. (1980) pour $0 < B_0 < 7.2$ Teslas.

Nous avons employé une cellule Pomeranchuk du type décrit au chapitre II-C au cours des expériences sur ³He solide, particulièrement bien adaptée à la thermomé-

Table III-3.

Measured temperatures of ^3He transitions at the melting pressure

Group	T_A (mK)	$T_{B'}$ (mK)	T_S (mK)	Thermometer methods
La Jolla	2.60 ± 0.1	2.06 ± 0.08	—	Vapor pressure + noise temperature and CMN thermodynamics
Helsinki	2.83 ± 0.1	—	—	γ -ray anisotropy + Pt NMR
Cornell	2.75 ± 0.11	2.18 ± 0.10	1.10 ± 0.06	Latent heat of melting
Florida	2.68 ± 0.21	2.10 ± 0.17	1.03 ± 0.08	Latent heat of melting
Orsay	2.75 ± 0.05	2.20 ± 0.03	1.08 ± 0.1	Vapor pressure + Pt NMR

Note: This table gives a comparison of the results for the melting pressure fixed points in ^3He . T_A is the temperature of the second order transition between the normal and superfluid A phases. $T_{B'}$ is the temperature of the first order transition between the superfluid B and A phases measured while warming in order to avoid thermal hysteresis. T_S is the temperature of the spin ordering transition in solid ^3He .

Table III-4.

Low-Temperature Fixed Points on ^3He Melting Curve*

Method	T_{A_i} mK	T_{B_i} mK	T_S mK	$(dP/dT)_{MC}$ at A, bar/K
CMN susceptibility $T_{CMN}^0 \propto 1/\chi$	2.35	1.66	—	35.4
Johnson noise thermometer	2.66 2.53 ^b 2.81 2.58 ^b	2.20 1.91 ^b 2.37 1.99 ^b	— — — —	— — — —
Pt Wire NMR	≤ 2.9	—	—	—
Pt Powder pulsed NMR	2.75 ^c 2.75 ± 0.05	— 2.20 ± 0.03	— 1.08 ± 0.10	— —
^3He latent heat of solidification	2.75 ± 0.11 2.68 ± 0.21	2.18 ± 0.10 2.10 ± 0.17	1.10 ± 0.06 1.03 ± 0.08	35.7 —
^3He normal liquid viscosity	2.57 2.67 ^d	— —	— —	39.4 —

*Error limits are given as stated by the authors.

^bValue above corrected for heat leak using CMN heat capacity data.^cExtrapolation to melting curve from lower pressures.^dValue, from the number directly above, after our reanalysis of the data using melting curve of Grilly²⁹ or of this work.

trie ; les détails de construction et d'utilisation sont donnés dans la publication ci-jointe (Proceedings of the ULT Conference, Hakoné (Japon), T. Sugawara, S. Nakajima, T. Ohtsuka and T. Usui eds, Physical Society of Japan (1978)).

III - E - RESISTANCES DE CARBONE

La résistance électrique de certaines résistances de carbone commerciales (composants électroniques) dépend fortement de la température. On pourrait s'attendre à une conduction par un processus de hopping suivant la loi de Mott ($\propto \exp(T^{-1/4})$) mais ceci n'est pas vérifié expérimentalement dans ces résistances.

L'utilisation de ces résistances en thermométrie exige par conséquent un étalonnage sur tout le domaine de températures de travail. La figure III-18 représente la variation des résistances Allen-Bradley 47Ω , 1/8 Watt, entre 0.7 K et 5 K, le domaine de températures où elles sont utilisées : dans le réfrigérateur à dilution, elles permettent de mesurer la température de la boîte à un degré et de l'évaporateur.

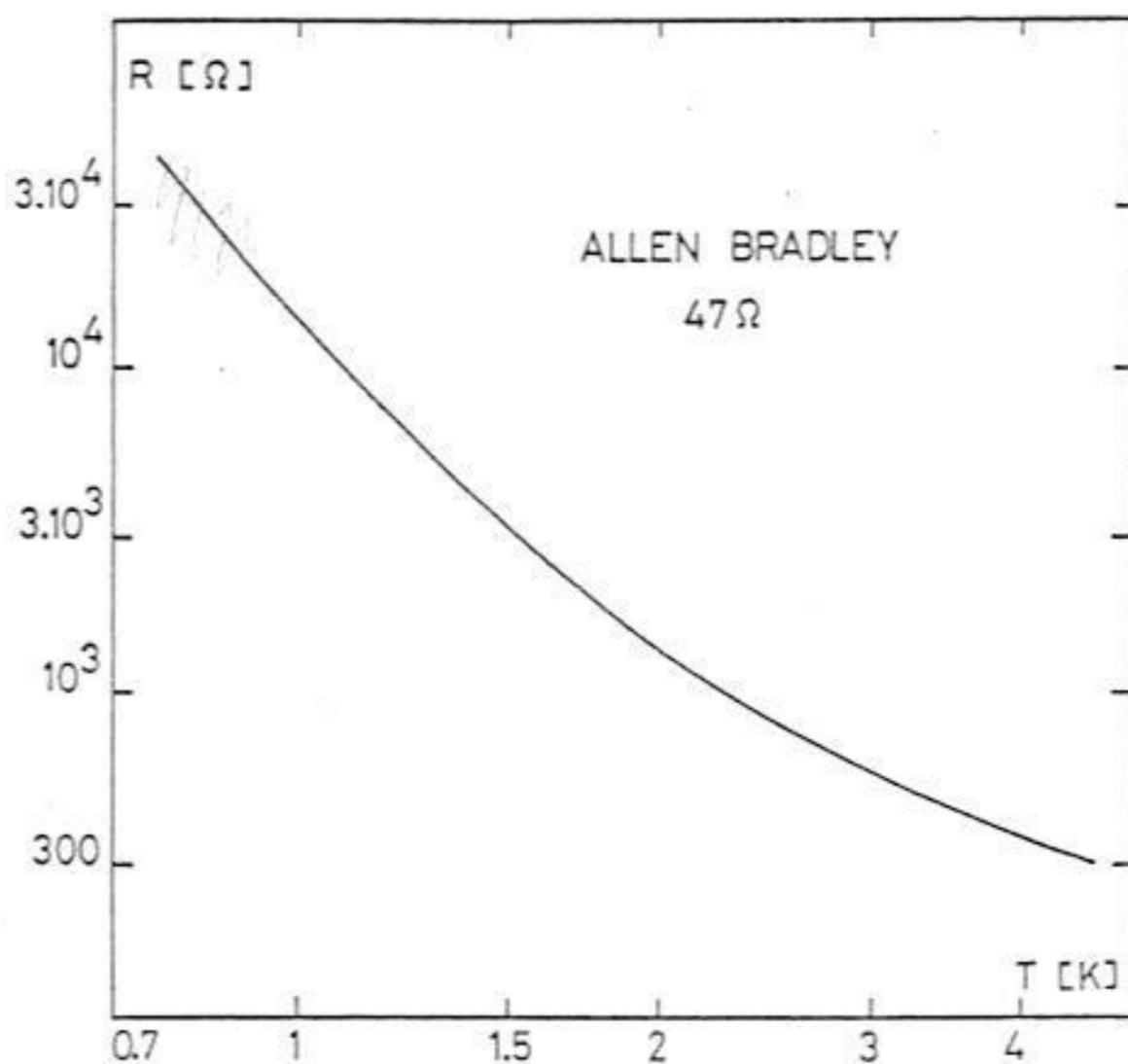


Fig. III-18 : Etalonnage d'une résistance de carbone Allen-Bradley 47Ω .

Aux plus basses températures (5 mK à 1K), nous avons employé des résistances Speer 100 Ω Grade 1002, 1/2 Watt, et des Matsushita 68 Ω , 1/8 Watt, Grade ERC-18.

Afin d'obtenir un temps de réponse court, la résistance doit avoir une capacité calorifique faible et une surface d'échange thermique importante. Il est donc nécessaire de couper et polir les fils de connexion à ras de corps de la résistance, et de polir celui-ci jusqu'à une épaisseur de 0.3 - 0.4 mm ; les contacts apparaissent alors à chaque extrémité, où l'on soude à l'indium ou au métal de Wood les fils de mesure.

La résistance est soumise à plusieurs cycles thermiques entre la température de l'azote liquide et l'ambiante avant d'être étalonnée ; cette précaution limite l'irréproductibilité à moins de 1%. En pratique, la valeur de la résistance est contrôlée à 4.2 K, et on tient compte de variations éventuelles en multipliant la courbe d'étalonnage par le coefficient

$$\alpha = \frac{\text{valeur mesurée à 4.2 K}}{\text{valeur de l'étalonnage à 4.2 K}} ; \text{ cette procédure est justifiée par de nombreux}$$

étalonnages effectués au laboratoire.

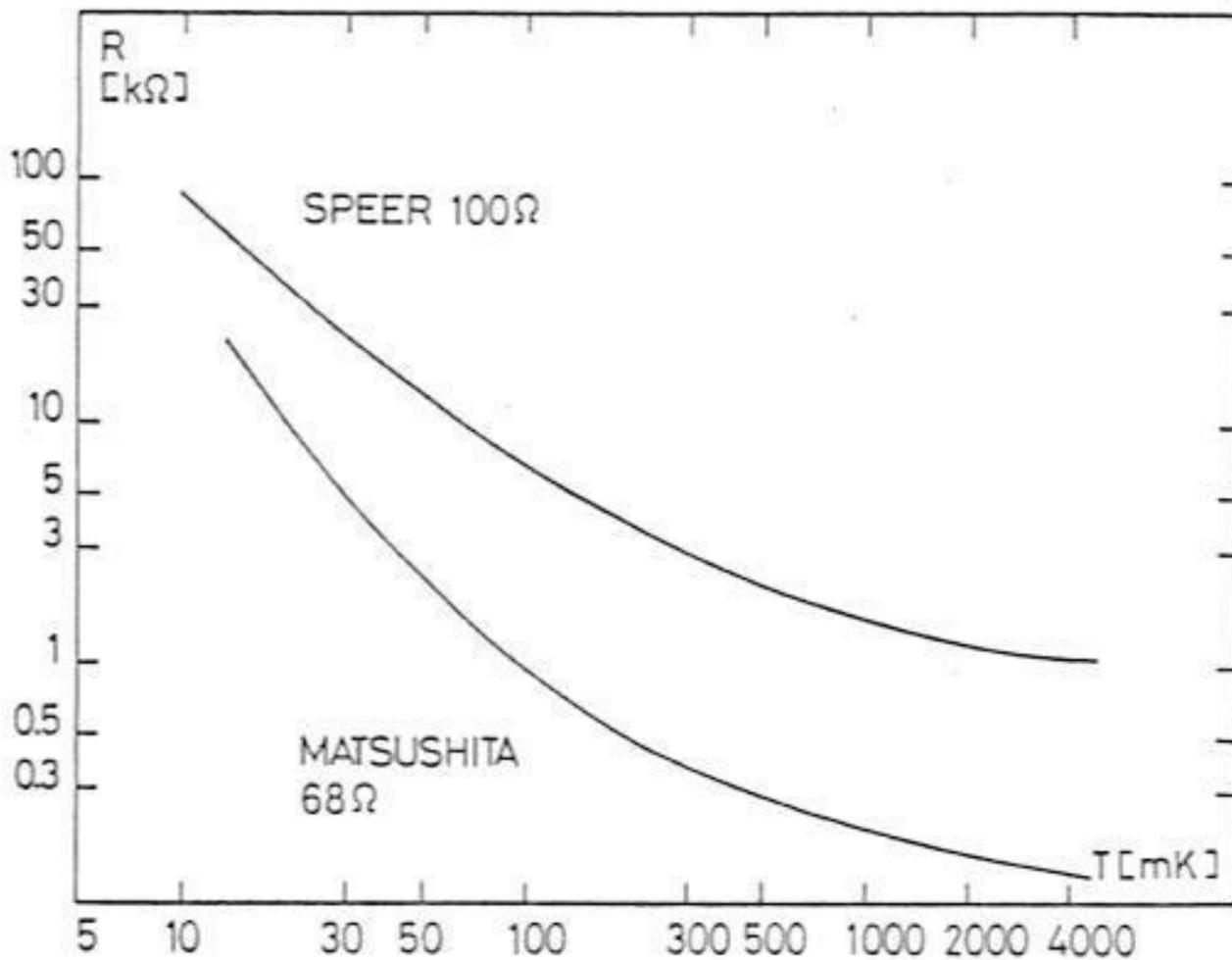


Fig. III-19 : Etalonnage d'une résistance Speer 100 Ω .

La figure III-19 montre un étalonnage type des Speer 100 Ω et de Matsushita 68 Ω . Au-dessous de 10 mK, il est courant d'observer une saturation de la courbe d'étalonnage, due à des effets de chauffage (radio-fréquence parasite). Des filtres LC sont placés sur tous les fils de mesure, ce qui évite l'emploi d'une cage de Faraday.

La mesure des résistances s'effectue au moyen d'un pont de résistances développé au laboratoire et commercialisé par Barras Provence. La mesure est réalisée en 4 fils à la fréquence de 32 Hz. Le courant de mesure est réglable entre 10^{-2} et 10 μ A suivant la gamme de résistances ; un atténuateur permet de réduire ces courants d'un facteur 10^4 par commutation en progression 1-2-4-8.

Il faut en effet employer des puissances de mesure $\dot{Q} \lesssim T^3$ nW/K³ pour éviter de chauffer le thermomètre ; ce contact thermique entre celui-ci et l'échantillon se dégrade à basses températures, la résistance de Kapitza augmentant approximativement en T^{-3}

Pour travailler à des températures supérieures à 100 mK, un peu de graisse à vide suffit à thermaliser la résistance de carbone sur un support métallique. Pour mesurer des températures inférieures à 10 mK, il est préférable de plonger la résistance dans l'hélium liquide, ou bien d'employer un boîtier en cuivre doré, serrant la résistance entre deux mandrins coniques, isolés par une feuille de Kapton couverte d'une fine couche de graisse à vide (Frossati, 1978).

La partie basse température du circuit de mesure est cablée en 2 fils supraconducteurs (Nicomax CNGAl/O5) ; de l'ambiante à 4.2 K, le câblage, en fil de cuivre ou constantan, est effectué en 4 fils.

En champ magnétique intense, les caractéristiques des résistances de carbone peuvent subir des variations importantes ; la magnétorésistance des Allen Bradley et des Speer a été étudiée par de nombreux auteurs : Lubin (1970), Anderson (1973), Black et al. (1964), Sample et al. (1973), Sanchez et al. (1974).

Les résistances Matsushita sont moins sensibles au champ magnétique, d'après les mesures de Saito et Sato (1975) entre 1 et 4.2 K, et nos mesures en dessous de 1K.

III - F - THERMOMETRES CAPACITIFS

La plupart des thermomètres décrits précédemment sont mal adaptés aux mesures en champ magnétique intense ; la constante diélectrique ϵ des verres et des polymères, indépendante du champ, apparaît comme un paramètre thermométrique intéressant. (Article de revue, Hudson et al. (1975).)

Lawless (1971) a mis en évidence la sensibilité des capacités en $SrTiO_3$; la constante diélectrique décroît linéairement avec la température jusqu'à 100 mK, puis remonte à plus basse température ; la capacité dépend de la tension de mesure.

Les mesures effectuées sur des verres (borosilicate BK7, silice dopée OH) et sur des polymères (polyéthylène, Kapton) par Frossati et al. (1977 a-c) ont montré un comportement qualitativement similaire, lié à l'existence de systèmes à deux niveaux caractéristiques des matériaux amorphes.

La variation en température au-dessus et au-dessous du minimum de $C(T)$ (situé vers 0.1 K), permet la mesure précise de la température après étalonnage du capteur, à condition de le maintenir à basses températures.

Nous avons employé des thermomètres capacitifs à diélectrique en Kapton de 14 μ d'épaisseur ; des électrodes en argent sont déposées sur le film par évaporation ; les fils de mesure sont collés à la résine époxy argent ou soudés à l'indium.

La capacité est mesurée à l'aide d'un pont GénéralRadio 1515 A. Nous avons généralement placé la capacité dans la boîte à mélange du réfrigérateur à dilution ; dans ce cas le contact thermique est excellent.

Nous avons également essayé une capacité en Kapton jusqu'à 0.5 mK, en la collant sur l'étage à désaimantation nucléaire de cuivre, le contact métallique avec l'une des électrodes servant à thermaliser le Kapton ; ces résultats sont décrits dans la thèse de Frossati (1978).

Nous avons essayé d'autres thermomètres, afin d'obtenir une meilleure sensibilité, et surtout une meilleure reproductibilité. Nous avons proposé l'utilisation de lamelles couvre-objet pour microscopes ; d'une épaisseur de 0.17 mm, il est possible d'obtenir des capacités de l'ordre de 170 pf pour 4.7 cm² de surface. La variation de $C(T)$ est extrêmement rapide au dessus de 4K (figure III-20).

Nous avons effectué des mesures plus précises entre 1 K et 4.2 K (figure III-21) ; la reproductibilité est supérieure à 0.005 K tant que l'échantillon est maintenu à basses températures. La capacité varie approximativement linéairement avec la température, la variation relative étant $\sim 7.7 \times 10^{-4}$ par degré Kelvin.

La figure III-22 représente la dépendance en fréquence de la capacité dans ce domaine de températures ; nous obtenons :

$$\frac{\partial \ln \omega}{\partial \ln \epsilon} = 0.04 \times 10^{-3}$$

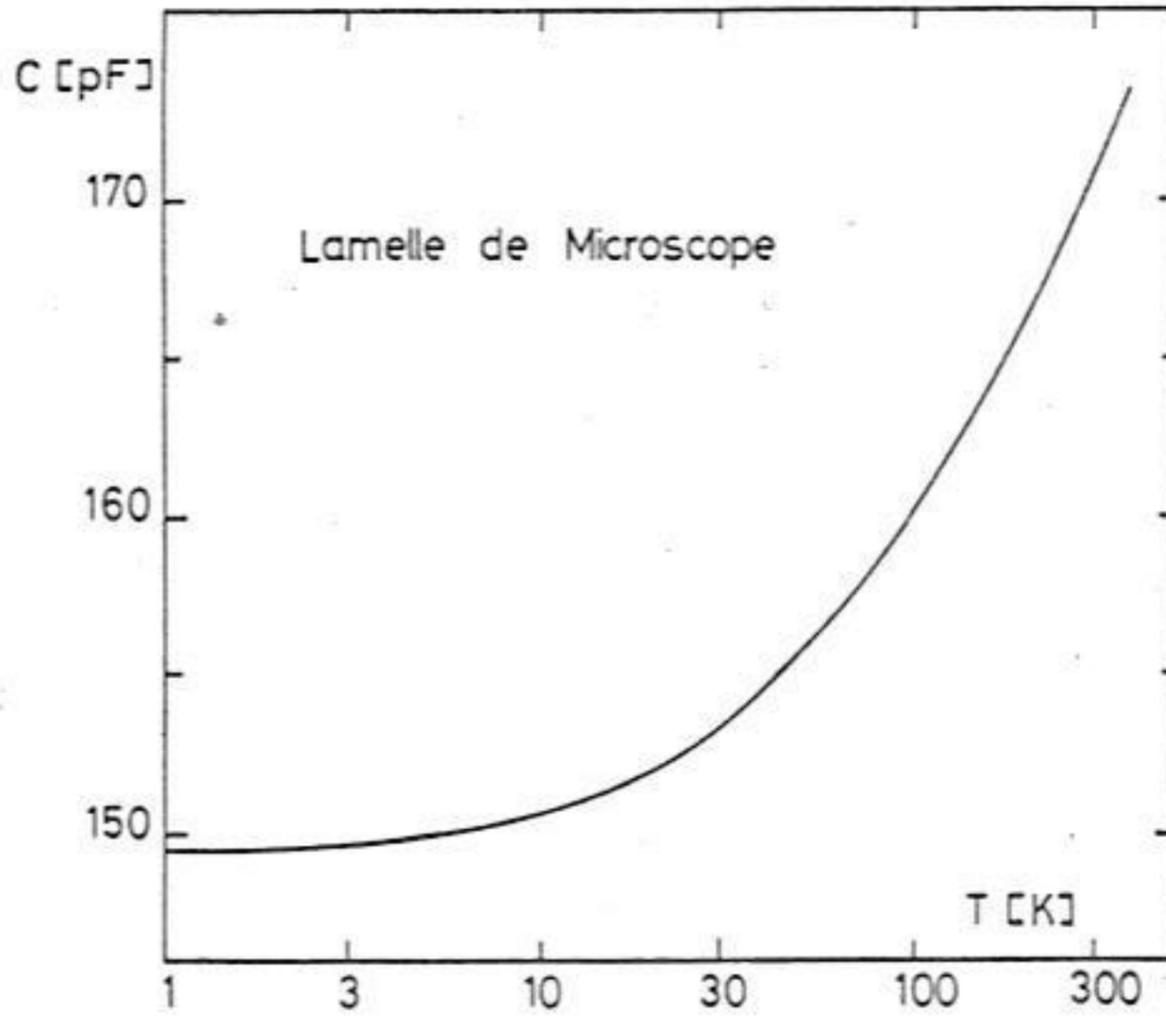


Fig. III-20 : Lamelle de microscope : description qualitative de la capacité à hautes températures.

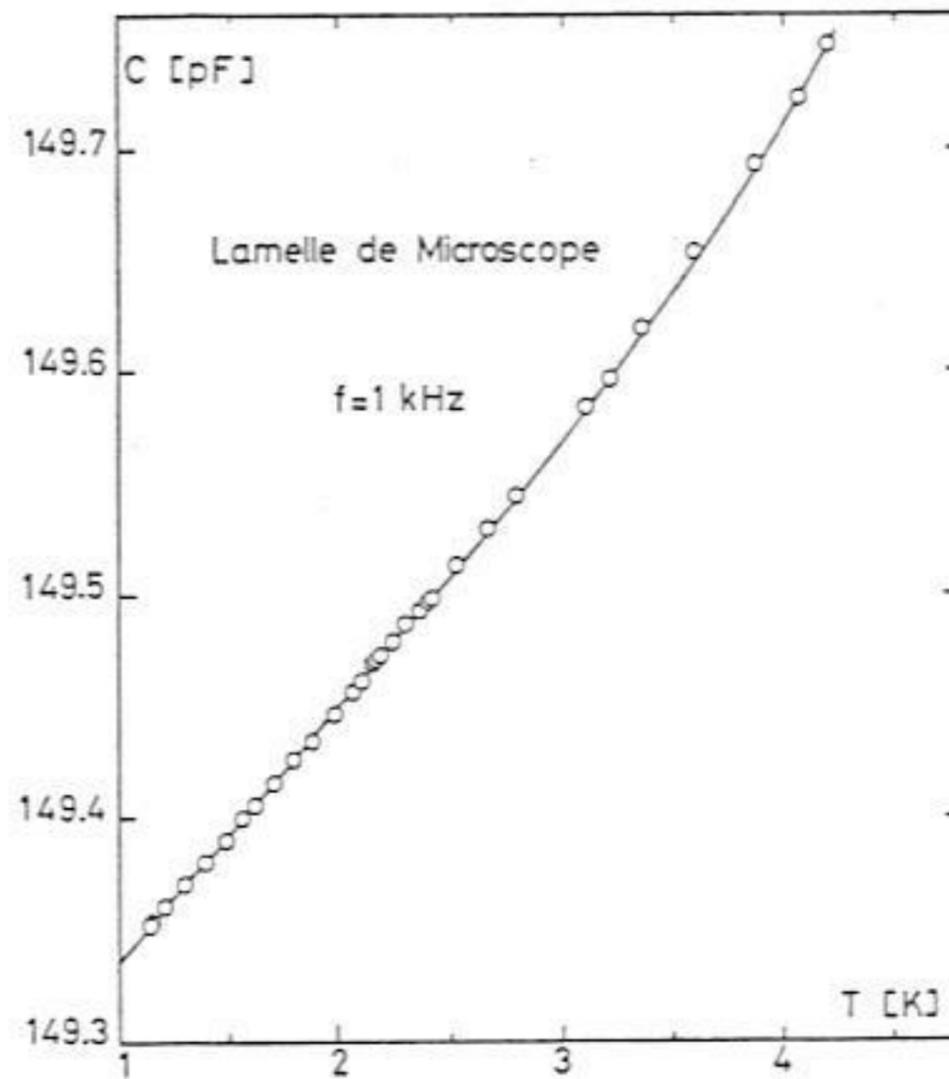


Fig. III-21 : Etalonnage de la capacité à lamelle de microscope entre 1 et 4 K.

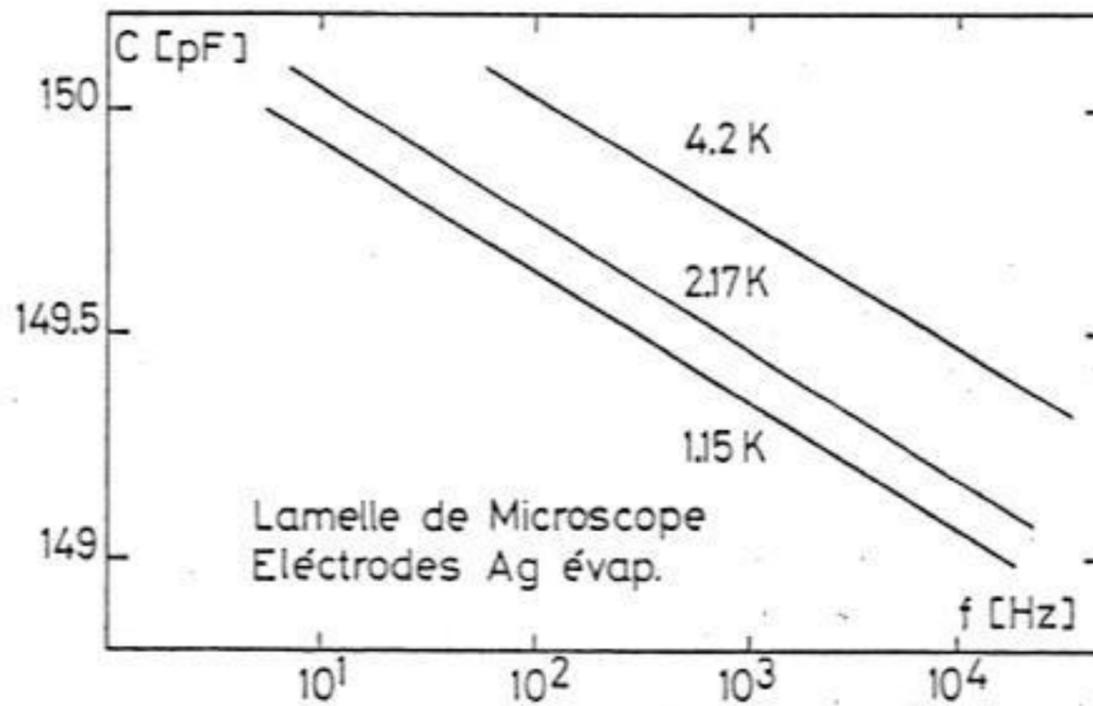


Fig. III-22 : Dépendance en fréquence de la capacité.

D'après la relation de Kramers-Krönig, les pertes sont données par la formule

$$\text{le } t_g \delta = \frac{\pi}{2} \frac{\partial \ln \epsilon}{\partial \ln \omega} = 1.32 \times 10^{-3} \quad ; \text{ la valeur que nous avons mesuré directement est :}$$

$$t_g \delta = 1.30 \times 10^{-3} .$$

Par contre, la variation de ϵ en fonction de T ne satisfait la relation $\partial \ln \epsilon / \partial \ln T = \partial \ln \epsilon / \partial \ln \omega$ que pour des températures $\lesssim 1$ K.

Nous avons essayé une capacité similaire à très basses températures (figure III-23) ; le minimum se situe aux environs de 50 mK, et la sensibilité reste excellente même au-dessous de 10 mK.

J. le G. Gilchrist a préparé d'autres capacités à base de produits organiques dissous dans des plastiques ; nous avons effectué des mesures à très basses températures mettant en évidence une bonne sensibilité.

Par rapport aux lamelles de microscope, elles présentent l'inconvénient de se détériorer à température ambiante, les composés organiques étant relativement volatiles . (Isnard et al. 1980 a et b).

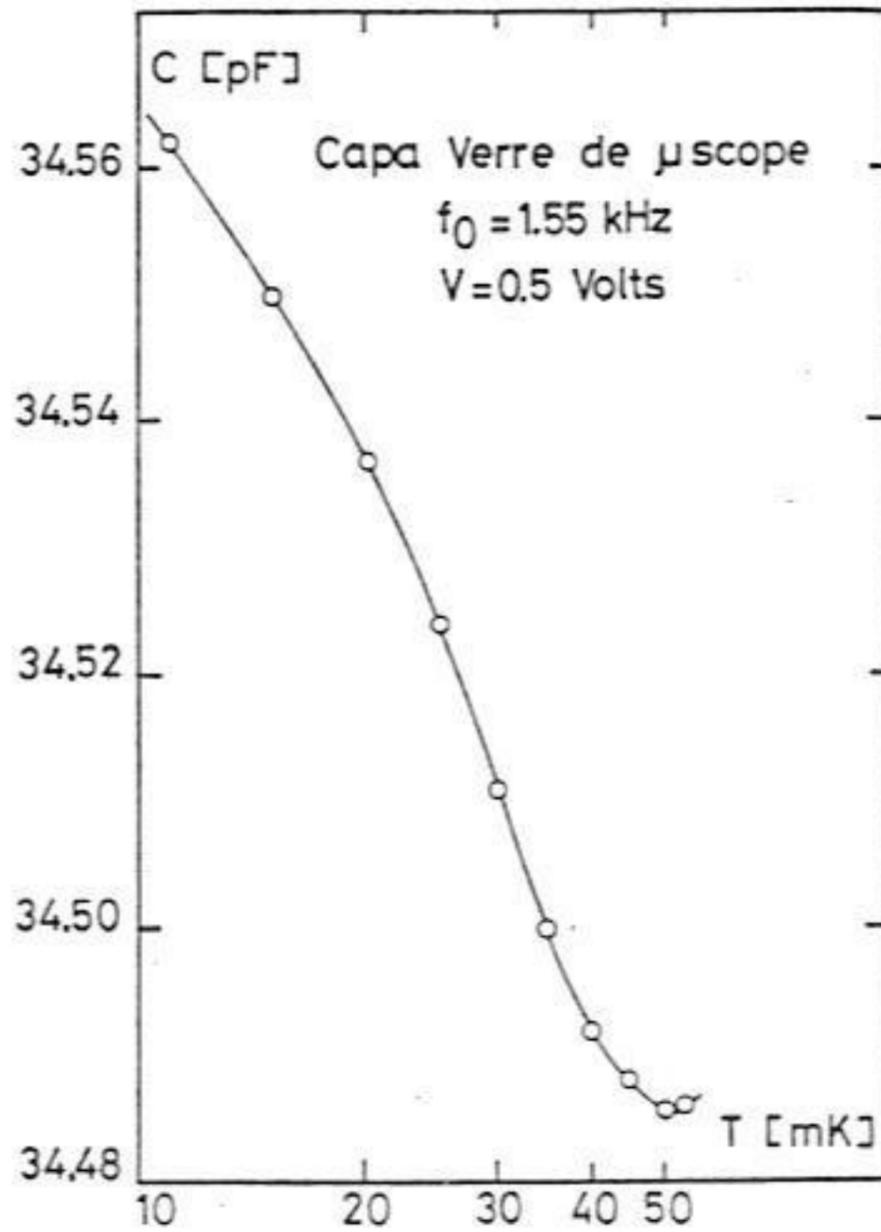


Fig. III-23 : Etalonnage de la capacité à basses températures.

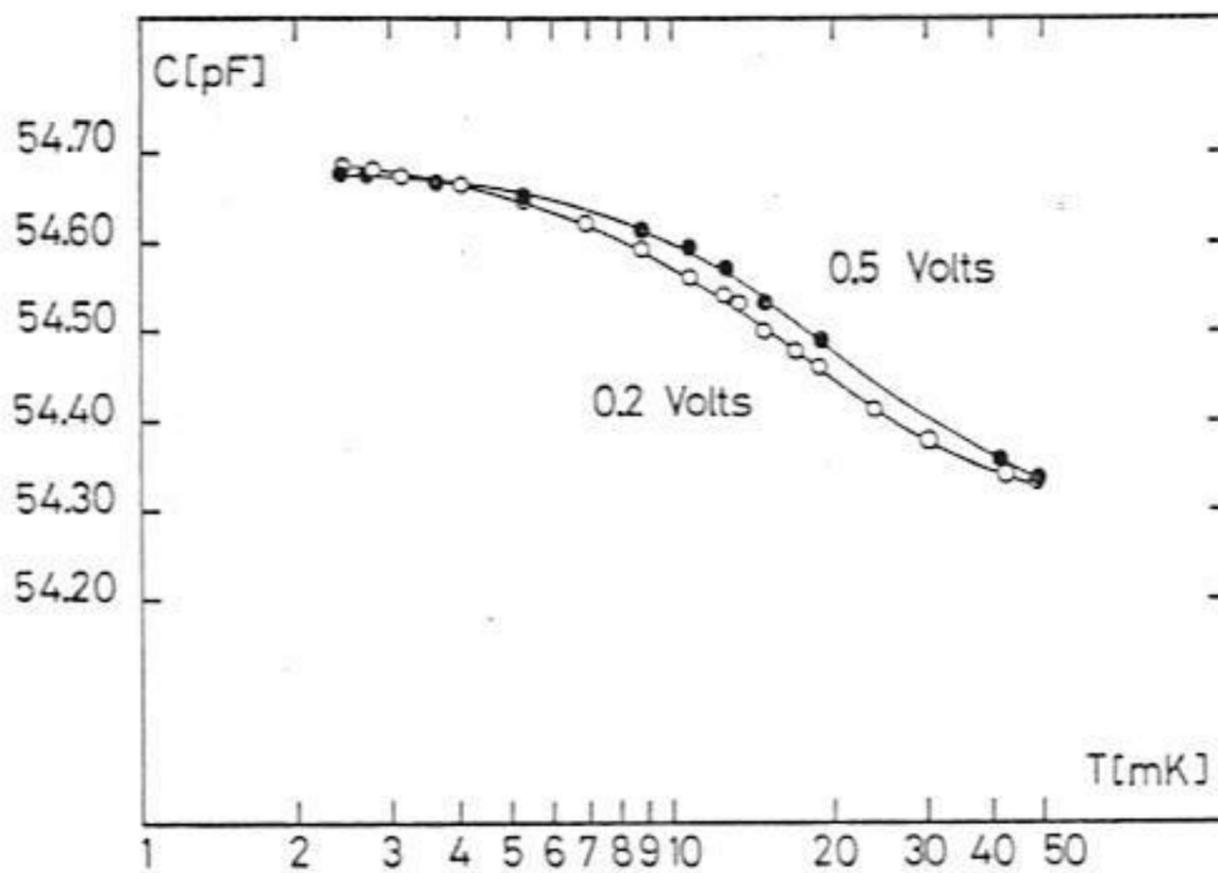


Fig. III-24 : Effet de la tension sur la capacité. (plastique P4MPI + BHT)

CHAPITRE IV

L'HELIUM TROIS SOLIDE

IV - A - INTRODUCTION

Les deux isotopes stables de l'hélium (^3He et ^4He) présentent à très basses températures un comportement dont la description ne peut être effectuée dans le cadre de la mécanique classique. L'existence de la phase liquide à température nulle est une conséquence spectaculaire du principe d'incertitude d'Heisenberg : la localisation des atomes implique une forte incertitude sur l'impulsion, ce qui se traduit par une énergie cinétique considérable pour des atomes de masse aussi faible ("Energie de point zéro"). L'échange des atomes est important, ce qui se manifeste dans le cas de l' ^3He (système de Fermions), par une énergie dépendant de l'orientation du spin (énergie d'échange) de l'ordre du millikelvin. On observe par conséquent dans cette gamme de températures une transition à un état magnétique ordonné.

A bas champ magnétique, Halperin et al. (1974, 1978) ont découvert une phase antiferromagnétique, étudiée en détail par Osheroff et al. (1980).

Notre travail concerne l'observation et la caractérisation d'une deuxième phase ordonnée, stable à fort champ magnétique. (Godfrin et al. 1980). Nos résultats ont fortement contribué à imposer le modèle d'échange multiple parmi les diverses interprétations théoriques du magnétisme de l' ^3He solide.

IV - B - PROPRIETES PHYSIQUES GENERALES DE L' ^3He

Une description très complète des propriétés physiques de l'hélium est fournie par les ouvrages de Wilks (1967), la collection Progress in Low Temperature Physics (articles de J.C. Wheatley), Brewer (1966), Keller (1969), ainsi que par les articles de revue de Richardson (1976), Landesman (1970), Hansen (1970), Trickey, Kirk et Adams (1972), Guyer, Richardson et Zane (1971), Landesman (1973-74), Guyer (1974, 1978), Adams

(1978) et Landesman (1978).

La molécule d'hélium, monoatomique, est la plus petite existant dans la Nature. La couche électronique $1s$ est remplie ; les interactions interatomiques sont par conséquent fortement répulsives à courte distance ("cœur dur" dû au principe de Pauli), et faiblement attractives à longue distance (forces de van der Waals). Le potentiel de Lennard-Jones décrit approximativement les interactions entre atomes d'hélium :

(figure IV-1)
$$V(r) = 4 \epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right]$$

où $\epsilon / k_B = 10.22 \text{ K}$ et $\sigma = 2.556 \text{ \AA} = 2.556 \times 10^{-10} \text{ m}$

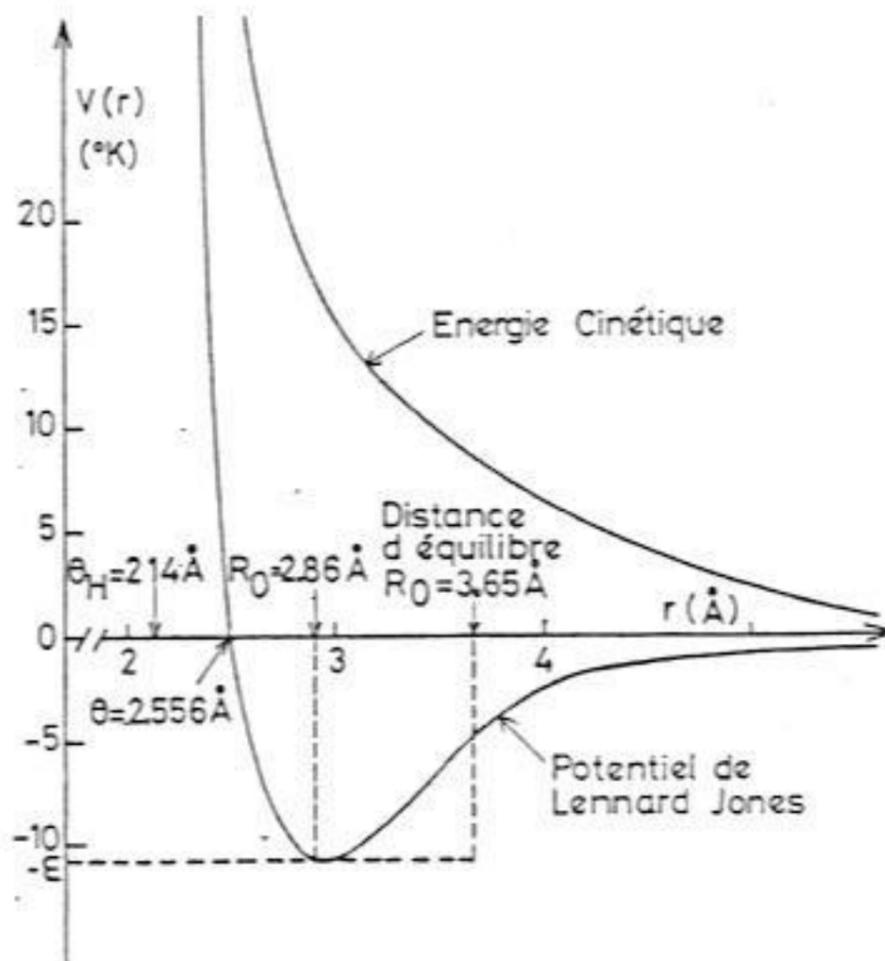


Fig. IV-1 : Potentiel de Lennard-Jones de ${}^3\text{He}$.

Dans les phases condensées, l'énergie cinétique au-dessous de 1K a une origine essentiellement quantique : l'état fondamental d'un atome d' ${}^3\text{He}$ confiné dans une "cage" de volume V formé par les premiers voisins a une énergie dite de point zéro

$E_0 = h^2 / 8 m_3 V^{2/3}$. Pour un puits de potentiel harmonique, un écart quadratique moyen δ par rapport à la position d'équilibre correspond à l'énergie de point zéro :

$$E_0 = 9 \hbar^2 / 4 m_3 \delta^2 .$$

Pour un volume molaire du solide de l'ordre de 24 cm^3 , l'énergie de point zéro est d'environ 28 K ; l'énergie de liaison, égale à la différence de l'énergie potentielle et de l'énergie cinétique, est $\approx -1.0 \text{ K}$; l'écart quadratique moyen $\sim 1.17 \text{ \AA}$ est très important devant la distance interatomique $a = 3.73 \text{ \AA}$, elle même supérieure à la valeur correspondant au minimum du potentiel de van der Waals ($\sigma_m \sim 2.9 \text{ \AA}$).

L'énergie de point zéro ($E_0 \sim 28 \text{ K}$) domine par conséquent le comportement de ^3He à basses températures. Considérons par exemple la coexistence liquide-solide ; classiquement, le solide devrait être la phase stable à basses températures. En fait l'énergie de point zéro devient très importante à densités élevées, et l'énergie libre de Gibbs de la phase liquide est inférieure à celle du solide : à basses pressions, la phase liquide sera stable même au zéro absolu.

Lorsque la pression atteint environ 3 MPa (30 bars), l'énergie libre favorise le solide, grâce au terme PV dans $G = U - TS + PV$.

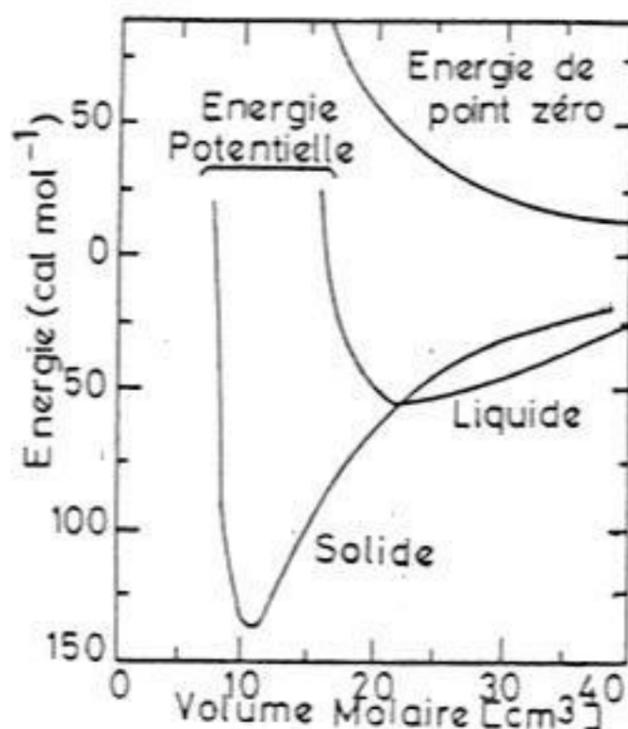


Fig. IV-2.

La figure IV-2 illustre cette explication, due à F. London (1954). Le diagramme de phases est indiqué schématiquement sur la figure IV-3 ; nous étudierons la phase liquide (voir chapitre II-A-a) et la phase solide cubique centrée au-dessous de 0.3 K . Notons que la stabilité de cette phase de très faible densité est une consé-

quence directe de l'importance de l'énergie de point zéro (Landesman, 1970).

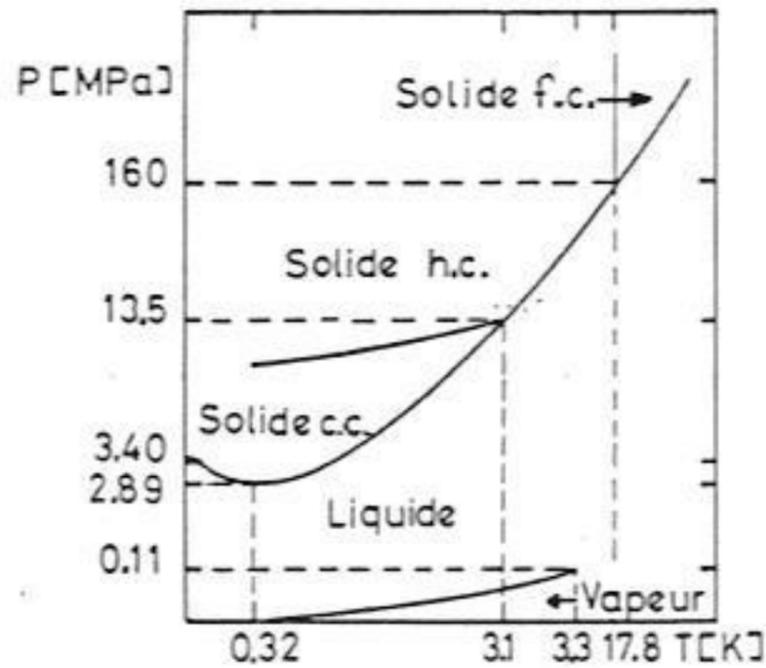


Fig. IV-3 : Diagramme de phases de l'³He.

La courbe de fusion présente un minimum P_m à la température T_m :

P_m (MPa)	T_m (K)	Référence
2.9316 ± 0.0003	-	Halperin et al. (1978)
2.9317 ± 0.0003	0.319 ± 0.003	Grilly (1971)

(d'autres mesures moins précises sont en accord avec ces déterminations de P_m et T_m ; voir Grilly (1971).)

D'après l'équation de Clausius-Clapeyron, la pente de la courbe de fusion est égale à :

$$\frac{dP}{dT} = \frac{S_L - S_S}{V_L - V_S}$$

où $\Delta S \equiv S_L - S_S$ représente la différence d'entropie entre le liquide et le solide, et $\Delta V \equiv V_L - V_S$ la différence entre le volume du liquide et du solide pour le même nombre d'atomes (on considère généralement une mole).

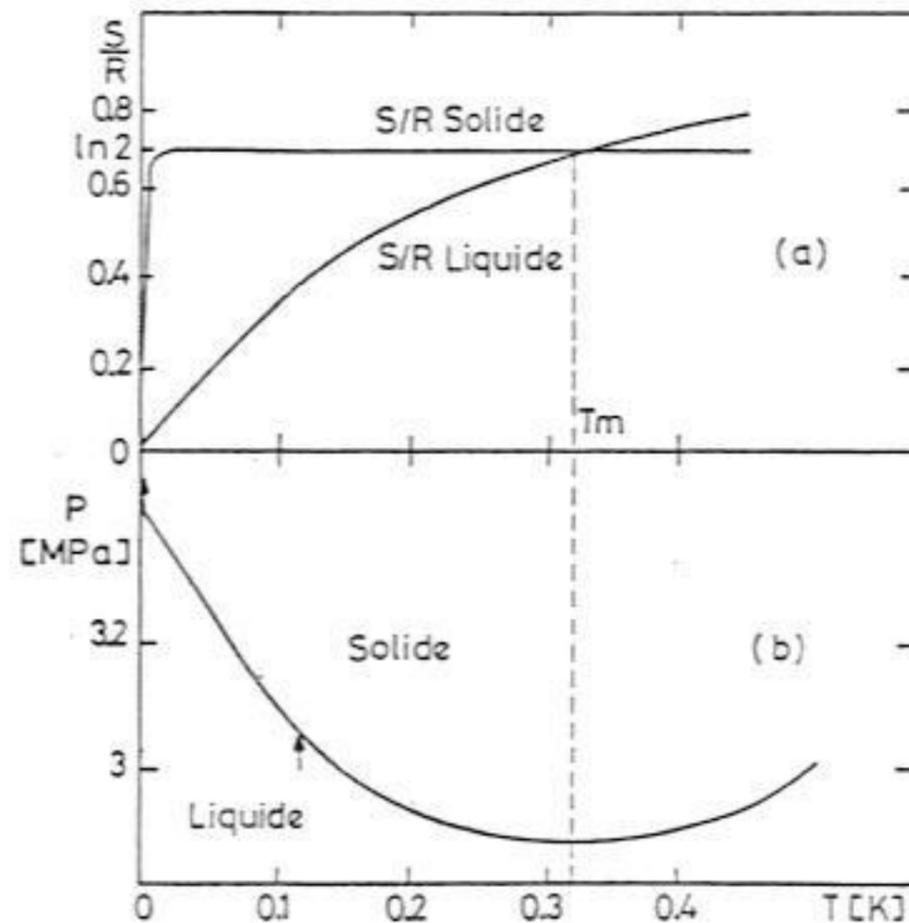


Fig. IV-4 : Entropie et courbe de fusion de ${}^3\text{He}$.

ΔV étant positif (de l'ordre de 1.3 cm^3), la pente négative de la courbe de fusion au-dessous de T_m implique nécessairement que ΔS soit négatif, c-à-d que le liquide soit plus ordonné que le solide à basses températures.

En effet, le liquide est ordonné dans l'espace des impulsions : c'est un liquide de Fermi (cf. § II-A-a) à basses températures ($T < T_F$), et son entropie est approximativement linéaire en température.

L'entropie du solide provient des deux orientations possibles du spin nucléaire sur chaque site (les interactions dépendant du spin sont négligeables à $T \sim T_m$) ; l'entropie par mole est par conséquent $S_S = k \ln 2^{N_0} = R \ln 2$, où N_0 est le nombre d'Avogadro et R la constante des gaz parfaits. (Dans ce domaine de températures, la contribution à l'entropie des excitations du système est très faible).

Le minimum de la courbe de fusion est déterminé par l'équation de Clausius-Clapeyron : $dP / dT = 0$ implique $S_S(T_m) = S_L(T_m)$, (figure II-4).

Par conséquent, l'effet d'un chauffage dans un mélange d' ^3He liquide-solide est de former du solide, qui est la phase la plus entropique ; cette technique sera souvent employée dans nos expériences.

Nous allons décrire à présent les excitations élémentaires du solide : phonons, lacunes et échange.

a) Phonons

Ce sont les excitations correspondant au déplacement collectif des particules autour de leur position d'équilibre. Le déplacement quadratique moyen des particules étant important, la théorie aboutit à la définition de "phonons autoconsistants" (voir l'article de revue par Werthamer, 1969) ; malgré la forte anharmonicité, on obtient ainsi une capacité calorifique en T^3 avec des corrections négligeables, en accord avec l'expérience.

L'énergie du système de phonons est donnée par l'expression :

$$E_D = \frac{3 \pi^4}{5} \left(\frac{N}{V} \right) k_B T \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^3$$

et la capacité calorifique :

$$C_P = \frac{12 \pi^4}{5} \left(\frac{N}{V} \right) k_B \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^3$$

où θ_D est la température de Debye mesurée, variant de 20 à 30 K suivant le volume molaire.

L'hamiltonien décrivant le système de phonons est $\hat{H}_{Ph} = \sum_{\vec{k}} \hbar \omega(\vec{k}) \left[n(\vec{k}) + \frac{3}{2} \right]$.

Nos températures de travail étant très inférieures à θ_D , la capacité calorifique du système de phonons sera très faible, en particulier devant les termes Zeeman et d'échange décrits plus loin.

Même à très basses températures, les phonons jouent un rôle important : ils assurent en partie le transfert thermique entre l'hélium et la source froide (voir appendice I), ainsi que le couplage entre les différents types d'excitations de l'hélium.

b) Les lacunes

Parmi les articles de revue couvrant ce sujet, citons Guyer et al. (1971); Trickey et al. (1972), et Landesman (1975).

A des températures de l'ordre de 1K, les mesures de capacité calorifique mettent en évidence une contribution additionnelle par rapport à celle des phonons. Cette "anomalie haute température" présente l'aspect général d'une anomalie Schottky, et a été attribuée à la présence de défauts ponctuels dans le cristal d'hélium caractérisés par une énergie d'activation ϕ (dépendant du volume molaire) de l'ordre d'une dizaine de degrés Kelvin.

Le défaut peut être décrit par la création d'une paire lacune-interstitiel ; on considère généralement que l'interstitiel migre à la surface, le problème se ramenant à celui des lacunes, bien que ce point soit l'objet de controverses (voir par exemple Young, 1979). L'effet des lacunes est également important sur les temps de relaxation magnétique (voir les articles de Guyer et al. (1971) et Landesman (1975).

Hetherington (1968) a proposé la première théorie microscopique des lacunes dans l' ^3He solide, et calculé l'énergie et la fonction d'onde des atomes au voisinage d'une lacune, ainsi que la réduction de l'énergie par délocalisation de la lacune. En effet, celle-ci se déplace, grâce à l'échange des atomes, par effet tunnel (voir le paragraphe suivant, concernant l'échange). Leur description peut alors s'effectuer dans le cadre de "défauts non localisés", les ondes de lacunes, caractérisées par leur relation de dispersion $\hbar \omega_L(\vec{k})$. Celle-ci est qualitativement de la forme :

$\hbar \omega_L(\vec{k}) = \phi + Zt \cos(\pi k / k_D)$, où Z est le nombre de premiers voisins, et t le paramètre déterminant la largeur de bande (égale à $2Zt$) dans le modèle où le déplacement des particules est décrit par l'hamiltonien :

$$H = \sum_{R,\sigma} \epsilon(R) b_{R,\sigma}^\dagger b_{R,\sigma} + \sum_{R,R',\sigma} t(R,R') b_{R,\sigma}^\dagger b_{R',\sigma} + \frac{1}{2} \sum_{R,\sigma,\sigma'} U(R) b_{R,\sigma}^\dagger b_{R,\sigma'}^\dagger b_{R,\sigma'} b_{R,\sigma}$$

Le premier terme représente l'énergie d'une particule ; le deuxième est un hamiltonien de transfert classique, et le dernier terme tient compte de l'énergie $U(R)$ associée à la double occupation d'un site.

Cette description théorique en termes d'ondes de lacunes (voir en particulier Hetherington (1978), Goldberg et Guyer (1977) et les références citées par ces auteurs) semble confirmée par les mesures récentes de Greywall (1977), dont l'interprétation exige une largeur de bande non nulle.

Il peut sembler a priori que l'influence des lacunes, dont la concentration doit décroître exponentiellement avec la température ($x_L = \exp(-\phi / k_B T)$, avec $\phi \sim 10$ K), doive être négligeable à basses températures. Cependant, Andreev et Lifschitz (1969) ont suggéré qu'il peut exister une concentration finie de lacunes x_{L0} , même à température nulle (lacunes de point zéro) ; ceci n'a pas été vérifié expérimentalement jusqu'à présent. L'influence théorique de ces lacunes sur le magnétisme nucléaire de l' ^3He solide est décrite plus loin dans ce chapitre. Signalons toutefois que les me-

sure de Heald (1976) montrent que la densité de lacunes sur la courbe de fusion est de l'ordre de 5×10^{-3} à toutes les densités, ce qui impose une limite supérieure d'environ 10^{-4} à la concentration de lacunes de point zéro.

Un autre point qui demande des éclaircissements résulte de l'analyse de Hetherington (1978), d'après laquelle plusieurs lacunes participeraient à chaque excitation du type que nous considérons.

Le couplage des lacunes aux phonons a été analysé par Guyer et al. (1971), Landesman (1974), et Goldberg et Guyer (1977) ; la lacune déforme le réseau, formant un "polaron de réseau". D'après les derniers auteurs cités, les premiers voisins subiraient un déplacement de 12-18% vers la lacune.

Nous ne fournirons pas de valeurs précises des paramètres caractérisant les lacunes, ceux-ci dépendant du modèle théorique considéré.

c) L'échange

L'interaction électrique entre les particules est indépendante du spin, si l'on ignore les effets relativistes. Cependant, l'énergie d'un système de particules en interaction dépendra du spin total par un mécanisme résultant de la statistique quantique obéie par les particules.

Dans le cas de deux fermions, les solutions de l'équation de Schroedinger sont $\phi = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\phi_1(\vec{r}_1) \phi_2(\vec{r}_2) \pm \phi_1(\vec{r}_2) \phi_2(\vec{r}_1) \right]$, ϕ_1 et ϕ_2 représentant la partie orbitale des fonctions d'onde de chaque particule ; le signe \pm correspond à un état orbital symétrique (antisymétrique), et par conséquent à un état de spin antisymétrique ($S = 0$ symétrique, $s = 1$), la fonction d'onde totale d'un système de fermions étant antisymétrique. Soit $U(\vec{r}_2 - \vec{r}_1)$ le potentiel d'interaction entre les deux particules ; les valeurs moyennes de U dans ces états seront $A \pm J$, avec :

$$A = \iint U |\phi_1(\vec{r}_1)|^2 |\phi_2(\vec{r}_2)|^2 dV_1 dV_2$$

$$J = \iint U \phi_1(\vec{r}_1) \phi_1^*(\vec{r}_2) \phi_2(\vec{r}_2) \phi_2^*(\vec{r}_1) dV_1 dV_2$$

La différence d'énergie entre les deux états est égale à deux fois l'intégrale d'échange J , proportionnelle au recouvrement des fonctions d'onde. Il est possible de tenir compte de cet effet au moyen d'un hamiltonien fictif agissant sur les spins :

$$\hat{H}_{ech} = -J \left(\frac{1}{2} + 2 \hat{S}_1 \hat{S}_2 \right) = -\frac{1}{2} J \left(1 + \hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_2 \right)$$

\hat{S}_1 et \hat{S}_2 étant les opérateurs de spin, et $\hat{\sigma}_i$ les matrices de Pauli (Dirac, 1929, 1974) ; Landau et Lifshitz, 1967).

L'opérateur $\frac{1}{2} (1 + \hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_2)$ permute les spins des particules ; il est noté \hat{P}_{12} (opérateur de transposition).

Ainsi, l'hamiltonien d'échange s'écrit :

$$\hat{H}_{\text{ech}} = J \hat{P}_{12}$$

Dans le cas de n particules, cette expression se généralise :

$$\hat{H}_{\text{ech}} = \sum_P (-1)^P J_P \hat{P}_S$$

la somme s'effectue sur les $n!$ permutations du groupe de permutations de n corps ; celles-ci agissent sur les variables de spin uniquement ; à chaque permutation P_S est associé un coefficient d'échange J_P .

$(-1)^P$ est égal à 1 pour une permutation paire (c-à-d réalisée par un nombre pair de transpositions), et égal à -1 pour une permutation impaire.

On ne considère souvent que les échanges à deux particules ; dans ce cas, en utilisant l'opérateur de transposition défini précédemment,

$$\hat{H}_{\text{ech}} = -2 \sum_{i < j} J_{ij} \hat{S}_1 \hat{S}_2$$

à une constante près. Les coefficients J_{ij} sont évidemment différents pour les échanges des premiers voisins (J_1), deuxièmes voisins (J_2), etc...

C'est l'hamiltonien classique d'Heisenberg, appliqué au magnétisme électronique (Herring, 1962, 1968). L'importance de l'interaction d'échange dans l' ^3He solide a été mise en évidence par Bernardes et Primakoff (1960) ; Thouless (1965) a montré la nécessité d'inclure l'échange multiple (permutations de plusieurs particules), et indiqué les méthodes de calcul des constantes d'échange.

Une description plus détaillée de l'échange dans l' ^3He solide est donnée dans les articles de revue de Landesman (1970, 1973-74, 1978) et Guyer (1978). Citons également le modèle de pseudospin, équivalent à celui d'Heisenberg, obtenu en considérant dans le formalisme de seconde quantification la création d'une paire lacune-interstitiel virtuelle lors de l'échange (Guyer, Richardson et Zane, 1971).

Le modèle d'Heisenberg a l'avantage de fournir une description simple des pro-

propriétés magnétiques nucléaires de l' ^3He solide à hautes températures ($T \gg 1 \text{ mK}$), en considérant une intégrale d'échange $J \propto T^{-1}$ mK diminuant rapidement avec le volume molaire.

Une discussion des modèles d'échange est présentée plus loin dans ce chapitre.

d) L'interaction dipolaire

Les interactions entre les dipôles magnétiques nucléaires associés à chaque atome d' ^3He sont décrites par l'hamiltonien :

$$H_D = \sum_{i < j} \frac{\hbar^2 \gamma^2}{R_{ij}^3} \left[\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j - \frac{3 (\vec{S}_i \cdot \vec{R}_{ij}) (\vec{S}_j \cdot \vec{R}_{ij})}{R_{ij}^2} \right]$$

\vec{R}_{ij} étant le vecteur joignant les atomes i et j , et γ le rapport gyromagnétique de l' ^3He ; le moment magnétique nucléaire est $\vec{\mu} = \hbar \gamma \vec{S}$ (cf. Chapitre III).

Les interactions dipolaires sont de l'ordre du microkelvin, inférieures de trois ordres de grandeur, par conséquent, aux interactions d'échange.

e) Energie Zeeman

L'énergie d'un système d'atomes possédant un moment magnétique nucléaire μ dans un champ externe B_0 est donnée par le terme Zeeman : $\hat{H}_Z = -\mu B_0 \sum_i \hat{\sigma}_{3i}$ soit

$$H_Z = - \sum_i \vec{B}_0 \cdot \vec{\mu}_i = - B_0 \sum_i \mu_{Zi} = - \hbar \gamma B_0 \sum_i S_{Zi}$$

Le champ est supposé orienté suivant l'axe Z , μ_{Zi} étant le composante de $\vec{\mu}$ suivant cet axe.

Dans le cas de l' ^3He , $\gamma = 2.03795 \times 10^8 \text{ s T}^{-1}$; la différence d'énergie entre les états "up" et "down" pour un spin est de $2 \mu B$, soit 1.56 mK/Tesla . L'énergie Zeeman devient par conséquent comparable à l'énergie d'échange pour des champs de quelques Teslas.

IV - C - MODELES THEORIQUES DE L' ^3He SOLIDE

L'hamiltonien de l' ^3He solide peut donc s'écrire en fonction des expressions précédentes sous la forme :

$$\hat{H} = \hat{H}_{ph} + \hat{H}_L + \hat{H}_{Ech} + \hat{H}_D + \hat{H}_Z + \hat{H}_{coupl}$$

où le dernier terme tient compte du couplage entre les différents types d'excitations. Les modèles théoriques que nous décrivons dans ce chapitre sont obtenus en ne considérant qu'un certain nombre de termes dans \hat{H} .

a) Modèle de spins indépendants

L'approximation la plus simple est obtenue en supposant que les atomes sont localisés sur les sites du réseau ; on néglige par conséquent tous les effets d'échange, ainsi que l'interaction dipolaire. L'effet des lacunes est également ignoré pour une description des propriétés à des températures très inférieures à leur énergie d'activation. On ne considérera par conséquent que l'effet des phonons, et celui de spins sans interaction dans un champ magnétique externe, les deux termes n'étant pas couplés :

$$\hat{H} = \hat{H}_{ph} + \hat{H}_Z$$

Les propriétés des phonons sont données au § IV-B-a ; le deuxième terme décrit le paramagnétisme nucléaire (cf. Kittel, 1971 ; Reif, 1965).

$$\hat{H}_Z = -\gamma \hbar B_0 \sum_i \hat{S}_{zi}$$

La fonction de partition par atome est :

$$Q = \sum_{S_z} \exp(\gamma \hbar B_0 S_z / k_B T) = \sum_{S_z} \exp(S_z x) \quad \text{avec } x = \frac{\gamma \hbar B_0}{k_B T} = \frac{\mu B_0}{k_B T}$$

la somme s'effectue sur les valeurs permises pour la projection de \vec{S} sur l'axe Z ; dans le cas de l' ^3He , $S = 1/2$, $S_z = \pm 1/2$ et $x = \frac{2\mu B}{kT}$.

Le paramètre sans dimensions x mesure le rapport entre l'énergie magnétique $2\mu B_0$ qui tend à orienter les spins suivant la direction du champ, et l'énergie thermique kT , qui s'oppose à cet ordre.

L'aimantation du système est donnée par la loi de Brillouin :

$$M = \frac{N_0}{V_m} \mu B_J(x) \quad \text{avec} \quad B_J(x) = \frac{1}{J} \left[\left(J + \frac{1}{2} \right) \coth \left(J + \frac{1}{2} \right) x - \frac{1}{2} \coth \frac{x}{2} \right]$$

où $J \equiv S$, N_0 = nombre d'Avogadro, $\mu = \gamma \hbar J$ = moment magnétique nucléaire, V_m = volume.

molaire.

Pour $S = 1/2$ (^3He), on obtient $M = \frac{N_0}{V_m} \mu \operatorname{tgh} \left(\frac{x}{2} \right) = M_{\text{sat}} \operatorname{tgh} \left(\frac{x}{2} \right)$; M_{sat} étant "l'aimantation à saturation" du système, obtenue lorsque $\mu H \gg kT$. A bas champ, c-à-d pour $\mu H \ll kT$, l'aimantation est proportionnelle au champ extérieur : $M = \chi B_0 / \mu_0$; ainsi la susceptibilité est donnée par la loi de Curie :

$$\chi = \mu_0 \frac{N_0}{V_m} \gamma^2 \frac{J(J+1)}{3 k_B T} \equiv \frac{C}{T} \quad (\text{unités SI})$$

Les valeurs de la fonction de partition Q , de l'entropie S et de l'aimantation M / M_{sat} en fonction de x sont fournies par la table IV-1 (J.R. et R.A. Hull, 1941).

$x/2$	Q	$\ln Q$	M / M_{sat}	S / k_B	S / R	$-k_B S / R$
0	1	0.69315	0	0	0.69315	0
0.02	1.0001	0.69320	0.01000	0.00010	0.69315	0.00010
0.04	1.0004	0.69335	0.02000	0.00040	0.69294	0.00040
0.06	1.0009	0.69360	0.03000	0.00090	0.69270	0.00090
0.08	1.0016	0.69395	0.04000	0.00160	0.69255	0.00160
0.10	1.0023	0.69440	0.04996	0.00250	0.69240	0.00249
0.12	1.0034	0.69495	0.05991	0.00359	0.69225	0.00359
0.14	1.0049	0.69560	0.06989	0.00488	0.69210	0.00488
0.16	1.0064	0.69634	0.07983	0.00637	0.69196	0.00636
0.18	1.0081	0.69719	0.08976	0.00806	0.69181	0.00804
0.20	1.0100	0.69814	0.09967	0.00993	0.69167	0.00990
0.24	1.0144	0.70013	0.11943	0.01426	0.69100	0.01420
0.28	1.0196	0.70232	0.13909	0.01935	0.69044	0.01922
0.30	1.0225	0.70437	0.14889	0.02217	0.69020	0.02200
0.32	1.0257	0.70639	0.15865	0.02517	0.69001	0.02496
0.36	1.0323	0.70926	0.17808	0.03171	0.68972	0.03137
0.40	1.0401	0.71302	0.19738	0.03896	0.68954	0.03844
0.50	1.0628	0.72408	0.24492	0.05999	0.68885	0.05975
0.60	1.0907	0.73749	0.29131	0.08486	0.68808	0.08216
0.70	1.1234	0.75319	0.33638	0.11315	0.68746	0.10894
0.80	1.1611	0.77110	0.37995	0.14436	0.68682	0.13990
0.90	1.2038	0.79113	0.42190	0.17900	0.68610	0.18448
1.0	1.2557	0.81326	0.46212	0.21755	0.68520	0.19661
1.1	1.3102	0.83774	0.50051	0.25952	0.68405	0.22671
1.2	1.3709	0.86328	0.53705	0.28842	0.68265	0.25417
1.3	1.4376	0.89100	0.57167	0.30681	0.68102	0.28442
1.4	1.5103	0.92041	0.60437	0.36526	0.67925	0.31102
1.5	1.5894	0.95141	0.63513	0.40341	0.67750	0.33358
1.6	1.6749	0.98390	0.66404	0.44095	0.67567	0.35180
1.7	1.7671	1.01779	0.69107	0.47758	0.67368	0.37745
1.8	1.8662	1.05298	0.71630	0.51308	0.67151	0.39940
1.9	1.9729	1.08939	0.73978	0.54728	0.66919	0.42858
2.0	2.0862	1.12693	0.76159	0.59003	0.66673	0.46498
2.1	2.2076	1.16552	0.78181	0.64462	0.66412	0.50778
2.2	2.3370	1.20508	0.80050	0.71453	0.66133	0.55663
2.3	2.4748	1.24555	0.81775	0.80512	0.65843	0.61103
2.4	2.6213	1.28684	0.83364	0.91645	0.65543	0.67164
2.5	2.7768	1.32889	0.84828	0.10454	0.65233	0.73804
2.6	2.9518	1.37165	0.86172	0.25141	0.64913	0.81004
2.7	3.1467	1.41505	0.87405	0.47507	0.64583	0.88778

Table IV-1.

Les figures IV-5 et 6 représentent l'entropie et l'aimantation en fonction de la température et du champ magnétique ; S et M étant des fonctions du rapport H/T , on peut obtenir $M(S)$ indépendamment de H et T (figure IV-7).

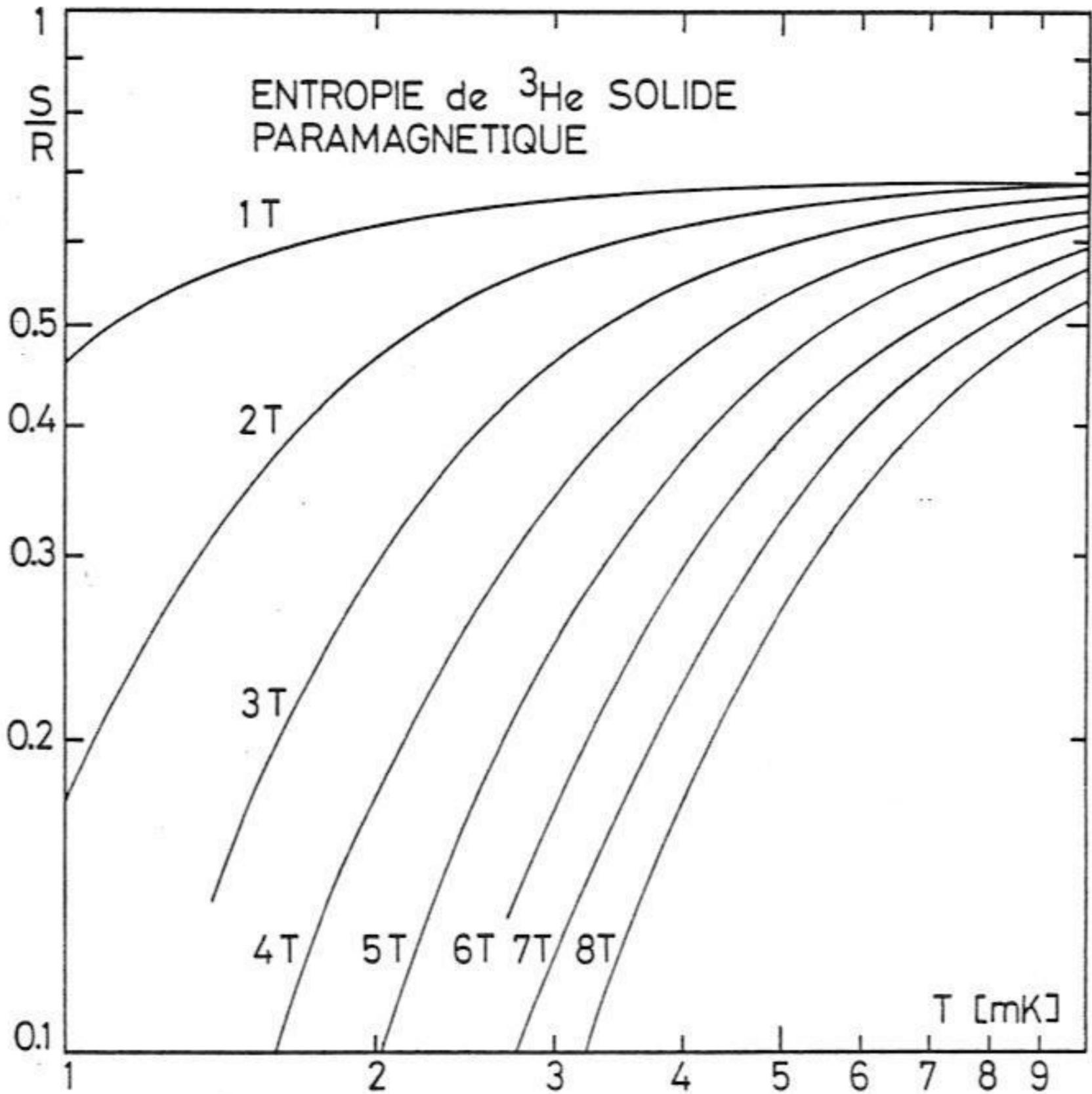


Fig. IV-5.

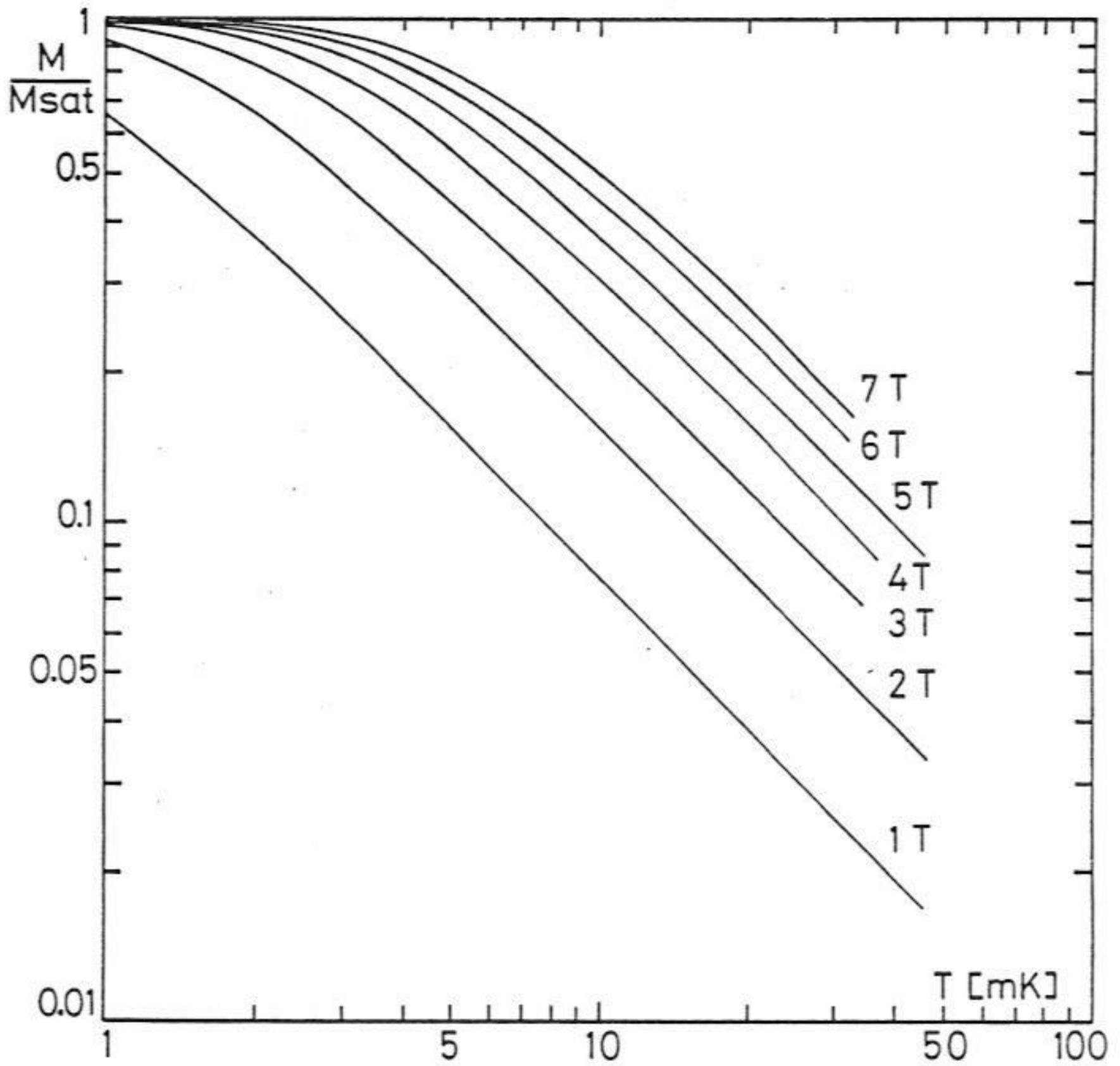


Fig. IV-6 : Aimantation de l' ^3He solide "paramagnétique".

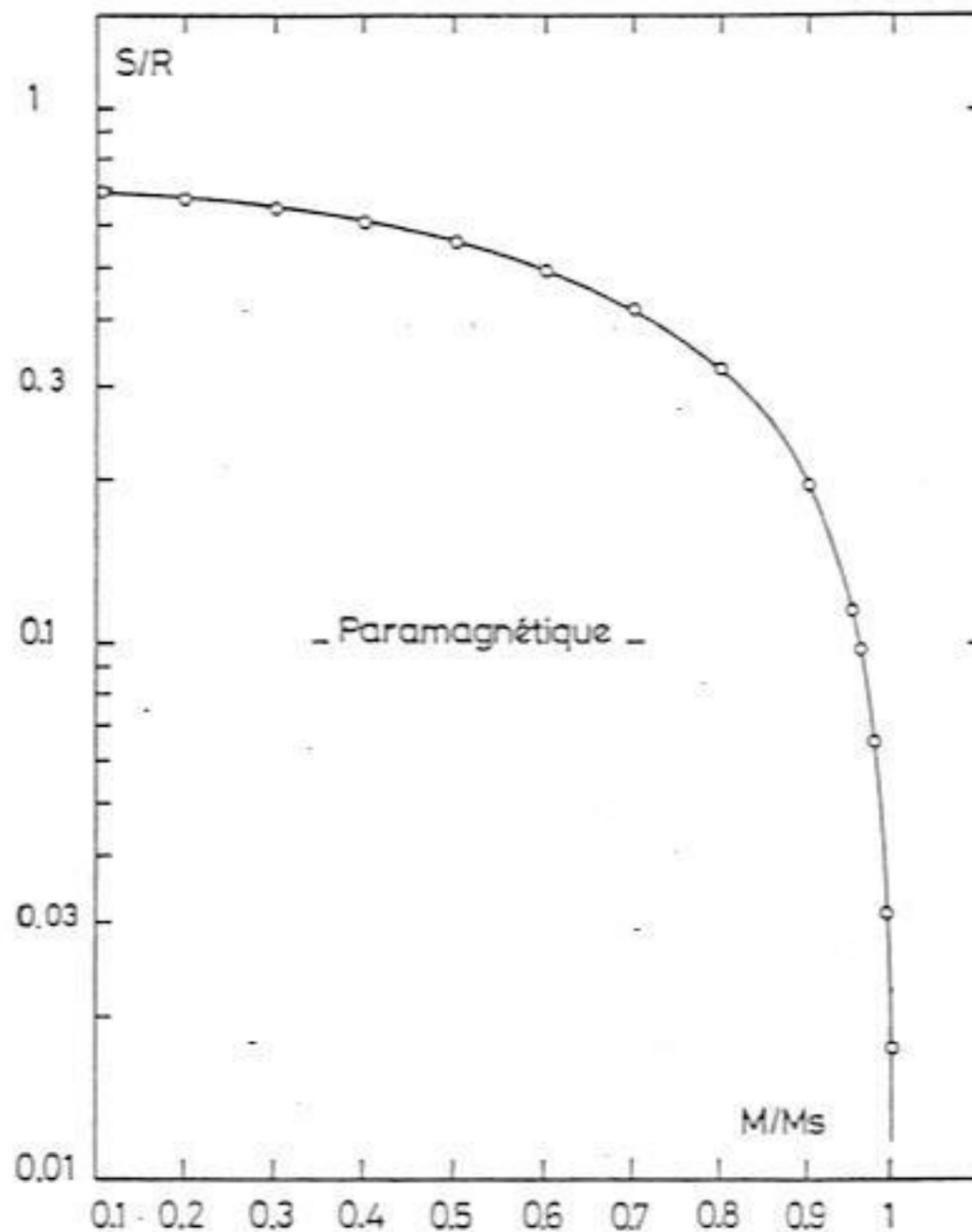


Fig. IV-7 : Entropie d'un paramagnétique en fonction de son aimantation.

Ce modèle très simple néglige les interactions entre spins ; il ne donne pas, par conséquent, de transitions de phase à basses températures, ni de déviations à la loi de Curie ; en l'absence de champ magnétique, la chaleur spécifique est réduite à celle des phonons, très faible. Ces prédictions, contraires à l'expérience, conduisent au modèle d'Heisenberg.

b) Modèle d'Heisenberg

En introduisant dans l'expression du hamiltonien précédent le terme d'échange d'Heisenberg $\hat{H} = -2 \sum_{i < j} J_{ij} \hat{G}_i \cdot \hat{G}_j$ on obtient la théorie la plus simple de spins en interaction pour l' ^3He solide.

Le terme de phonons étant découplé de celui de spins, il suffit de résoudre la partie magnétique :

$$\hat{H} = -\frac{1}{2} J \sum_{i < j} \hat{G}_i \cdot \hat{G}_j - \mu B_0 \sum_i \hat{G}_{3i}$$

où l'on a supposé qu'il n'existe qu'une seule constante J correspondant à l'échange entre premiers voisins ("Modèle Heisenberg Nearest Neighbour ou HNN" dans la littérature anglosaxonne).

Même avec ces simplifications, il n'existe pas de solution exacte à ce problème. Un développement de la fonction de partition en puissances de $x = J / k_B T$ et $y = \mu B_0 / k_B T$, (valable à hautes températures, $k_B T \gg J$, et bas champ, $\mu B_0 \ll k_B T$) a permis de calculer les coefficients des 10 premiers termes de la susceptibilité magnétique et de la chaleur spécifique à champ nul, et les 8 premiers termes du développement en puissances de $y = \mu B_0 / k T$ (Baker et al. 1967).

A bas champ ($y \ll 1$), on obtient les expressions suivantes :

$$S / R = \sum_{n \geq 0} \left[(1-n) e_n / 2^n n! x^n \right]$$

$$C / R = \sum_{n \geq 0} \left[n (n - 1) e_n / 2^n n! x^n \right]$$

$$P_V(T) = N (\partial J / \partial V)_{T,H} \sum_{n \geq 0} (n e_n / 2^n n!) x^{n-1}$$

$$\chi = (\mu_0 N V^2 / V k_B T) \sum_{n \geq 0} (\alpha_n / 2^n n!) x^n$$

pour l'entropie, la chaleur spécifique, la pression à volume constant et la susceptibilité magnétique. Les premiers coefficients e_n et α_n sont donnés par la table IV-2 :

	n	e_n	α_n
fcc	1	0	12
	2	18	240
	3	108	6 624
	4	180	234 720
	5	-5 040	10 208 832
	6	152 000	526 810 176
	7	14 565 600	31 434 585 600
	8	563 253 408	2 127 785 025 024
	9	17 544 639 744	161 064 469 168 128
	10	750 651 187 968	
bcc	1	0	8
	2	12	96
	3	-24	1 664
	4	168	36 800
	5	1 440	1 008 768
	6	24 480	32 626 560
	7	-297 024	1 221 399 040
	8	28 017 216	51 734 584 320
	9	-533 681 664	2 459 086 364 672
	10	41 156 316 672	129 082 499 311 616
sc	1	0	6
	2	9	48
	3	-18	528
	4	-162	7 920
	5	2 520	149 856
	6	33 192	3 169 248
	7	-1 019 088	77 046 528
	8	-7 804 944	2 231 209 728
	9	723 961 728	71 938 507 776
	10	2 596 323 904	2 446 325 334 208

Table IV-2.

L'entropie en champ nul est alors :

$$\frac{S}{R} (H = 0) = \ln 2 - \frac{3}{2} \left(\frac{J}{k_B T} \right)^2 + \left(\frac{J}{k_B T} \right)^3 - \frac{21}{16} \left(\frac{J}{k_B T} \right)^4 - \frac{3}{2} \left(\frac{J}{k_B T} \right)^5 - \frac{85}{32} \left(\frac{J}{k_B T} \right)^6 + 2.76 \left(\frac{J}{k_B T} \right)^7 + \dots$$

En champ non nul, il faut ajouter une série de termes :

$$\frac{S}{R} (B_0 \neq 0) = \frac{S}{R} (B_0 = 0) - \frac{1}{2} \left(\frac{\mu_B B_0}{k_B T} \right)^2 \left[1 + 8 \left(\frac{J}{k_B T} \right) + 36 \left(\frac{J}{k_B T} \right)^2 + \frac{416}{3} \left(\frac{J}{k_B T} \right)^3 + \frac{2875}{6} \left(\frac{J}{k_B T} \right)^4 + \frac{7881}{5} \left(\frac{J}{k_B T} \right)^5 + \frac{118951}{24} \left(\frac{J}{k_B T} \right)^6 + \frac{954218}{63} \left(\frac{J}{k_B T} \right)^7 + \frac{10104411}{224} \left(\frac{J}{k_B T} \right)^8 + \frac{42883063}{324} \left(\frac{J}{k_B T} \right)^9 + 3.821176 \times 10^5 \left(\frac{J}{k_B T} \right)^{10} + \dots \right]$$

qui converge très lentement à basses températures ; pour $J < 0$, l'effet du terme dépendant du champ est réduit par rapport à la valeur $-\frac{1}{2} \left(\frac{\mu_B B_0}{k_B T} \right)^2$ correspondant au paramagnétique ($J = 0$), et cet effet est d'autant plus important que la température est basse. Ainsi, le terme entre crochets vaut 0.457 pour $J / k_B T = -0.1$; pour $J / k_B T = -0.273$, la série converge lentement vers une valeur inférieure à 0.1.

Pour la chaleur spécifique, on obtient $C = T (\partial S / \partial T)_{J,H}$:

$$C / R (B_0 = 0) = 3 \left(\frac{J}{k_B T} \right)^2 - 3 \left(\frac{J}{k_B T} \right)^3 + \frac{21}{4} \left(\frac{J}{k_B T} \right)^4 + \dots$$

$$\text{et } C / R (B_0 \neq 0) = C / R (H = 0) + \frac{1}{2} \left(\frac{\mu_B B_0}{k_B T} \right)^2 \left[1 + 16 \frac{J}{k_B T} + \dots \right]$$

Et la susceptibilité à champ nul est égale à :

$$\chi = \frac{\mu_0 N \mu^2}{V k_B T} \left[1 + 4 \left(\frac{J}{k_B T} \right) + 12 \left(\frac{J}{k_B T} \right)^2 + \dots \right]$$

En première approximation, cette forme se ramène à une loi de Curie-Weiss .

$$\chi = C / (T - \theta)$$

avec

$$\theta = 4 J / k_B$$

Les calculs de Baker et al. (1967) montrent en outre que des interactions d'échange $J < 0$ conduisent à une transition de second ordre vers une phase antiferromagnétique à basses températures. La température de Néel, serait, dans le cas de $l^3\text{He}$ solide corps-centré :

$$T_N = - 2.748 J / k_B = - 0.687 \theta$$

Une deuxième approche est constituée par le calcul des propriétés thermodynamiques dans le cadre de la théorie du champ moléculaire de P. Weiss. Dans ce modèle, l'effet des interactions sur un spin donné est simulé par un "champ moléculaire" B_m proportionnel à l'aimantation du système. Le champ est obtenu en considérant l'énergie d'un spin donné en interaction avec ses voisins par l'hamiltonien d'Heisenberg :

$$H_i = - \gamma \hbar B_0 S_{zi} - 2 J \vec{S}_i \cdot \sum_j \vec{S}_j$$

le dernier terme est écrit $\approx 2 J \vec{S}_i \cdot \sum_j \vec{S}_j \equiv \gamma \hbar B_m$, en prenant la moyenne sur S_j , ce qui définit le champ moléculaire $B_m = \alpha M$.

On est ramené au problème d'un atome dans un champ $B = B_0 + B_m$, mais B_m doit être déterminé de façon auto-consistante : l'aimantation est donnée par la loi de Brillouin dans le champ $B = B_0 + \alpha M$:

$$M = M_0 B_J \left(\frac{(B_0 + \alpha M) \mu}{k_B T} \right)$$

A bas champ $\mu_0 M = \chi_p (B_0 + \alpha M)$, χ_p étant la susceptibilité paramagnétique :

$\chi_p = C / T$ ($C \equiv$ Constante de Curie) ; l'aimantation est alors : $M = C B_0 / (T \mu_0 - C \alpha)$

et la susceptibilité de système :

$$\chi = \frac{M}{H} \approx \frac{\mu_0 M}{B_0} = \frac{C}{T - \theta} \quad \text{avec} \quad \theta = \frac{C \alpha}{\mu_0}$$

A fort champ, on peut obtenir l'aimantation et l'entropie, le calcul autoconsistant étant effectué à l'ordinateur.

Les figures IV-8, 9 et 10 représentent le résultat de nos calculs pour l' ^3He solide, avec une valeur de $\theta = -3$ mK, correspondant à des interactions d'échange anti-ferromagnétiques ($J < 0$).

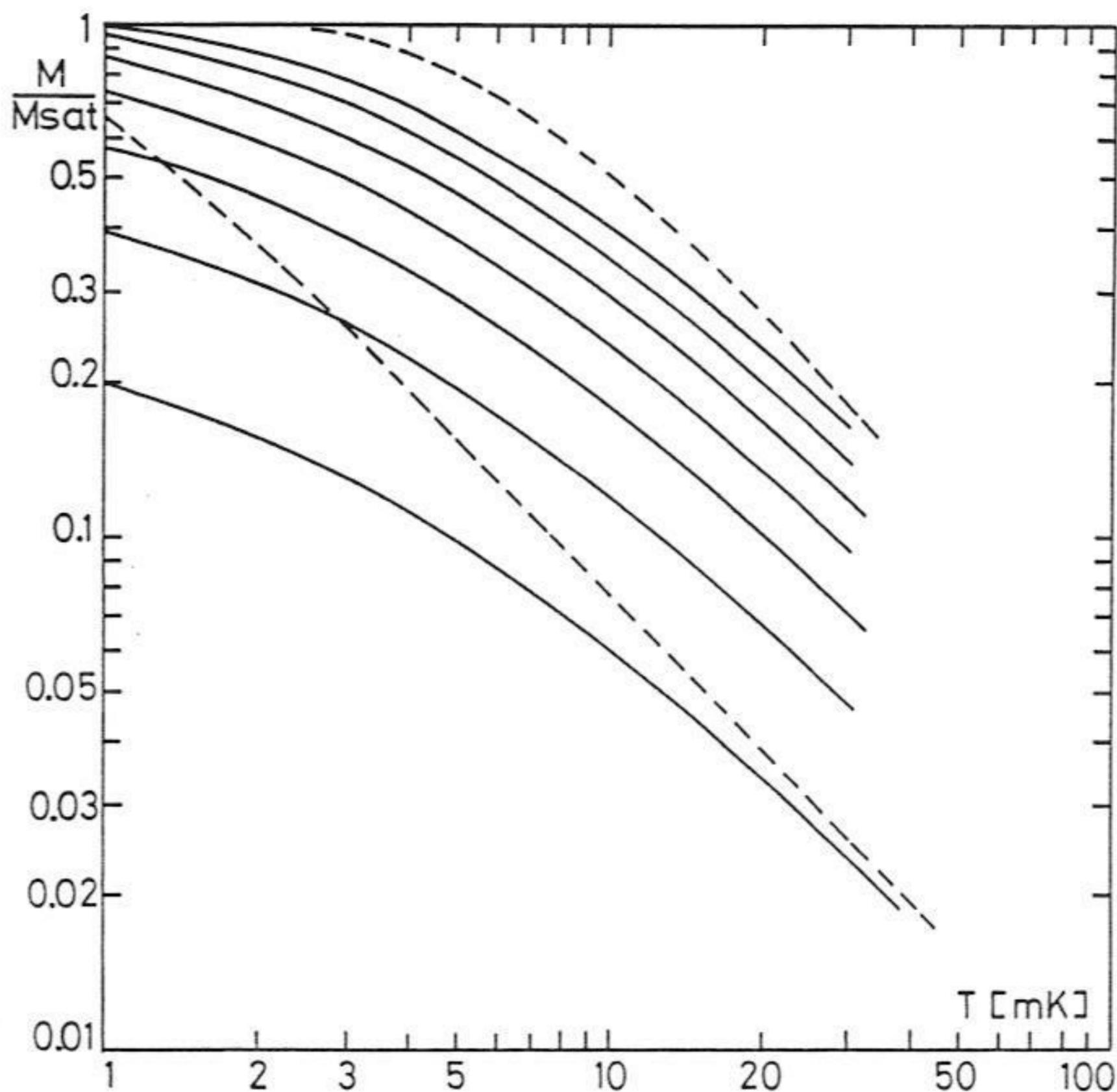


Fig. IV-8 : Aimantation en champ moléculaire (modèle d'Heisenberg).

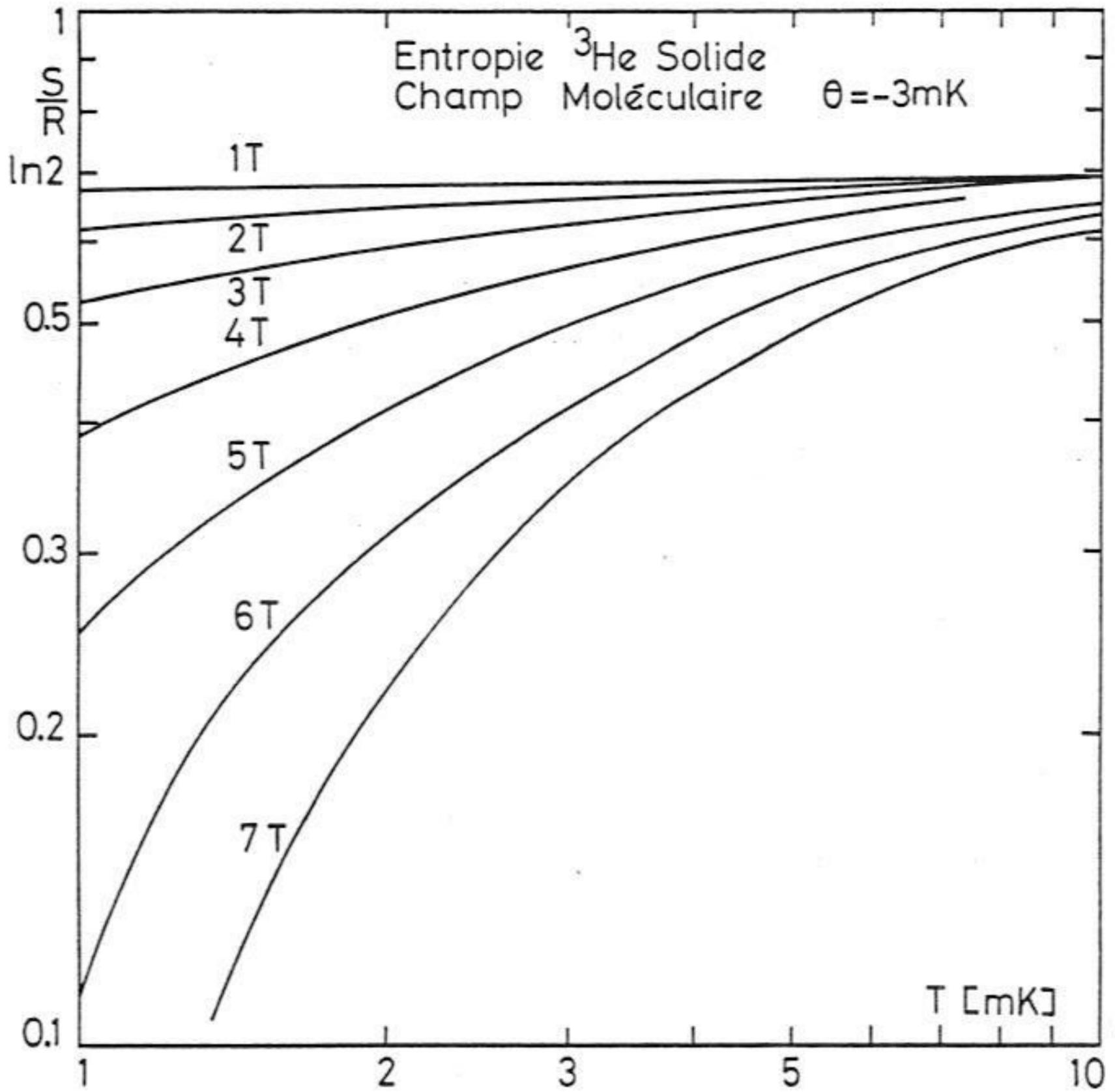


Fig. IV-9.

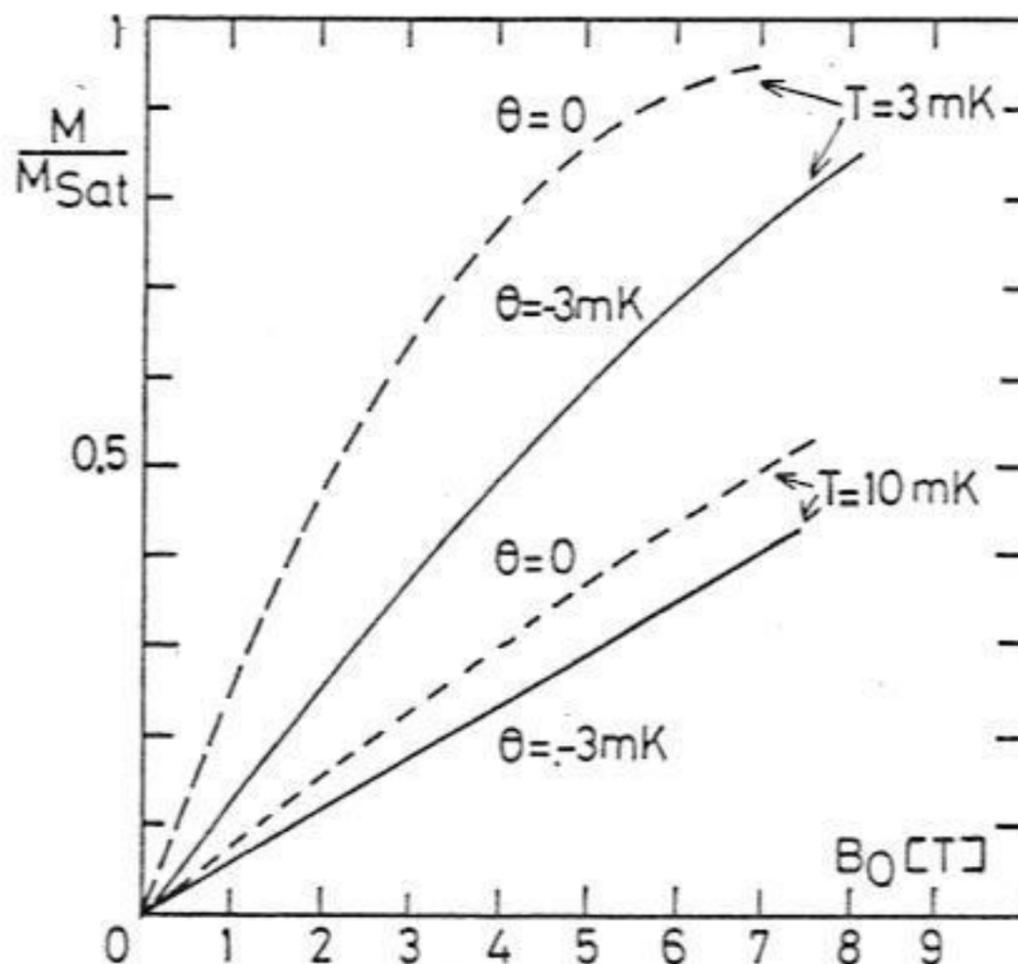


Fig. IV-10 : Courbe d'aimantation (champ moléculaire, modèle d'Heisenberg).

Expérimentalement, la chaleur spécifique comporte un terme de la forme $3 \left(\frac{J}{k_B T} \right)^2$, et la susceptibilité est bien décrite par la loi de Curie-Weiss avec une valeur de θ correspondant effectivement à $4 J / k_B$. Ces expériences, que nous décrivons plus loin, donnent la grandeur et le signe de J (environ -0.75 mK sur la courbe de fusion).

Au premier ordre, le modèle d'Heisenberg décrit correctement les propriétés "hautes températures". Cet accord se dégrade au voisinage de la température de transition; celle-ci se situe expérimentalement à 1 mK, au lieu de ~ 2 mK (donnés par $T_N = -2.748 J / k_B$); elle est fortement du premier ordre (ce modèle prévoyant une transition du 2^e ordre). Finalement, les corrections au deuxième ordre du développement en série de C qui se manifestent à basses températures ont le signe opposé à celui prédit par ce modèle.

L'échec du modèle d'Heisenberg au voisinage de la transition a conduit à deux approches théoriques très différentes : d'une part, un développement des modèles d'échan-

ge en incluant les permutations à 3 et 4 spins, et d'autre part, la naissance de modèles considérant le couplage de l'échange aux phonons ou aux lacunes.

c) Modèles de couplage échange-phonons

D'une façon formelle, le couplage entre l'échange et les phonons est décrit en considérant J_p dans l'expression $\hat{H}_{\text{éch}} = \sum_p (-1)^p J_p \hat{P}_p$ comme un opérateur agissant sur les états de phonons : le processus d'échange est accompagné d'une absorption et d'une émission de phonons, et \hat{J}_p a des éléments de matrice non diagonaux, ce qui est négligé lorsque \hat{J}_p est assimilé à une constante (Mc Mahan, 1972). Les modèles suivants traitent cet effet de façon approchée.

- Modèle de Bean et Rodbell-Landesman

Le modèle de magnétostriction de Bean et Rodbell (1962) a été appliqué à l' ^3He solide par Landesman (non publié ; voir la Thèse de Roger, 1980).

On suppose une dépendance de J en fonction du volume molaire de la forme $J = J_0 (1 + \Gamma_J \frac{\Delta V}{V_0})$; le facteur Γ_J ("Grüneisen magnétique") est déterminé expérimentalement : $\Gamma_J \equiv \frac{\partial \ln J}{\partial \ln V} \approx 18$.

L'énergie libre du système comporte donc un terme d'échange dépendant du volume, et une contribution élastique proportionnelle à la compressibilité K du réseau. On obtient une transition du 1^{er} ordre accompagnée d'un changement de volume $\Delta V \sim -2 N J_0 K \Gamma_J$ lorsque $\eta > 1$, avec :

$$\eta \equiv \frac{3}{2} \frac{N}{V} k_B T_N \Gamma_J^2 K$$

où $T_N \sim 2 \text{ mK}$ est la température calculée de la transition de 2^d ordre.

Pour ^3He solide, $\eta < 2 \times 10^{-2}$, ce qui semble exclure la possibilité d'un effet de magnétostriction. Signalons toutefois que l'hypothèse d'isotropie employée dans ce modèle n'est pas satisfaite par l' ^3He (Trickey et al. 1972)

- Modèle de M. Papoular : déformation locale du réseau

La description de l' ^3He effectuée par Papoular (1977, 1978a et b) et Canning et Guyer (1978) est similaire à celle des parois dans le cadre de la dynamique non linéaire

de réseaux. On suppose un couplage fort entre les spins et les phonons, ce qui induit une forte distorsion de réseau lors du retournement d'un spin dans un réseau ordonné antiferromagnétiquement.

Un calcul d'ordres de grandeur montre que l'échelle d'énergie, fixée par $2n_1J$ (où n_1 est le nombre de premiers voisins), implique une déformation du réseau $\Delta V / V \sim 2\%$.

Cette valeur n'est pas forcément en contradiction avec l'expression de $\Delta V / V$ de Bean et Rodbell, qui donne $\frac{\Delta V}{V} \ll 10^{-3}$, car le modèle de Papoular décrit un défaut localisé intéressant un faible nombre d'atomes, dans un cas extrêmement non linéaire.

Microscopiquement, la création du défaut peut se comprendre de la façon suivante : lorsqu'un spin faisant partie d'un réseau antiferromagnétique se retourne, l'énergie d'échange augmente de $2 n_1 |J|$. L'énergie d'échange diminue lorsque les particules se rapprochent ; les premiers voisins se rapprocheront par conséquent de l'atome considéré, ce qui réduit l'énergie $2 n_1 |J|$ calculée précédemment.

D'autre part, la distance entre les premiers et deuxièmes voisins augmentera ; de ce fait, l'interaction d'échange sera plus forte, ce qui baisse l'énergie totale, ces spins ayant une orientation relative antiparallèle.

Ainsi, l'énergie d'activation E_{act} de ces "défauts" est nécessairement inférieure à $2 n_1 |J|$.

La concentration de "défauts" est $x \approx e^{-E_{act} / k_B T}$; pour $E_{act} \approx 5$ mK, on obtient la disparition de l'ordre à $T_N \approx 1$ mK pour une "concentration critique" de 1%. Le changement de volume à T_N est alors estimé à $\Delta V / V \approx -2 \times 10^{-4}$.

Ce modèle permet d'expliquer le caractère fortement du premier ordre de la transition ainsi que le changement de volume associé, et la tendance ferromagnétique à très basses températures superposée à la loi de Curie-Weiss antiferromagnétique.

Mais, cette description a l'inconvénient d'être très qualitative, et surtout de ne pas rendre compte de l'existence de la phase fort champ au dessus de 0.4 T. Nous pensons cependant que la déformation du réseau doit favoriser les échanges à plusieurs spins (le réseau est dilaté au niveau des seconds voisins), cet effet n'étant pas considéré en employant $\Gamma_J \sim 18$ dans le critère de Bean-Rodbell. Signalons également que l'utilisation de la compressibilité isotrope dans cette expression sous estime les valeurs de déformation locale possible dans d'³He. Il serait souhaitable d'étudier théoriquement l'influence de ces effets de "petits polarons" sur la grandeur de l'échange multiple.

- Modèle de Guyer et Kumar : distorsion périodique du réseau

Ce modèle décrit la transition du premier ordre à T_N au moyen du hamiltonien de couplage spin-réseau :

$$H = - 2 \sum_{i < j} K_1 \frac{R_{ij}^+}{|R_{ij}|} \cdot (\vec{u}_j - \vec{u}_i) \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + \frac{1}{2} \sum_{ij} \vec{q}_{ij} : \vec{u}_i \cdot \vec{u}_j$$

tenant compte de l'anisotropie du tenseur d'élasticité ainsi que de la variation de l'échange avec le déplacement des atomes. Guyer et Kumar en déduisent la structure magnétique de la phase ordonnée : une succession de paires de plans de même orientation de spin, ce qui est en accord avec l'expérience d'Osheroff et al. (1980). Ce modèle prédit une distorsion du réseau, ce point n'ayant pas été étudié expérimentalement ; il ne fournit par contre aucune indication sur les propriétés "hautes températures", l'hamiltonien de départ étant extrêmement simplifié.

Par contre, il ne semble pas possible d'expliquer à l'aide de cette théorie l'existence d'une deuxième phase ordonnée à fort champ.

d) Modèles de couplage échange-lacunes

Plusieurs auteurs ont contribué à l'étude des effets magnétiques du couplage échange-lacunes, suivant la prédiction théorique d'Andreev et Lifshitz (1969) de l'existence de lacunes de point zéro décrites précédemment.

Le théorème de Nagaoka (1966), Brinkman et Rice (1970) montre que l'état fondamental d'un système de spins sur un réseau alterné comportant des lacunes est ferromagnétique ; on s'attend par conséquent à une transition vers un état ferromagnétique à une température proportionnelle à leur concentration x_L . (Un réseau alterné est celui pour lequel tous les chemins fermés joignant des premiers voisins comportent un nombre pair de sites ; le cubique centré fait partie de cette catégorie).

Si la concentration de lacunes est faible, et si leur largeur de bande est supérieure à $k_B T$, les états de moindre énergie de la bande sont occupés. La largeur de la bande dépend de l'état magnétique du système, et le résultat de Nagaoka implique un pied de bande déplacé vers les basses énergies dans le cas ferromagnétique.

Sokoloff et Widom (1975a et b, 1976) ont montré qu'une concentration de lacunes de point zéro $\sim 10^{-4}$ pouvait expliquer une transition ferromagnétique du premier ordre dans la gamme du millikelvin.

Andreev (1976) et Héritier et Lederer (1977, 1978, 1979) ont montré que la lacune minimise son énergie cinétique en se localisant ; la taille de ce "polaron de spin" dépend de la

température : environ 40 atomes à $T = 0$, et disparaît vers 30 mK. Les conséquences de ce modèle sur le magnétisme de l' ^3He solide ont été calculées en détail (Montambaux, Lederer, Héritier, 1979, et références citées dans cet article). Le blocage de ces polarons en une phase de type verre de spin a été analysé par M.T. Béal-Monod (1977). Les effets d'un champ magnétique élevé ont été considérés par Andreev, Marchenko et Meierovich (1977) en considérant simultanément l'échange et les lacunes ; leur diagramme de phases, très qualitatif, est représenté sur la figure IV-11.

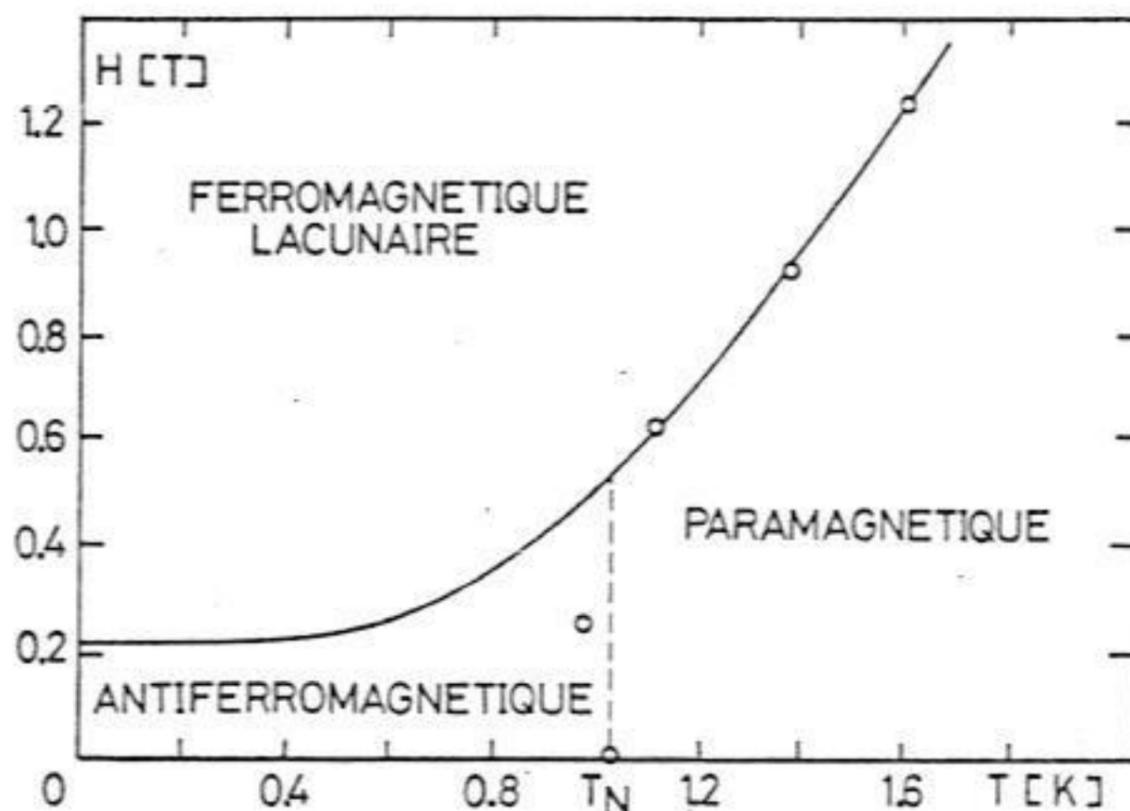


Fig. IV-11 : Diagramme de phases (Modèle d'Adreev, Marchenko et Meierovich).

Un modèle de paires de Frenkel (Young, 1979) s'applique à la région "hautes" températures ; un accord raisonnable avec les expériences est obtenu au prix d'un nombre important de paramètres ajustables.

Ces modèles ne décrivent pas bien les propriétés magnétiques nucléaires de l' ^3He au voisinage de l'ordre. Par ailleurs on n'observe pas expérimentalement le maximum de chaleur spécifique dû aux polarons éventuels ; la phase bas champ est ordonnée antiferromagnétiquement, la transition étant du premier ordre ; la phase fort champ, dont l'aimantation pourrait correspondre aux prédictions de ces modèles, est obtenue par une transition du second ordre. Finalement, il n'existe aucune preuve expérimentale de l'existence des lacunes de point zéro.

Si elles sont effectivement présentes dans le système, leur effet pourrait se manifester en altérant les permutations de spin possibles, décrites au paragraphe suivant ; le calcul microscopique des coefficients d'échange multiple devrait alors en tenir compte (Delrieu, communication privée).

e) Modèles d'échange multiple

La meilleure description du comportement magnétique de l' ^3He solide est fournie actuellement par le modèle d'échange multiple. L'hamiltonien considéré est de la forme :

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{ph}} + \hat{H}_{\text{éch}} + \hat{H}_Z$$

Le terme de phonons n'est pas couplé à l'échange ou au Zeeman, et se résoud séparément ; la partie dépendant du spin est donc $\hat{H}_{\text{éch}} + \hat{H}_Z$. L'hamiltonien d'échange, $\hat{H}_{\text{éch}}$, dont la forme générale (cf. § IV-B-c) est $\sum_{\text{P}} (-1)^{\text{P}} J_{\text{P}} \hat{P}_{\text{S}}$, peut être développé en exprimant les opérateurs de permutation de spins en fonction des matrices de Pauli. Pour cela, il suffira d'effectuer la décomposition des opérateurs de permutation en produit de transpositions, l'opérateur de transposition de spins étant $\hat{P}_{12} = \frac{1}{2} (1 + \hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_2)$.

Ainsi, la permutation de 3 spins \hat{P}_{123} s'écrit :

$$\hat{P}_{123} = \hat{P}_{13} \hat{P}_{12} = \frac{1}{4} (1 + \hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_3) (1 + \hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_2)$$

Les $\hat{\sigma}_i$ étant des matrices de Pauli ; on en déduit que :

$$\hat{P}_{123} = \frac{1}{4} (1 + \hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_2 + \hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_3 + \hat{\sigma}_2 \hat{\sigma}_3 + i \hat{\sigma}_1 (\hat{\sigma}_3 \wedge \hat{\sigma}_2))$$

Physiquement, il est évident que la permutation inverse \hat{P}_{321} a lieu avec la même probabilité, donc le même coefficient J_{P} ; ces termes s'ajoutent dans l'expression de l'hamiltonien :

$$\hat{P}_{123} + \hat{P}_{321} = \frac{1}{2} (1 + \hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_2 + \hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_3 + \hat{\sigma}_3 \hat{\sigma}_2)$$

Les permutations de 3 spins se ramènent par conséquent à une somme de transpositions, donc à un hamiltonien d'Heisenberg qui ne comprend que des termes d'ordre 2 en $\hat{\sigma}$.

Les permutations de 4 spins, par contre, introduisent des termes d'ordre 4, de la forme $-K \left[(\hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_2) (\hat{\sigma}_3 \hat{\sigma}_4) + (\hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_4) (\hat{\sigma}_2 \hat{\sigma}_3) + \lambda (\hat{\sigma}_1 \hat{\sigma}_3) (\hat{\sigma}_2 \hat{\sigma}_4) \right]$, les constantes K et λ dépendant du type d'échange considéré parmi les nombreuses permutations de 4 spins possibles pour la structure cubique à corps centré.

L'introduction de termes d'ordre 4 dans l'énergie libre donnera lieu à une transition du premier ordre, en accord avec l'expérience ; il est cependant nécessaire de justifier le poids statistique important attribué à ces termes dans les théories d'échange multiple. Ceci implique la description microscopique du système d'atomes d' ^3He en interaction ; Thouless (1965) a non seulement suggéré l'hamiltonien décrit précédemment, mais également le formalisme permettant de calculer les constantes d'échange. La diffi-

culté du problème réside dans le calcul de la fonction d'onde des particules, en particulier loin de la "position d'équilibre" $\langle R_i \rangle$; c'est en effet la forme des ailes des fonctions d'ondes de particules voisines qui déterminera leur recouvrement, donc la constante d'échange. Les premiers calculs (Guyer et Zane, 1969 ; Mc Mahan et Guyer (1973); Mc Mahan et Wilkins (1975), et références de ces articles) ont fourni des valeurs relativement faibles pour les probabilités d'échange à 3 et 4 spins, en utilisant des fonctions d'onde variationnelles produit d'une gaussienne par une fonction de Jastrow. (Celle-ci est introduite pour tenir compte des corrélations à courte distance dues au coeur dur du potentiel d'interaction).

Un argument heuristique rendu célèbre par Delrieu montre cependant que l'échange multiple peut être dominant par rapport à celui de deux spins : il suffit de considérer 4 disques (simulant les coeurs durs) dans une boîte plane où ils se trouvent à l'étroit, ce qui représente schématiquement le cas de l' ^3He cubique corps centré.

Dans cette configuration, il est impossible d'échanger deux particules sans superposer les disques, alors que 3 ou 4 particules s'échangent cycliquement sans difficulté.

Delrieu et Roger (1978, 1980) ont effectué un calcul tenant compte des corrélations dans les configurations critiques d'échange ; leurs résultats confirment l'importance de l'échange à 3 et 4 spins, mais ne peuvent pas fournir une valeur précise des coefficients correspondants.

En fait, la meilleure justification est fournie par le succès de l'hamiltonien à 4 spins dans sa description des propriétés expérimentales de l' ^3He solide.

Le premier modèle réaliste d'échange multiple est celui de Hetherington et Willard (1975), considérant des échanges à 2, 3 et 4 particules. Deux techniques de calcul sont employées : le développement hautes températures de la fonction de partition et le calcul du diagramme de phases en champ moléculaire. La structure magnétique des phases ordonnées est postulée, et trois paramètres (représentant les trois types d'échange) sont introduits par ce modèle ; ceci permet de décrire correctement les propriétés hautes températures, l'entropie en fonction du champ magnétique mesurée par le groupe de Floride, la phase antiferromagnétique à bas champ, et suggère que la décroissance de l'entropie à haut champ correspond à une transition de phase du 2^e ordre.

Leur diagramme de phases, représenté sur la figure IV-12, a cependant l'inconvénient de fournir une région ordonnée antiferromagnétiquement au-dessus de la transition du premier ordre ; ils précisent par ailleurs que cette phase peut aisément disparaître par un calcul plus précis.

Ceci a été entrepris de façon détaillée et systématique par Roger (thèse, 1980) et Roger, Delrieu et Hetherington (1980 a et b, et références concernant les mêmes auteurs dans ces articles). Leur hamiltonien général considère toutes les permutations de

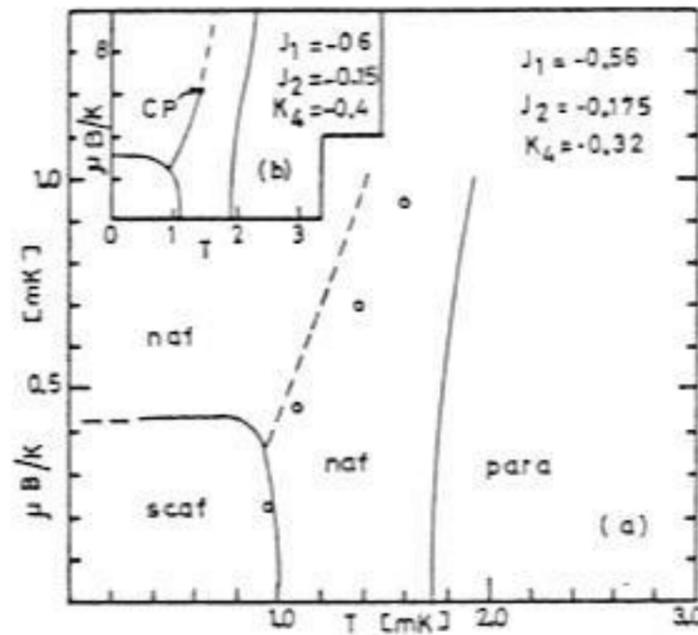


Fig. IV-12.

2, 3 et 4 spins, ce qui introduit de nombreux paramètres. Le problème peut se simplifier en constatant que les échanges non cycliques de quatre particules ainsi que les rotations en bloc d'un tétraèdre sont physiquement peu probables ; il se réduit par conséquent aux échanges à 2 et 3 particules, et à deux types d'échanges à quatre particules, suivant que le cycle soit plan (noté P) ou plié (noté F). La figure IV-13 représente les différents cycles décrits précédemment.

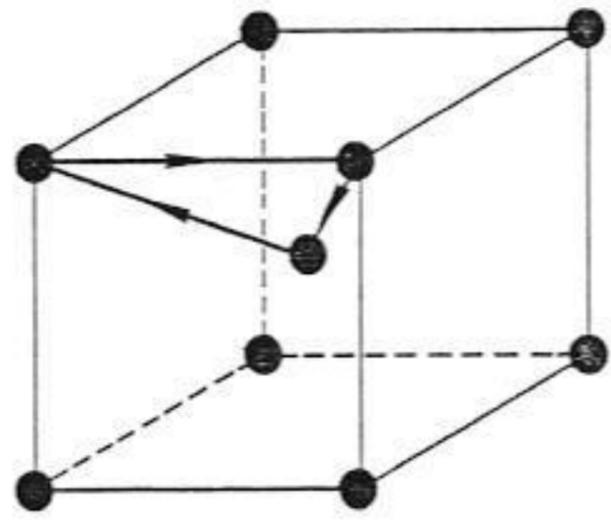
La forme générale de l'hamiltonien est :

$$\hat{H}_{\text{éch}} = -\frac{J_1}{2} \sum_{i < j}^{(1)} \hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_j - \frac{J_2}{2} \sum_{i < j}^{(2)} \hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_j - \frac{J_3}{2} \sum_{i < j}^{(3)} \hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_j$$

$$- \frac{K_F}{4} \sum_{i < j < k < l}^{(F)} \left[(\hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_j) (\hat{\sigma}_k \hat{\sigma}_l) + (\hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_l) (\hat{\sigma}_j \hat{\sigma}_k) + \lambda_F (\hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_k) (\hat{\sigma}_j \hat{\sigma}_l) \right]$$

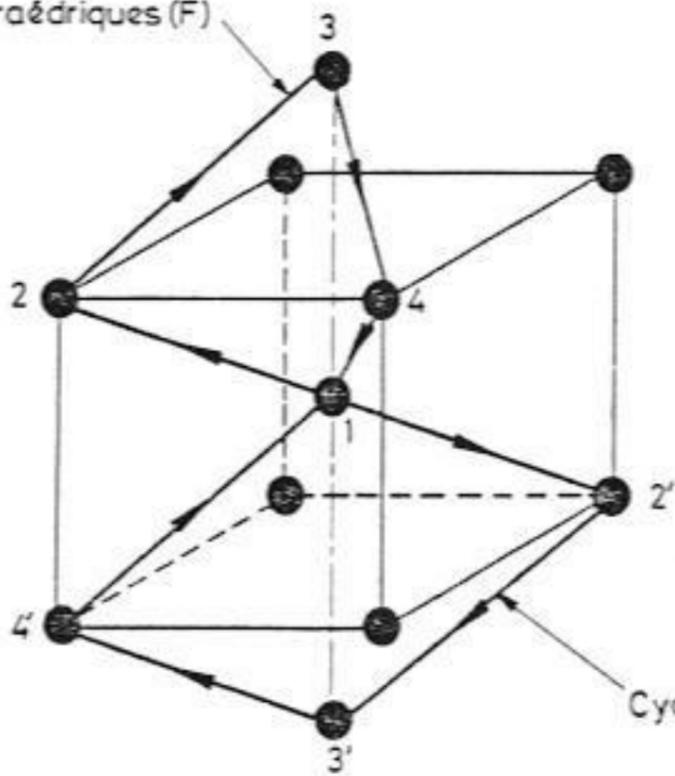
$$- \frac{K_P}{4} \sum_{i < j < k < l}^{(P)} \left[(\hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_j) (\hat{\sigma}_k \hat{\sigma}_l) + (\hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_l) (\hat{\sigma}_j \hat{\sigma}_k) + \lambda_P (\hat{\sigma}_i \hat{\sigma}_k) (\hat{\sigma}_j \hat{\sigma}_l) \right]$$

Le symbole $\sum^{(n)}$ désigne la somme sur les n -ièmes voisins ; J_1 , J_2 , J_3 sont des constantes d'échange effectives, somme des constantes d'échange à deux particules et des contributions provenant des termes quadratiques des opérateurs d'échanges de 3 et 4



Cycles à trois particules (T)

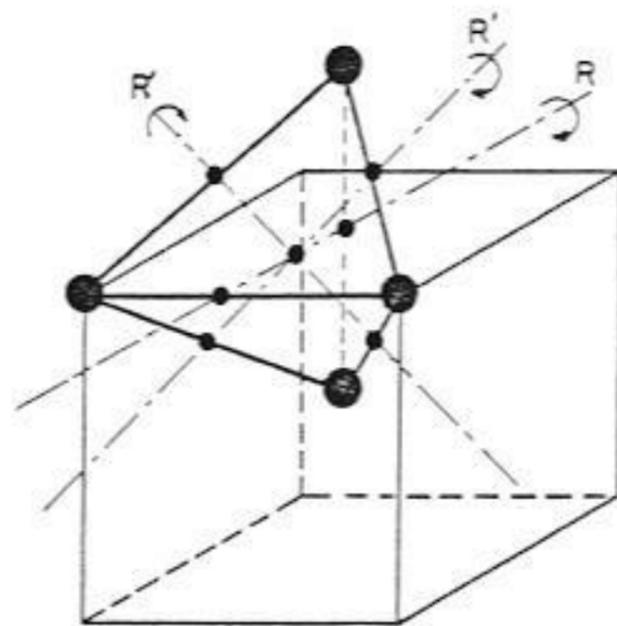
Cycles tétraédriques (F)



Cycles plans (P)

Cycles à quatre particules

Figure IV-13.



Rotations en bloc du tétraèdre échangeant simultanément deux couples d'atomes second voisins (R) ou premiers voisins (R')

spins. Si on ne retient que les échanges cycliques à quatre spins, $\lambda_F = \lambda_P = -1$.

Les symboles $\sum^{(F)}$ et $\sum^{(P)}$ désignent les sommes effectuées sur tous les cycles pliés et sur les cycles plans.

En comparant avec l'hamiltonien écrit en termes de permutations

$$\hat{H}_{\text{éch}} = - \sum_n J_n^0 \sum_{i<j}^{(n)} P_{ij} + J_t \sum_{i<j<k}^{(T)} P_{ijk} - K_F \sum_{i<j<k<l}^{(F)} P_{ijkl} - K_P \sum_{i<j<k<l}^{(P)} P_{ijkl}$$

on déduit les relations suivantes :

$$J_1 = J_1^0 + 3 (-2J_t + K_F + K_P)$$

$$J_2 = J_2^0 + 2 (-2J_t + K_F) + K_P$$

$$J_3 = J_3^0 + \frac{K_P}{2}$$

La simplification suivante consiste à négliger les termes d'échange de deux spins J_1^0 , J_2^0 et J_3^0 devant ceux de 3 et 4 spins J_t , K_F et K_P .

Roger, Delrieu et Hetherington ont analysé les cas suivants :

$$i) J_t \neq 0 ; K_F = K_P = 0$$

Ce cas se ramène, d'après l'expression de $\hat{H}_{\text{éch}}$ calculée précédemment, au hamiltonien d'Heisenberg. On peut démontrer que les constantes d'échange J_p du hamiltonien écrit en termes de permutations sont négatives, c-à-d que les permutations à nombre impair de particules sont ferromagnétiques, alors que celles d'un nombre pair de particules sont antiferromagnétiques.

Ce modèle conduit par conséquent à une transition ferromagnétique, en contradiction avec l'expérience.

$$ii) K_F \neq 0 ; K_P = J_t = 0$$

Dans ce cas on obtient un diagramme de phases (figure IV-14) en accord semi-quantitatif avec l'expérience. On trouve deux phases antiferromagnétiques, notées SCAF ("Simple Cubic Antiferromagnetic") et NAF ("Normal Antiferromagnetic") représentées sur la figure IV-15.

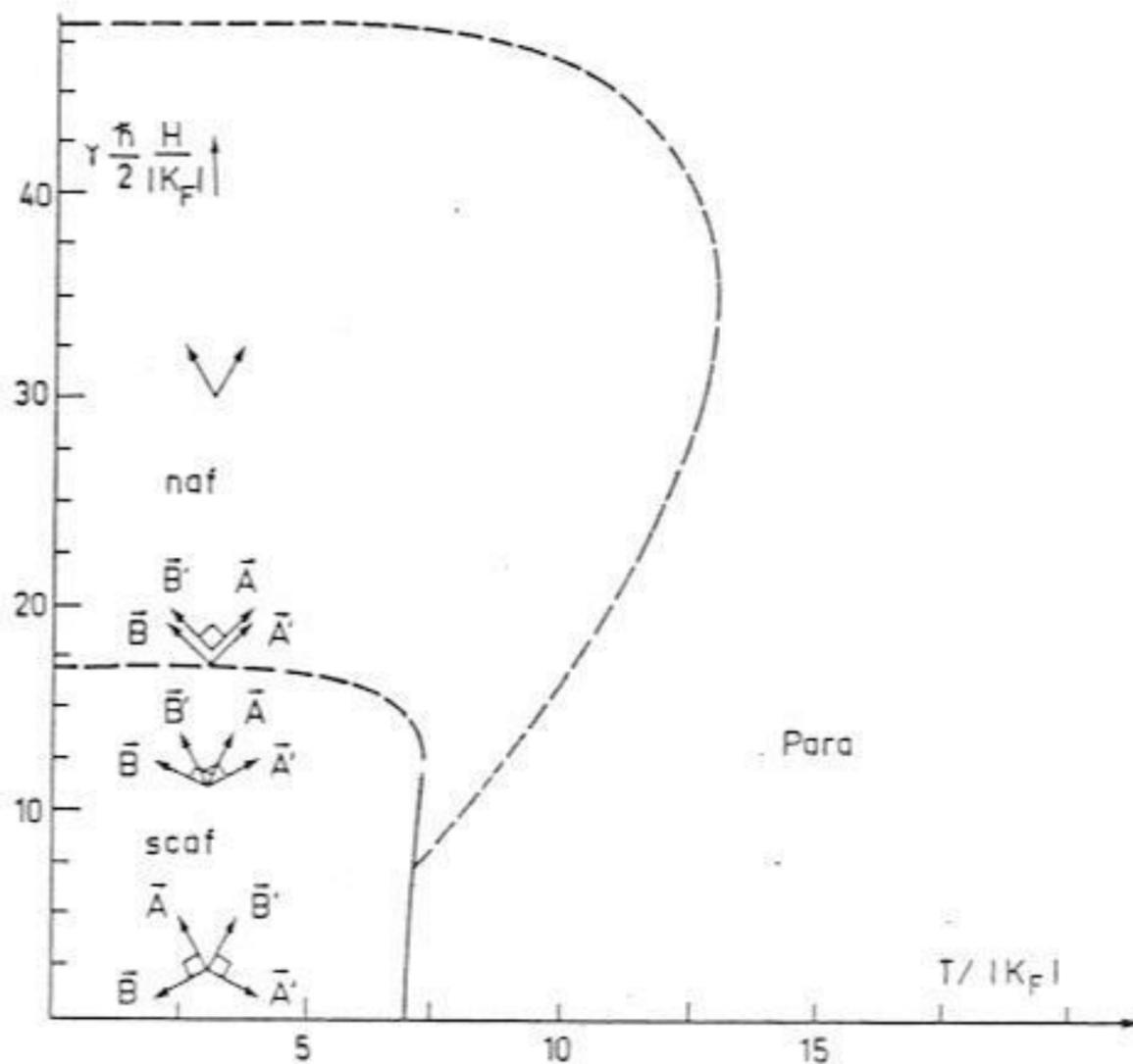


Fig. IV-14 : Modèle d'échange multiple à un paramètre (K_F).

Les résultats expérimentaux d'Osheroff et al. (1980) ont montré que la phase antiferromagnétique à bas champ est du type UDD (voir figure IV-15) ; ceci constitue le principal désaccord entre ce modèle et l'expérience. Il est néanmoins satisfaisant de pouvoir décrire qualitativement le comportement de ^3He solide au moyen d'un seul paramètre.

iii) $K_p \neq 0$; $J_T = K_F = 0$

A fort champ, ce modèle prédit la même phase que dans le cas précédent (NAF) ; à bas champ, par contre, on trouve que les phases SCAP // et UDD (figure IV-15) minimisent l'énergie si on se contente des solutions décrites par une seule composante de Fourier, c-à-d les structures de la forme $\vec{S}_i = \text{Re} (\vec{S}_K e^{i\vec{K} \cdot \vec{R}_i})$. Roger et al. ont montré que dans ce cas certaines phases plus compliquées ont une énergie inférieure : la phase SSQAF (simple square antiferromagnetic) représentée sur la figure IV-15 est

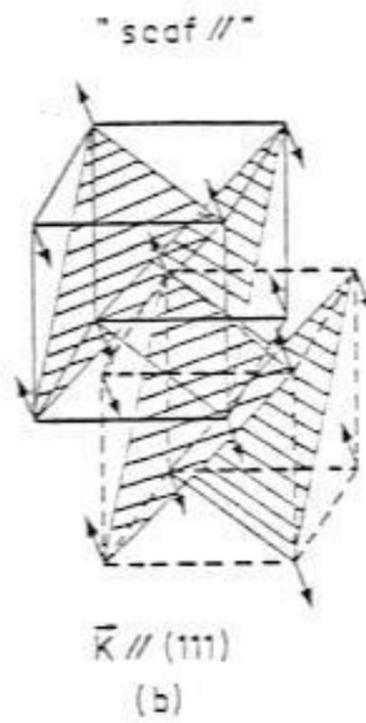
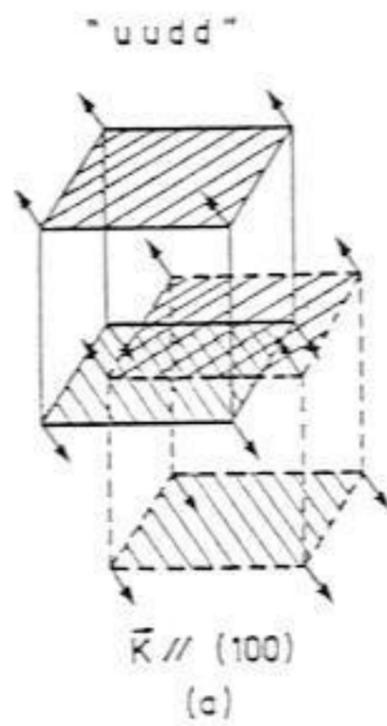
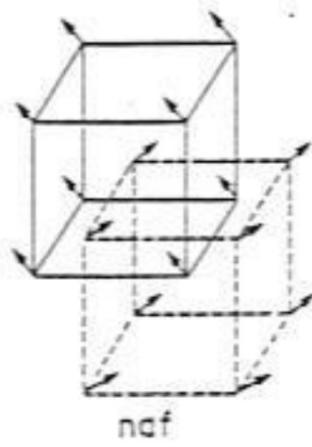
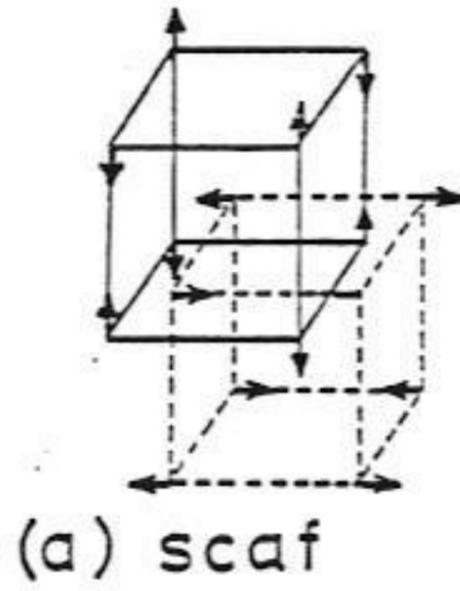
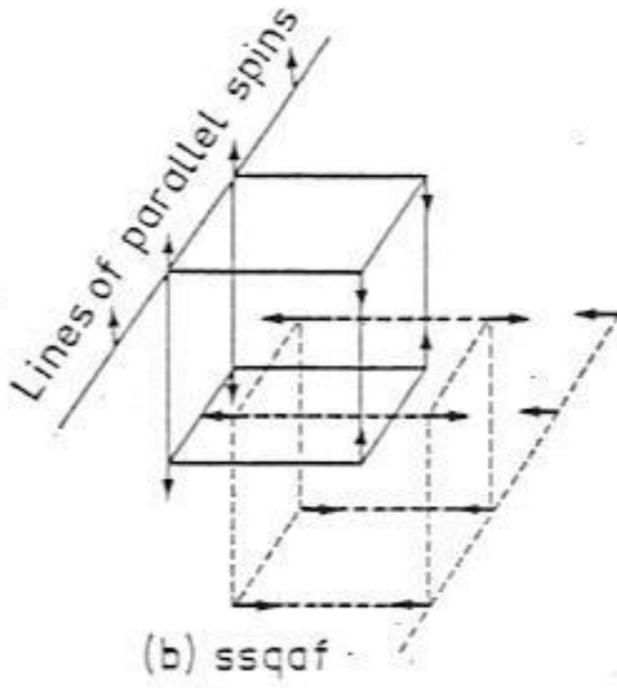


Figure IV-15.

la phase stable à bas champ. Comme dans le cas précédent, on obtient un accord semi-quantitatif avec l'expérience, mais la nature de la phase bas champ théorique n'est pas décrite correctement.

iv) K_F et $K_P \neq 0$; $J_t = 0$

Ce modèle n'est pas étudié en détail, car il ne décrit pas correctement le comportement à hautes températures.

v) K_P et $J_t \neq 0$; $K_F = 0$

L'introduction de l'échange triple permet de rendre compte des tendances ferromagnétiques des développements hautes températures ; la présence de K_F permet d'obtenir la phase à fort champ que nous avons étudié ; la phase bas champ, par contre, est du type SCAF, en contradiction avec l'expérience d'Osheroff et al.

vi) K_P et $J_t \neq 0$; $K_F = 0$

Ce modèle est en accord quantitatif avec tous les résultats expérimentaux : les développements hautes températures, la structure de la phase ordonnée bas champ déterminée par Osheroff et al., les limites et l'aimantation de la phase fort champ (nos mesures), etc...

La stabilité de la phase UDD implique $|J_t| > |K_P| / 4$; dans le cas contraire, la phase stable serait SSQAF.

La figure IV-16 représente le diagramme de phases obtenu dans cette approximation ; une petite région correspondant à une phase hélicoïdale est probablement un effet parasite de la technique de champ moléculaire ; les autres caractéristiques de ce diagramme seront discutées ultérieurement.

vii) K_P , K_F et $J_t \neq 0$

L'introduction d'un troisième paramètre (K_F) par rapport au modèle précédent ne modifie que très légèrement les conclusions antérieures. La figure IV-17 représente le diagramme de phases obtenu dans ce cas. On remarque une transition du premier ordre à fort champ qui n'a pas été observée expérimentalement.

On préfère par conséquent le modèle (K_P , J_t) qui fournit une excellente description de l' ^3He solide malgré le nombre restreint de paramètres ajustables.

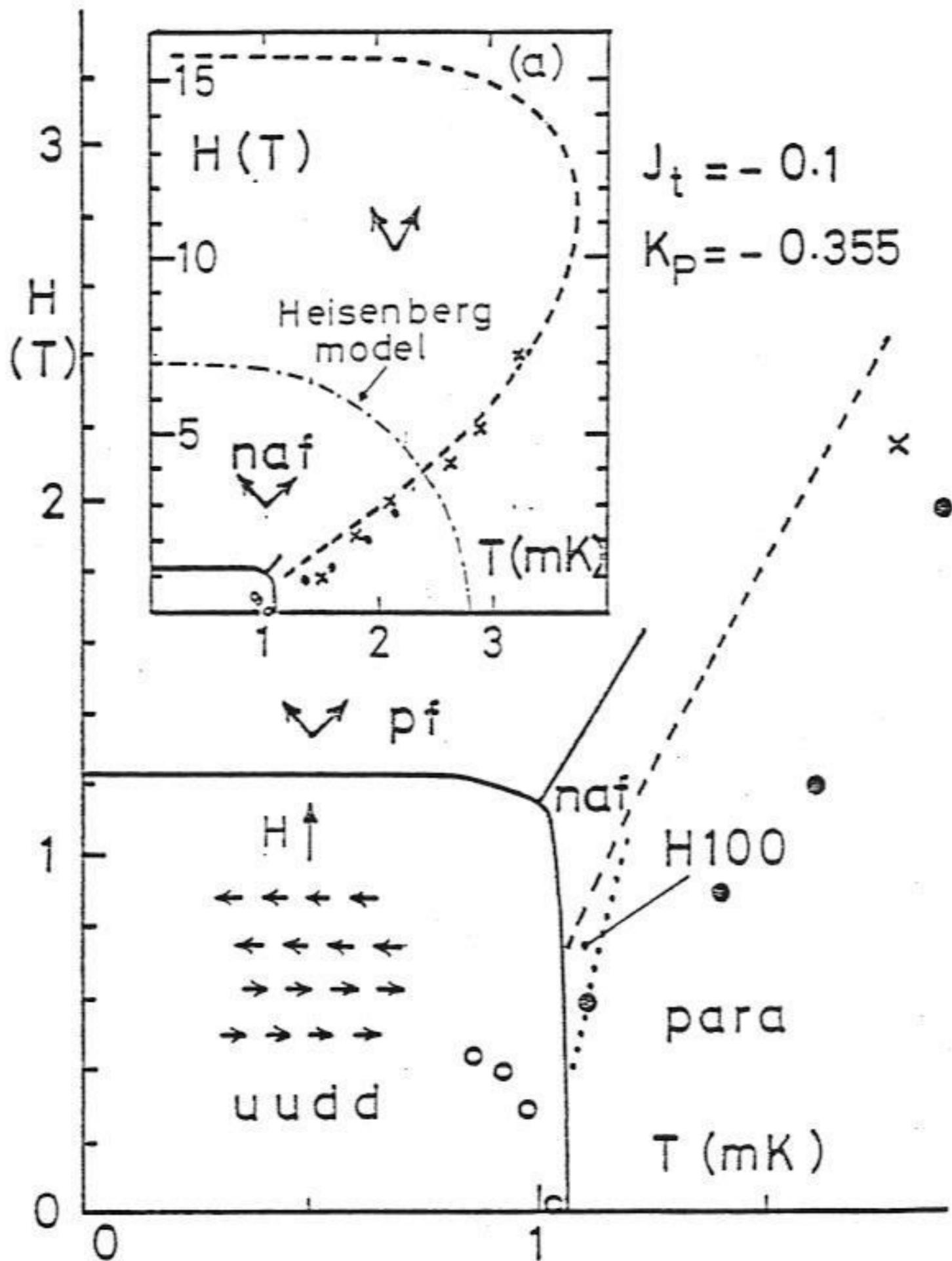


Fig. IV-16 : Modèle d'échange multiple à deux paramètres (J_t et K_p).

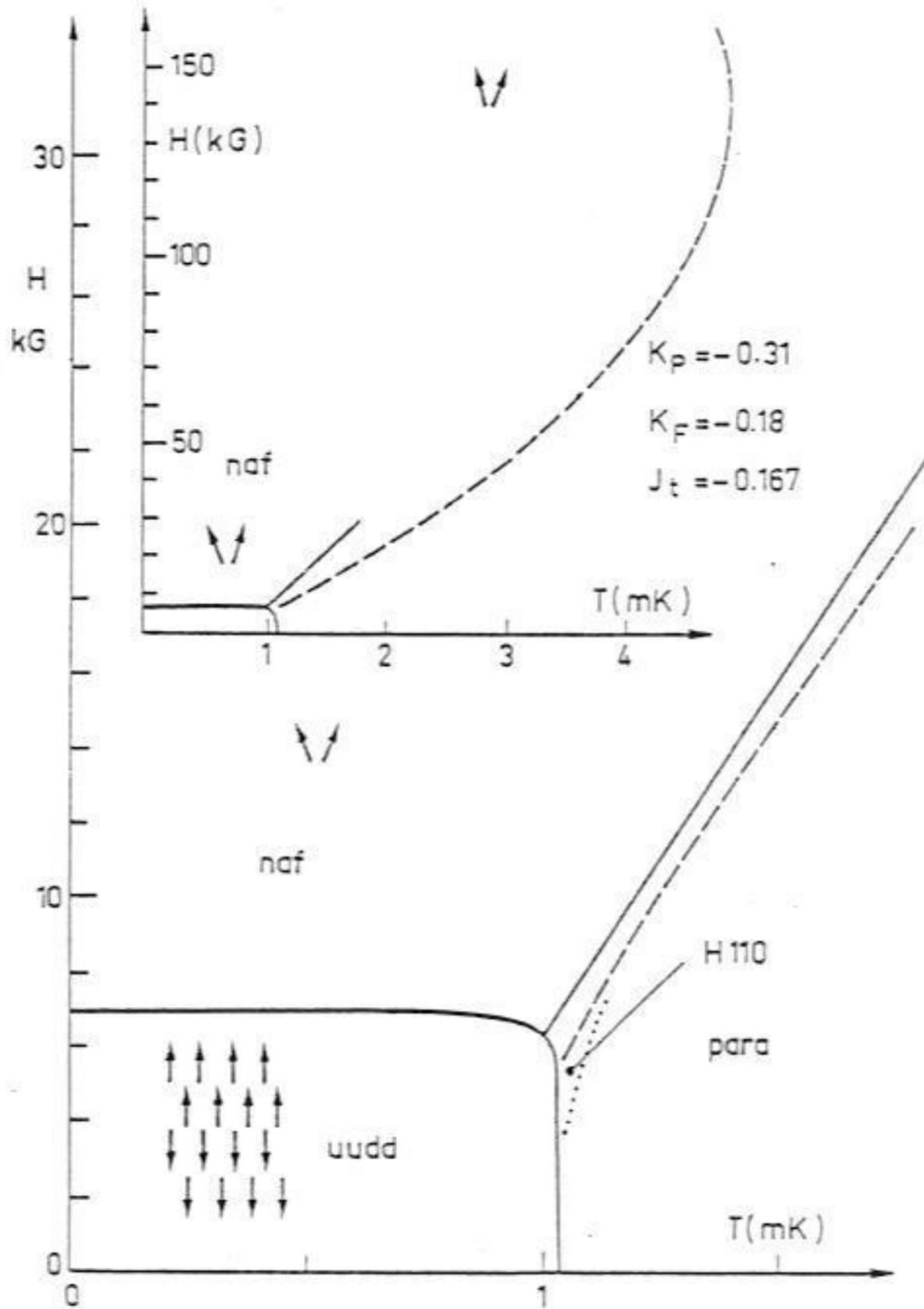


Fig. IV-17 : Modèle d'échange multiple à trois paramètres.

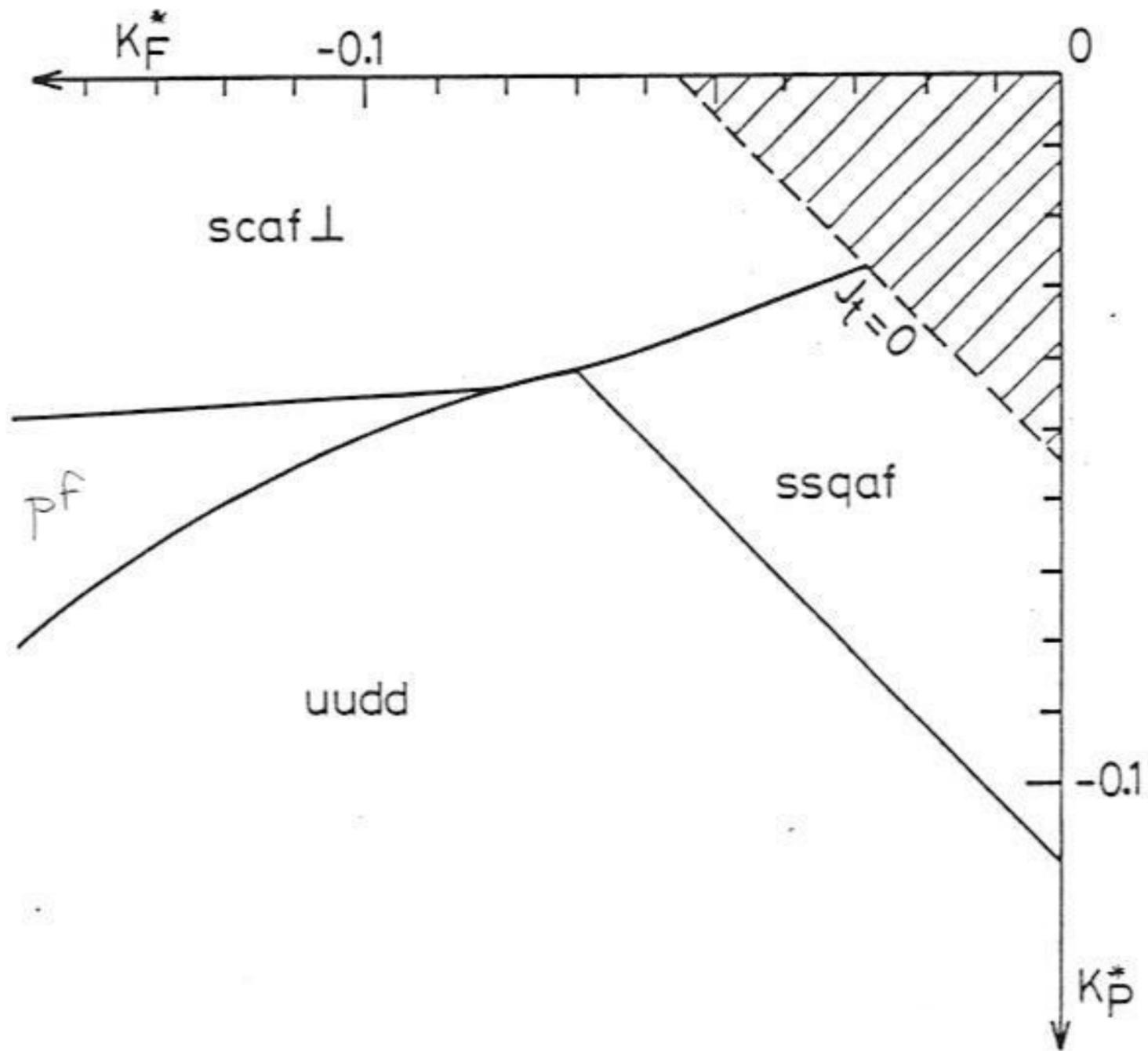


Fig. IV-18 : Modèle d'Echange Multiple à 3 Paramètres : phase stable à température nulle en fonction de K_F^* et K_P^* ($K_F^* = K_F / |\theta|$; $K_P^* = K_P / |\theta|$).

- Développements hautes températures dans le cadre des modèles d'échange

La recherche des structures magnétiques stables et la détermination des diagrammes de phases en champ moléculaire exigent des calculs sur ordinateur ; ceux-ci ont l'inconvénient de ne pas pouvoir être reproduits aisément, par exemple dans le cas où l'on souhaiterait modifier les valeurs des paramètres pour tenir compte de résultats expérimentaux plus précis.

Les développements haute température, par contre, peuvent être obtenus de façon exacte à partir de l'expression générale du hamiltonien d'échange. Plusieurs notations sont actuellement employées.

i) Celle de Mc Mahan-Guyer, décrite par Guyer (1978), et Halperin et al. (1978). La fonction de partition est écrite sous la forme (\hat{H}_{ech} est noté H_X) :

$$\begin{aligned} \frac{1}{N_0} \ln Z &= \frac{1}{N_0} \ln \sum_{n=0}^{+\infty} \frac{\text{Tr} (H_X + H_Z)^n}{n!} \\ &\equiv \ln 2 + \frac{3}{2} \beta^2 J_{XX}^2 - \frac{1}{2} \beta^3 J_{XXX}^3 + \dots \\ &\quad + \frac{1}{2} (\beta \mu B)^2 \left[1 - 4 \beta J_{XZZ} + \dots \right] + \mathcal{O} (\beta \mu H)^4 \end{aligned}$$

où $\beta \equiv (k_B T)^{-1}$ et les coefficients $J_{X_i Z_j}$ étant définis par les expressions :

$$J_{XX}^2 = (\text{Tr} H_X H_X) / (\text{Tr} H_1 H_1)$$

$$J_{XZZ} = \text{Tr} (H_X H_Z H_Z) / (\text{Tr} H_1 H_2 H_2)$$

d'une façon générale :

$$J_{\underbrace{X \dots X}_n \underbrace{Z \dots Z}_m}^n = (\text{Tr} \underbrace{H_X \dots H_X}_n \underbrace{H_Z \dots H_Z}_m) / (\text{Tr} \underbrace{H_1 \dots H_1}_n \underbrace{H_2 \dots H_2}_m)$$

où H_1 est l'hamiltonien d'Heisenberg avec une interaction d'échange $J = 1$. Dans le

cas où $H_x \equiv$ hamiltonien d'Heisenberg, toutes les constantes $J_{x_i z_j}$ sont égales à J .

Les propriétés thermodynamiques sont calculées à partir des expressions :

$$S = \frac{\partial}{\partial T} (k_B T \ln Z)_{V,H}$$

$$C = T \left(\frac{\partial S}{\partial T} \right)_{V,H}$$

$$M = \frac{k_B T}{V_m} \left(\frac{\partial \ln Z}{\partial B} \right)_{T,V}$$

$$P = k_B T \left(\frac{\partial \ln Z}{\partial V} \right)_{T,H}$$

On obtient les résultats suivants :

$$C(T,0) / N_0 k_B = 3 \beta^2 J_{xx}^2 - 3 \beta^3 J_{xxx}^3 + \frac{21}{4} \beta^4 J_{xxxx}^4 + \dots$$

$$P_V(T,0) = \left(\frac{N_0}{V_m} \right) k_B T \left(\frac{3}{2} \gamma_{xx} \beta^2 J_{xx}^2 - \frac{1}{2} \gamma_{xxx} \beta^3 J_{xxx}^3 + \dots \right)$$

$$\gamma_{xx} = d(\ln J_{xx}^2) / d(\ln V) \quad ; \quad \gamma_{xxx} = d(\ln J_{xxx}^3) / d(\ln V)$$

$$P_V(T,H) - P_V(T,0) = \frac{N_0}{V_m} (\beta \mu B_0 / 2)^2 (4 \gamma_{xzz} J_{xzz} + \dots) + \dots$$

$$\gamma_{xzz} = d(\ln J_{xzz}) / d(\ln V)$$

$$X = \left(\mu_0 N \mu^2 / k_B T V \right) (1 + 4 \beta J_{xzz} + 12 \beta^2 J_{xxzz}^2 + \dots) \quad (\text{SI d'unités ; } \mu_0 \equiv 4\pi \cdot 10^{-7})$$

$$S(T,0) / N_0 k_B = \ln^2 - \frac{3}{2} \beta^2 J_{xx}^2 + \beta^3 J_{xxx}^3 - \frac{21}{16} \beta^4 J_{xxxx}^4 + \dots$$

$$[S(T,B_0) - S(T,0)] / N_0 k_B = -\frac{1}{2} (\beta \mu B_0)^2 [1 + 8 \beta J_{xzz} + 36 J_{xxzz}^2 \beta + \dots]$$

Il ya une erreur dans cette dernière expression dans l'article de Guyer ; l'oubli du

terme $[1 + \dots]$ et le changement de signe du terme suivant donne un "accord" avec l'expérience qui n'est pas réel.

ii) Une deuxième notation, correspondant aux calculs de Roger et Delrieu (1977), Roger, Delrieu et Landesman (1977), et Roger (thèse, 1980), permet de décrire les propriétés thermodynamiques de l' ^3He solide ; en particulier, les coefficients du développement sont données explicitement en fonction des constantes d'échange du modèle à 4 spins.

$$N^{-1} \ln Z = \ln 2 - \frac{1}{2} \ln (1 - \tilde{p}^2) - \tilde{e}_1(\tilde{p}) \beta + \tilde{e}_2(\tilde{p}) \beta^2 / 8 - \tilde{e}_3(\tilde{p}) \beta^3 / 24$$

où $\tilde{p} \equiv \tanh\left(\frac{1}{2} \gamma \pi \beta B_0\right)$.

La forme générale de $\tilde{e}_i(\tilde{p})$ en fonction de $J_1, J_2, J_3, K_F, K_P, \lambda_F, \lambda_P$ est donnée par le table IV-3.

Si l'on ne considère que les échanges cycliques, $\lambda_P = \lambda_F = -1$; avec la notation $\tilde{e}_i(\tilde{p} = 0) \equiv \tilde{e}_i(B_0 = 0) \equiv \tilde{e}_i$ on obtient :

$$\begin{aligned} N_0^{-1} \ln Z &= \ln 2 + \tilde{e}_2 \beta^2 / 8 - \tilde{e}_3 \beta^3 / 24 + \dots \\ &+ \frac{1}{2} \left(\frac{\gamma \pi}{2}\right)^2 \beta B_0 \left[1 + k_B \theta \beta + \tilde{c} \beta^2 + \dots\right] \end{aligned}$$

L'énergie libre est alors $-\beta^{-1} \ln Z$:

$$\begin{aligned} F &= -\frac{N_0}{\beta} \left[\ln 2 + \tilde{e}_2 \beta^2 / 8 - \tilde{e}_3 \beta^3 / 24 + \dots \right. \\ &\left. + \frac{1}{2} \left(\frac{\gamma \pi}{2}\right)^2 \beta B_0 \left(1 + k_B \theta \beta + \tilde{c} \beta^2 + \dots\right) \right] \end{aligned}$$

et

$$\begin{aligned} S &= N_0 k_B \left(\ln 2 - \tilde{e}_2 \beta^2 / 8 + \tilde{e}_3 \beta^3 / 12 + \dots \right) - \\ &- \frac{1}{2} (\mu B_0 \beta)^2 \left[1 + 2 \theta \beta + 3 \tilde{c} \beta^2 + \dots \right] \end{aligned}$$

$$C_V = N_0 k_B / 4 \left[\tilde{e}_2 \beta^2 - \tilde{e}_3 \beta^3 + \dots \right] + (\mu B_0 \beta)^2 \left[1 + 3 \theta \beta + 6 \tilde{c} \beta^2 \right]$$

Table IV-3.

$$N^{-1} \ln Z = \ln Z_0 - e_1(\tilde{p}) + e_2(\tilde{p}) \frac{\beta^2}{6} - e_3(\tilde{p}) \frac{\beta^3}{24} \quad (4.10)$$

$$\text{avec : } \ln Z_0 = \ln 2 - \frac{1}{2} \ln(1 - \tilde{p}^2)$$

$$\tilde{e}_1(\tilde{p}) = -\theta \frac{\tilde{p}^2}{2} - 3 [(2+\lambda_F)K_F + (2+\lambda_P)K_P] \frac{\tilde{p}^4}{2}$$

($\theta = 4J_1 + 3J_2 + 6J_3$ est la constante de Curie Weiss)

$$\begin{aligned} \tilde{e}_2(\tilde{p}) = & 4(1-\tilde{p}^2) \left\{ (3+15\tilde{p}^2)J_1^2 + \frac{3}{4}(3+11\tilde{p}^2)J_2^2 + \frac{3}{2}(3+23\tilde{p}^2)J_3^2 \right. \\ & + (24J_1J_2 + 48J_1J_3 + 36J_2J_3) \tilde{p}^2 \\ & + 6\tilde{p}^2 [4 + \lambda_F + 7(2+\lambda_F)\tilde{p}^2] J_1 K_F + 6\tilde{p}^2 [4 + \lambda_P + 7(2+\lambda_P)\tilde{p}^2] J_1 K_P \\ & + 3\tilde{p}^2 [2 + 3\lambda_F + 11(2+\lambda_F)\tilde{p}^2] J_2 K_F + \frac{3}{2} \tilde{p}^2 [2 + 3\lambda_P + 23(2+\lambda_P)\tilde{p}^2] J_2 K_P \\ & + 72(2+\lambda_F)\tilde{p}^4 J_3 K_F + \frac{3}{2} \tilde{p}^2 [2 + 3\lambda_P + 47(2+\lambda_P)\tilde{p}^2] J_3 K_P \\ & + \frac{3}{8} [3(8+4\lambda_F+3\lambda_F^2) + 3(8+4\lambda_P+3\lambda_P^2)\tilde{p}^2 + (100+76\lambda_F+23\lambda_F^2)\tilde{p}^4 + 71(2+\lambda_F)^2 \tilde{p}^6] K_F^2 \\ & + \frac{3}{8} [3(8+4\lambda_P+3\lambda_P^2) + (8+4\lambda_P+3\lambda_P^2)\tilde{p}^2 + 8(16+11\lambda_P+3\lambda_P^2)\tilde{p}^4 + 72(2+\lambda_P)^2 \tilde{p}^6] K_P^2 \\ & \left. + \frac{3}{8} [8(8+2\lambda_F+2\lambda_P+3\lambda_F\lambda_P)\tilde{p}^2 + 8(28+10\lambda_F+10\lambda_P+5\lambda_F\lambda_P)\tilde{p}^4 + 144(2+\lambda_F)(2+\lambda_P)\tilde{p}^6] K_F K_P \right\} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \tilde{e}_3(\tilde{p}) = & 12J_1^3 + 9J_2^3 - 54J_3^3 - 108J_1^2(J_2+J_3) - 108J_2^2J_3 - 54J_1^2 [(4+\lambda_F)K_F + (4+\lambda_P)K_P] \\ & - 27 [J_2^2 K_F (2+3\lambda_F) + J_2 J_3 K_P (2+3\lambda_P)] + 270(K_F^2 + K_P^2) J_1 \\ & - 27 [2J_2 K_F^2 (1-2\lambda_F - \frac{3}{2} \lambda_F^2) + (J_2+J_3) K_P^2 (1-2\lambda_P - \frac{3}{2} \lambda_P^2)] \\ & - 54 J_2 K_F K_P (8+2\lambda_F+2\lambda_P+3\lambda_F\lambda_P) - 27 J_3 K_F^2 (8+4\lambda_F+3\lambda_F^2) - \frac{27}{2} K_F^3 (4+3\lambda_F+2\lambda_F^2-\lambda_F^3) \\ & - \frac{27}{2} K_P^3 (4+3\lambda_P+2\lambda_P^2+\lambda_P^3) + 27 K_F^2 K_P (2-4\lambda_F-2\lambda_P+2\lambda_F^2+4\lambda_F\lambda_P+3\lambda_F^2\lambda_P) \\ & + \text{terms en } \tilde{p}^2, \tilde{p}^4, \dots, \tilde{p}^{12} \end{aligned}$$

$$\chi = (C / T) (1 + k_B \theta / T + C / T^2)$$

$$\text{où } C = \mu_0 N_0 / V_m k_B \left(\frac{\gamma \hbar}{2} \right)^2$$

est la constante de Curie dans le SI d'unités.

$$\text{et } \chi^{-1} = C^{-1} \left(T - \theta + \frac{B}{T} \right) \quad \text{où } B \equiv \theta^2 - \tilde{C} / k_B^2$$

$$\theta = 4 J_1 + 3 J_2 + 6 J_3$$

$$\begin{aligned} \text{et } k_B^2 B = & 4 J_1^2 + 3 J_2^2 + 6 J_3^2 - 6 J_1 \left[(4 + \lambda_F) K_F + (4 + \lambda_P) K_P \right] \\ & - \frac{3}{2} J_2 \left[2 (2 + 3 \lambda_F) K_F + (2 + 3 \lambda_P) K_P \right] - \frac{3}{2} J_3 (2 + 3 \lambda_P) K_P \\ & - 3 (8 + 2 \lambda_F + 2 \lambda_P + 3 \lambda_F \lambda_P) K_F K_P + \frac{3}{2} (8 + 4 \lambda_P + 3 \lambda_P^2) K_P^2 \end{aligned}$$

N.B. : J_1 , J_2 et J_3 sont des constantes d'échange effectives qui s'expriment en fonction de J_t , K_P et K_F lorsqu'on néglige les échanges à deux particules (voir pages précédentes).

$$P_V(T) = N_0 k_B \left(\frac{1}{8} \frac{\partial \tilde{e}_2}{\partial V_m} \frac{1}{k_B^2 T} - \frac{1}{24} \frac{\partial \tilde{e}_3}{\partial V_m} \frac{1}{k_B^3 T^2} + \dots \right)$$

On obtient les équivalences suivantes entre les notations de Mc Mahan et celles de Roger et al. :

$$\begin{aligned} \tilde{e}_2 &= 12 J_{xx}^2 \\ \tilde{e}_3 &= 12 J_{xxx}^3 \\ k_B \theta &= 4 J_{xzz} \\ C &= 12 J_{xxzz}^2 \\ k_B^2 B &= 16 J_{xzz}^2 - 12 J_{xxzz}^2 \end{aligned}$$

- Résultats du modèle d'échange multiple

Les modèles simples à 2 paramètres (J_t et K_p) et 3 paramètres (J_t , K_p , K_p) sont en accord satisfaisant avec les résultats expérimentaux décrits dans la section suivante. Les valeurs des paramètres sont données dans la table IV-4 (Roger, thèse, 1980) et les diagrammes de phases correspondants par les figures IV-16 et 17.

Le modèle à 3 paramètres permet un meilleur ajustement des développements hautes températures des grandeurs thermodynamiques que celui que fournit le modèle à deux paramètres, mais ceux-ci sont entachés d'une incertitude expérimentale importante. La description du diagramme de phases n'est pas améliorée par l'introduction du troisième paramètre.

Dans le cadre du modèle (J_t , K_p) on obtient les résultats simples suivants :

$$J_1 = 3 (-2 J_t + K_p) ; J_2 = -4 J_t + K_p ; J_3 = K_p / 2$$

$$\tilde{e}_2 = \frac{17}{36} (k_B \theta)^2 + 6 k_B \theta J_t + 180 J_t^2$$

$$\begin{aligned} \tilde{e}_3 = 12 J_1^3 + 9 J_2^3 - 54 J_3^3 - 108 J_1^2 (J_2 + J_3) - 108 J_2^2 J_3 - 54 J_1^2 (3 K_p) + \\ + 27 J_2 J_3 K_p + 270 K_p^2 J_1 - 27 (J_2 + J_3) K_p^2 (3/2) - 27 K_p^3 \end{aligned}$$

$$k_B \theta = 18 (-2 J_t + K_p)$$

$$\tilde{C} / k_B^2 = \theta^2 - B$$

$$k_B^2 B = -(k_B \theta)^2 / 432 - 23 / (6 k_B \theta J_t) + 57 J_t^2$$

Transition du 1^{er} ordre :

$$T_N (B_0 = 0) = -(2 J_t + 3/2 K_p) / \ln 2 - 1/3$$

Table IV-4.

	Modèle 2 Paramètres	Modèle 3 Paramètres		Valeurs Expérimentales
		A	B	
J_t [mk]	- 0.1	- 0.167	- 0.138	
K_p [mk]	- 0.355	- 0.31	- 0.30	
K_F [mk]	0	- 0.18	- 0.1425	
θ [mk]	- 2.79	- 2.79	- 3	- 2.9
\bar{e}_2 [mk ²]	7.15	7.07	6.89	7
B [mk ²]	- 0.52	- 3.18	- 2.7	- 2.7
\bar{e}_3 [mk ³]	0.8	+ 3.18	7.47	7.8 (courbe entropie)
$C X^{-1}$ uudd	- 1.91 θ	- 1.77 θ		- 2 θ
M/M_0 p^F extrapolé H \rightarrow 0	0.53	0.58		0.51 \sim 0.6

Susceptibilité de la phase ordonnée à bas champ (\vec{B}_0 est perpendiculaire aux spins) :

$$\chi_{\perp} = -\frac{C}{B} (-4 J_t + 3 K_p) \quad \text{avec } C = \text{cste de Curie.}$$

Aimantation de la phase à fort champ extrapolée à $B_0 = 0$:

$$M / M_{\text{sat}} = (J_t / K_p)^{1/2}$$

Champ de transition de la phase NAF à la phase paramagnétique à $T = 0$:

$$B_{C2} = \frac{2}{\gamma \hbar} \frac{4}{3} k_B \theta \left[1 + (1 - 2 J_t / K_p)^{-1} \right]$$

IV - D - SITUATION EXPERIMENTALE AVANT 1980

Les résultats expérimentaux concernant le magnétisme nucléaire de l' ^3He solide peuvent se classer chronologiquement en trois étapes. La première débute en 1957 grâce aux mesures de susceptibilité de Fairbank et Walters, et se prolonge jusqu'en 1970. Un nombre d'expériences considérable met en évidence les effets de l'interaction d'échange sur la susceptibilité magnétique, les temps de relaxation des spins nucléaires, la pression en fonction de la température à volume constant, la capacité calorifique (mesurée par RMN). Leur description dans le cadre du modèle d'Heisenberg ne pose aucun problème ; la même constante d'échange $|J|$ décrit tous les résultats expérimentaux ; les mesures de susceptibilité montrent clairement que J est négatif.

Les expériences s'orientent alors vers les très basses températures, à la recherche de la transition du deuxième ordre vers une phase antiferromagnétique, située, d'après le modèle d'Heisenberg, à 2 mK sur la courbe de fusion.

La deuxième étape est caractérisée par une série d'expériences qui mettent en échec le modèle d'Heisenberg. Au cours de cette période, de 1971 à 1980, les théories se multiplient (ainsi que le nombre de leurs paramètres ajustables !), afin de rendre compte de la découverte par Halperin (1974) d'une transition du premier ordre à $T_N = 1 \text{ mK}$ et des mesures plus précises concernant l'approche à l'ordre de C_V , χ , $P_V(H)$, etc...

Plus récemment, en 1980, les résultats expérimentaux des groupes de Bell Labs, Floride, La Jolla et Grenoble, d'une nature très différente, sont publiés simultanément ; ils imposent à la théorie des contraintes sévères, et seule la théorie de l'échange multiple élaborée par Roger, Delrieu et Hetherington est capable de décrire l'ensemble.

Nous présenterons d'abord les expériences effectuées à des températures supérieures à la température d'ordre, conduisant à la détermination des développements "haute température" de la fonction de partition. Nous discuterons ensuite les résultats au voisinage de l'ordre ; ceci concerne tout particulièrement nos résultats et leur influence sur la description théorique.

a) Mesures à $T \gg T_N$

1) Susceptibilité magnétique

D'après les mesures de Kirk, Osgood et Garber (1969), Pipes et Fairbank (1969), Sites, Osheroff, Richardson et Lee (1969), Johnson et Wheatley (1979), Bernat et Cohen (1973), Bernier et Delrieu (1977), Bakalayar, Britton, Adams, Hwang (1977), Prewitt et Goodkind (1977), Morii et al. (1978), Deville, Bernier et Delrieu (1979), la susceptibilité peut être décrite par une expression de la forme :

$$\chi = C / (T - \theta + \frac{B}{T})$$

La température de Curie-Weiss θ est de l'ordre de (-3 ± 0.4) mK sur la courbe de fusion, et diminue rapidement avec le volume molaire ; le terme B est négatif, et de l'ordre de -2.7 mK^2 sur la courbe de fusion.

La mauvaise précision sur θ est due au fait qu'une excellente thermométrie est nécessaire à hautes températures pour déceler θ .

À plus basses températures les termes d'ordre supérieur ont une contribution importante, ce qui interdit d'améliorer la précision sur la mesure de θ , d'une part, et d'obtenir des valeurs indiscutables de B d'autre part.

Le fait que B soit négatif implique une tendance ferromagnétique au voisinage de la température d'ordre.

2) Pression magnétique à champ nul

Au dessous de 200 mK la variation de la pression à volume constant en fonction de la température est dominée par l'échange. Les expériences de Panzyck, Scribner, Straty et Adams (1967) et Panzyck et Adams (1969) permettent de mesurer de façon très précise le premier terme du développement général :

$$P_V(T) = \frac{3 N_0 k_B}{V} \left(\frac{J_{XX}}{k_B} \right) \frac{\partial \ln |J_{XX}|}{\partial \ln V} T^{-1} + \dots$$

ou

$$P_V(T) = \frac{N_0 k_B}{8} \frac{\partial \tilde{e}_2}{\partial V_m} \frac{1}{k_B^2 T} + \dots$$

suivant la notation choisie.

Leurs résultats montrent que $\frac{\partial (\ln |J_{XX}|)}{\partial (\ln V)} = 18.13$ c-à-d $\frac{\partial (\ln \tilde{e}_2)}{\partial (\ln V)} = 36.26$

ce qui représente une variation extrêmement rapide de l'échange avec le volume molaire :

$$\tilde{e}_2 = 5.14 \left(\frac{V_m}{24} \right)^{36.26} \quad (V_m \text{ en cm}^3), \text{ d'après Roger (thèse, 1980), en}$$

supposant que $\tilde{e}_2 = 0$ pour le volume correspondant à une distance interatomique égale au rayon des coeurs durs.

Ils fournissent de plus des valeurs très précises de \tilde{e}_2 (figure IV-19).

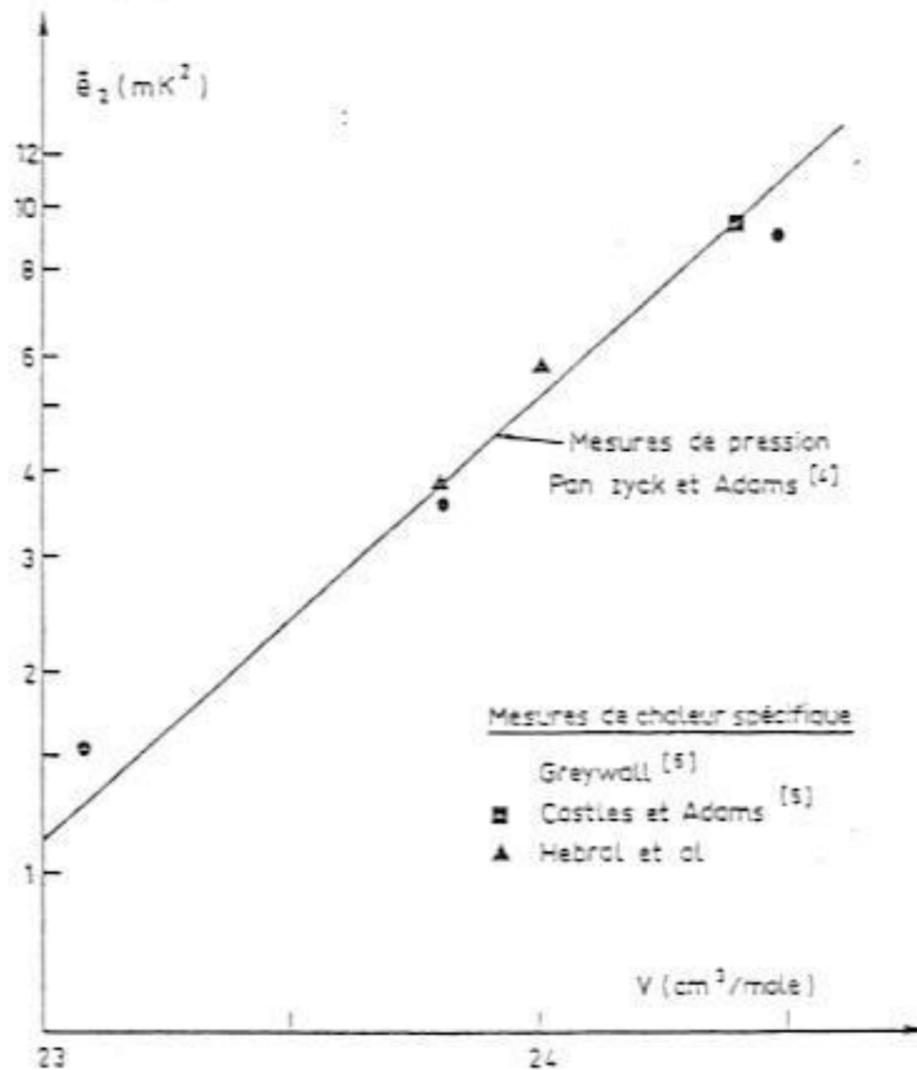


Fig. IV-19 : Détermination de la variation de \tilde{e}_2 en fonction du volume molaire.

Sur la courbe de fusion, le volume molaire du solide varie légèrement, $V_m = 24.31 \text{ cm}^3$ à $T = 20 \text{ mK}$, et $V_m = 24.2$ pour $T < 3 \text{ mK}$ (Halperin et al. 1978) ; \tilde{e}_2 décroît ainsi de 8.2 mK^2 ($T = 20 \text{ mK}$) à 7 mK^2 ($T < 3 \text{ mK}$).

3) Pression magnétique en fort champ

La première expérience révélant un désaccord franc avec le modèle d'Heisenberg est celle de Kirk et Adams (1971, 1974). En effet, la mesure de la pression à volume constant en fonction de la température et du champ magnétique montre que l'effet de ce dernier n'est que la moitié de ce que prévoit le modèle d'Heisenberg.

L'Hamiltonien général d'échange prévoit :

$$P_V(T, H) - P_V(T, 0) = \frac{N_0}{V_m} (\beta \mu B_0 / 2)^2 (4 \gamma_{xzz} J_{xzz} + \dots)$$

$$\text{avec } \gamma_{xzz} = d(\log J_{xzz}) / d(\log V)$$

$$\text{soit } \frac{N_0}{V_m} (\beta \mu B_0 / 2)^2 (k_B \theta d(\ln \theta) / d(\log V) + \dots)$$

Ces mesures montrent clairement que $J_{xzz} \neq J$ d'Heisenberg ; elles introduisent malheureusement le produit $\gamma_{xzz} J_{xzz}$, et ne permettent pas de déterminer J_{xzz} (c-à-d θ) directement.

4) Chaleur spécifique et entropie à champ nul

La chaleur spécifique de l' ^3He solide a été mesurée par Castles et Adams (1973, 1975), Dundon et Goodkind, (1975, 1975), Greywall (1976, 1977) ainsi que dans notre laboratoire (Hébral et al. 1979 et commentaire de Hébral et al. 1980).

La figure IV-20 montre les résultats de Hébral et al. (1979) ; on observe la contribution des phonons au-dessus de 100 mK, et celle de l'échange, en T^{-2} , à basses températures. On n'observe aucune contribution pouvant correspondre à la formation de polarons magnétiques.

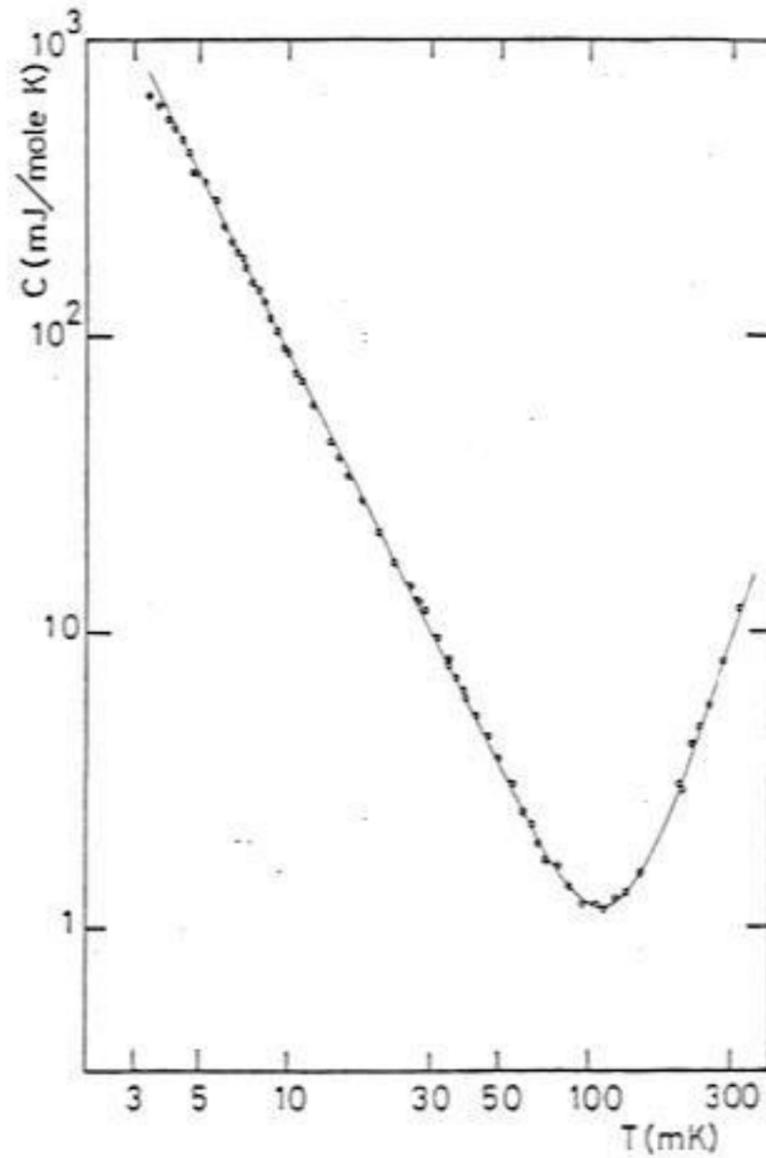


Fig. IV-20 : Chaleur Spécifique de l' ^3He solide ($V_m = 23.8 \text{ cm}^3/\text{mole}$) (Hébral et al. 1979 et 1980).

L'expression générale de la chaleur spécifique dans un modèle d'échange :

$$C_V(T) = \frac{R}{4} \left[\tilde{e}_2 / (k_B T)^2 - \tilde{e}_3 / (k_B T)^3 + \dots \right]$$

$$\left(\text{ou } C_V(T) = R \left[3 (J_{XX} / k_B T)^2 - 3 (J_{XXX} / k_B T)^3 + \dots \right] \right)$$

décrit correctement les résultats expérimentaux. Les valeurs de \tilde{e}_2 (ou J_{XX}) correspondent à celles que l'on obtient des mesures de pression magnétique (voir figure IV-19). Les déviations à la loi $\frac{R}{4} \tilde{e}_2 / (k_B T)^2$ sont clairement négatives (Dundon et Goodkind, 1974; 1975, et Hébral et al. 1979) ; par conséquent, $\tilde{e}_3 > 0$, en contradiction avec le modèle d'Heisenberg, qui prévoit $\tilde{e}_3 \equiv J^3 < 0$.

D'après Dundon et Goodkind, $\tilde{e}_3 / k_B^3 = 11 \text{ (mK)}^3$, alors que nous trouvons (Hébral et al. 1979) $\tilde{e}_3 < 2 \text{ (mK)}^3$ pour un volume molaire de 23.8 cm^3 .

Des mesures précises de l'entropie, limitées à la courbe de fusion, ont été effectuées par Halperin et al. (1974, 1978) et Kummer et al. (1977).

Leur méthode consiste à fournir une quantité de chaleur ΔQ à un mélange ^3He liquide-solide contenu dans une cellule Pomeranchuk (cf. Chapitre II-C). La pression est maintenue constante (ainsi que la température, puisque le système est sur la courbe de fusion) au moyen d'une compression extérieure, qui provoque une variation de volume ΔV correspondant à la solidification d'un volume donné d' ^3He liquide. La variation d'entropie, $\Delta S = \Delta Q / T$, est reliée à la pente de la courbe de fusion par la relation de Clausius-Clapeyron :

$$\frac{\Delta S}{\Delta V} = \frac{dP}{dT} \Big|_{\text{C.F.}} = \frac{\Delta Q}{\Delta V} \frac{1}{T}$$

La mesure de $\frac{\Delta Q}{\Delta V}$ en fonction de la pression permet de calculer la température correspondant à chaque valeur de P :

$$\int_{T_A}^T \frac{dT}{T} = \int_{P_A}^P (\Delta V / \Delta Q) dP$$

en intégrant par rapport au point fixe (T_A, P_A) fourni par la transition superfluide de ^3He liquide. (cf. Chapitre III-D).

L'entropie en fonction de la température ainsi déterminée est donnée par la relation de Clausius-Clapeyron :

$$\frac{\Delta S}{\Delta V} = \frac{S_S - S_L}{V_S - V_L} = \frac{dP}{dT} \Big|_{\text{C.F.}} = \frac{\Delta Q}{\Delta V} \frac{1}{T}$$

L'entropie du liquide, S_L , est beaucoup plus faible que celle du solide, et peut être déterminée indépendamment au cours de l'expérience. Les valeurs de S_L et S_S déterminées par Halperin et al. sont données par la table III-2.

La comparaison de ces mesures avec le développement hautes températures théorique :

$$S = R \left[\ln 2 - \tilde{e}_2 / 8 (k_B T)^2 + \tilde{e}_3 / 12 (k_B T)^3 + \dots \right]$$

$$\text{ou } S = R \left[\ln^2 - \frac{3}{2} (J_{xx} / k_B T)^2 + (J_{xxx} / k_B T)^3 + \dots \right]$$

permet de déterminer \tilde{e}_2 et \tilde{e}_3

D'après Halperin : $(J_{XX} / k_B)^2 = 1.10 \text{ mK}^2$ soit $\tilde{e}_2 / k_B^2 = 13.2 \text{ (mK)}^2$,
 et $(J_{XXX} / k_B)^3 = 2.01 \text{ mK}^3$ soit $\tilde{e}_3 / k_B^3 = 24.1 \text{ (mK)}^3$ pour

$T < 4 \text{ mK}$.

Des valeurs voisines sont obtenues en analysant les résultats de Kummer et al. Les valeurs de \tilde{e}_2 sont beaucoup plus grandes que celles qu'on obtient à partir de mesures directes de la chaleur spécifique, ou de la pression magnétique.

Cependant, si l'on ne considère que les mesures correspondant à $T \lesssim 3 \text{ mK}$, et on effectue le même développement en série, on peut obtenir une description parfaite de $S(T)$ avec $\tilde{e}_2 / k_B^2 = 7 \text{ mK}^2$ et $\tilde{e}_3 / k_B^3 = 7.8 \text{ mK}^3$ (Roger, Delrieu et Hetherington, 1980).

Mais il est évident que dans ce domaine de températures le développement en série n'est plus justifié, et que l'écart entre la courbe théorique et les points expérimentaux sera important au-dessus de 3 mK.

Il est possible, toutefois, que l'écart soit d'origine expérimentale : la courbe d'entropie présente une anomalie aux environs de T_A ($\approx 2.75 \text{ mK}$) (une température caractéristique du liquide !), les deux valeurs de \tilde{e}_2 correspondant à des mesures de part et d'autre de cette température.

Nous pensons que le solide, s'il est formé rapidement dans le liquide normal, n'aura pas la distribution des interactions d'échange qui minimise l'énergie libre ; l'équilibre aura lieu avec un temps caractéristique de relaxation entre l'échange et les phonons, de l'ordre du T_1 à $B_0 \sim 1T$. L'effet serait ainsi similaire à celui que nous avons observé sur l'irréversibilité à fort champ.

Dans le superfluide, par contre, les super-courants permettent de fabriquer un solide en équilibre.

Halperin et al. (1980) ont également suggéré la possibilité que \tilde{e}_2 sur la courbe de fusion soit beaucoup plus important que la valeur déduite des mesures à plus hautes températures et hors de la courbe de fusion.

Ceci impliquerait que l'échange ne dépende pas de façon univoque de volume molaire, c-à-d que l'échange serait couplé à d'autres types d'excitations présentes sur la courbe de fusion (lacunes, par exemple).

b) Mesures au voisinage de la température d'ordre

1) Phase à bas champ magnétique

L'ordre magnétique nucléaire à champ nul a été observé pour la première fois par Halperin et al. (1974, 1978) lors des mesures d'entropie décrites dans la section précédente. A une température $T_S = 1.10$ mK, l'entropie décroît de $0.5 R \ln 2$ à $0.1 R \ln 2$ sur un intervalle de température inférieur à $100 \mu K$: la transition est ainsi fortement du premier ordre.

Kummer, Mueller et Adams (1977) ont effectué des mesures similaires en champ magnétique entre 0 et 1.2 T, montrant que la température d'ordre décroît faiblement lorsque le champ augmente, au-dessous de 0.4 T.

La transition est toujours du premier ordre jusqu'à ce champ, accompagnée d'un fort saut de l'entropie. Leur diagramme de phases B_0, T est représenté sur la figure IV-21.

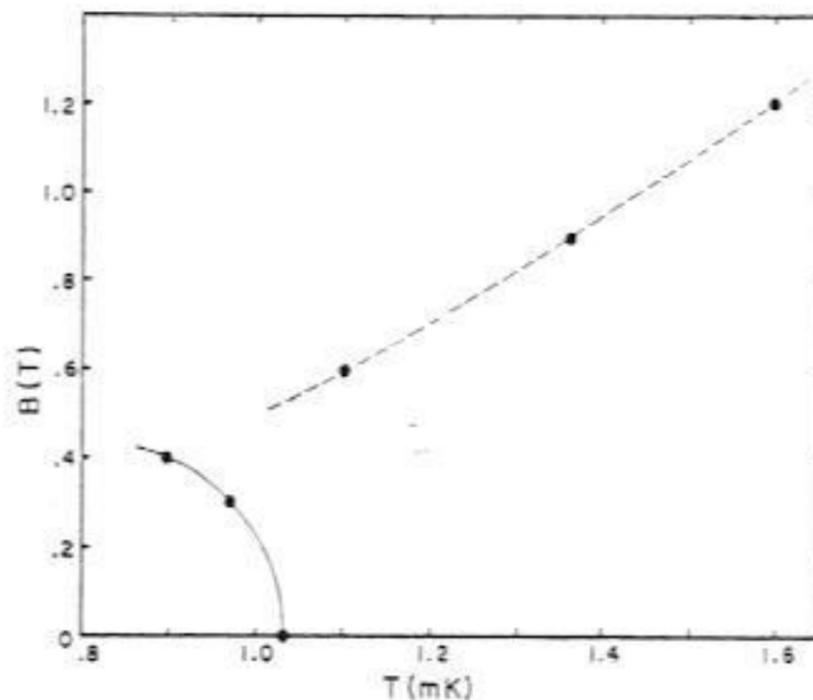


Fig. IV-21 : Diagramme de phases de Kummer et al. ; la ligne continue indique une transition du 1^{er} ordre ; la ligne brisée correspond aux maxima de chaleur spécifique, attribués au paramagnétisme.

Les mesures de Prewitt et Goodkind (1977) de la susceptibilité magnétique en fonction de la température montrent que celle-ci décroît de 60 % à la température d'ordre ; ainsi la transition est du premier ordre, même en dehors de la courbe de fusion ($V_m = 24.2 \text{ cm}^3$, alors que V_m (courbe de fusion) = 24.22 cm^3). Leurs résultats ainsi que ceux de Deville et al. (1979), sont représentés sur la figure IV-22.

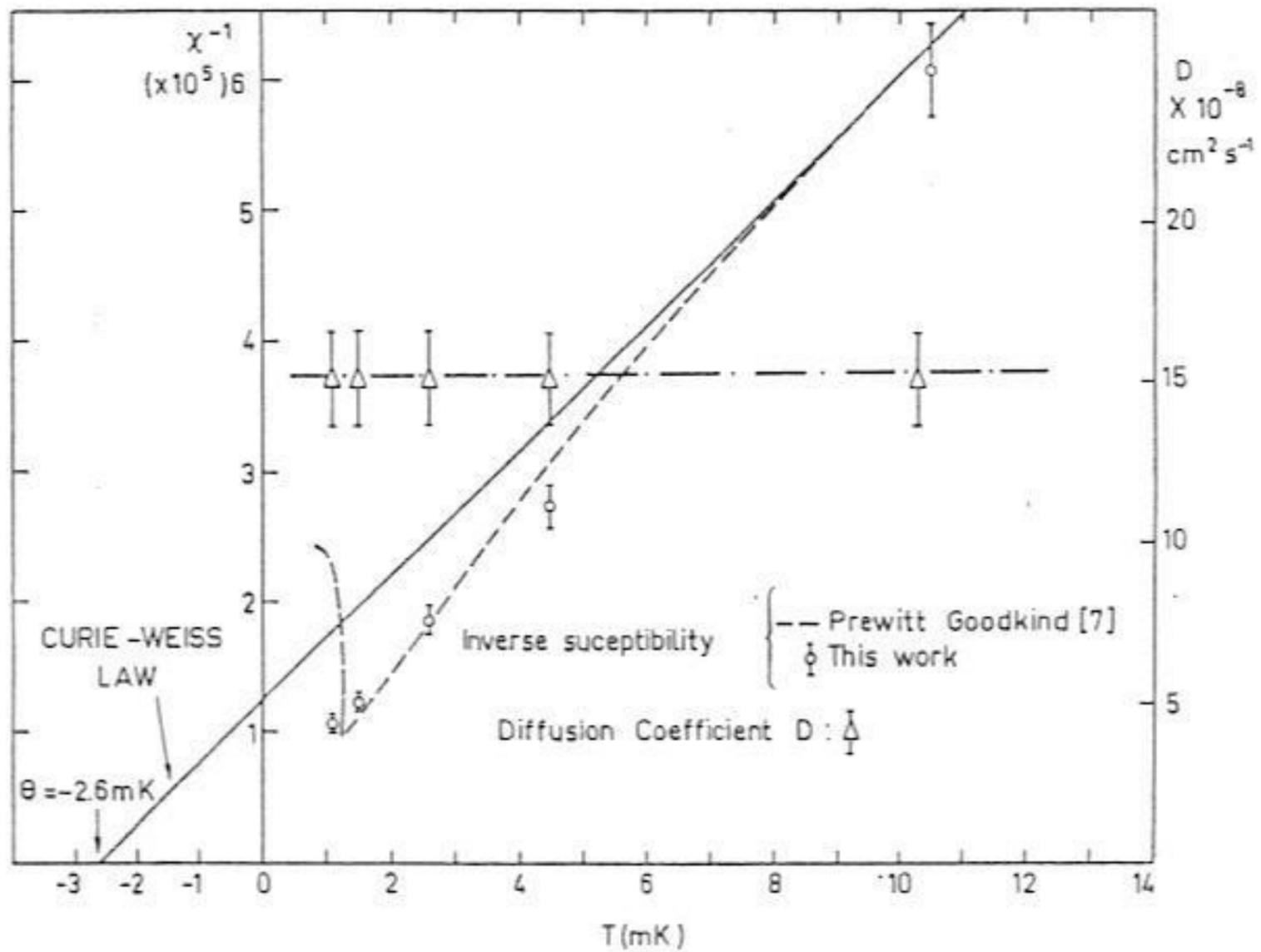


Fig. IV-22 : Susceptibilité magnétique de l'³He solide, d'après Prewitt et Goodkind (1977) et Deville et al. (1979).

2) Mesures à fort champ magnétique

Les mesures d'entropie de Kummer, Mueller et Adams (1977), montrent que pour des champs compris entre 0.41 T et 1.2 T l'entropie décroît lentement avec la température, ce comportement étant qualitativement différent de celui observé à bas champ. Le maximum de la chaleur spécifique correspondant se déplace vers les hautes températures lorsque le champ augmente, et ils associent cet effet à la mise en ordre des spins par le champ magnétique sans transition de phase ("Paramagnetic ordering"). Ils suggèrent cependant l'existence possible d'une phase ordonnée.

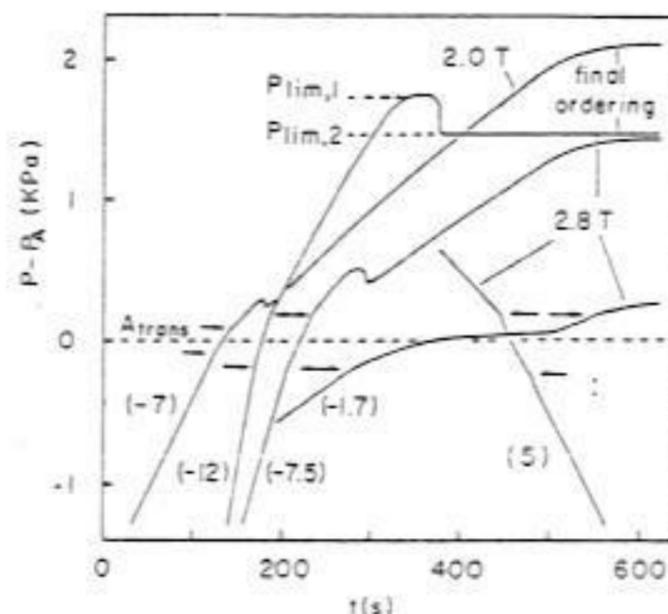
Adams, Delrieu et Landesman (1978) effectuent une analyse thermodynamique des mesures de Kummer et al. qui leur permet d'obtenir la susceptibilité magnétique. Ces auteurs montrent d'une part que ces mesures sont en accord avec les déterminations directes de χ citées précédemment, et que d'autre part l'entropie à fort champ présente un point singulier, caractérisé par un changement de pente important.

La susceptibilité calculée augmente plus rapidement que la loi de Curie-Weiss au-dessous de ce point ; Adams, Delrieu et Landesman proposent alors de considérer l'existence d'une transition du deuxième ordre vers une phase à forte aimantation, et d'observer cet effet à plus fort champ.

Schuberth, Bakalyar et Adams (1979) répètent ces mesures à 2.0 et 2.8 T et observent la décroissance progressive de l'entropie en accord avec Kummer et al., mais surtout un effet sur la courbe de fusion, qu'ils nomment "backstep" et associent à une transition de phase du premier ordre dans le solide.

Fig. IV-23.

FIG. 1. Chart traces of ^3He melting pressures during compressions. The arrows indicate the A_1 and A_2 superfluid transitions. Numbers in parentheses give the cooling or warming rate near T_A in microkelvins per second. The backsteps give evidence for a new phase transition in solid ^3He . In the 2.8-T field, the two limiting pressures for the supercooled and equilibrium phases are shown by $P_{lim,1}$ and $P_{lim,2}$.



La figure IV-23 montre l'évolution de la pression du mélange liquide-solide en fonction du temps au cours d'une compression Pomeranchuk à fort champ. Le "backstep" est marqué par une diminution brutale de la pression de fusion ; celui-ci a lieu à des pressions d'autant plus fortes que le taux de compression est élevé, et toujours à des températures inférieures ou de l'ordre de T_A (transition superfluide de l' ^3He liquide).

Cette anomalie est interprétée comme une transition du premier ordre, afin d'expliquer ce déplacement en pression (donc en température) par un surrefroidissement du solide.

IV - E - RESULTATS ACTUELS

En 1979, il est clair que les résultats expérimentaux sont en contradiction avec le modèle d'Heisenberg, la meilleure preuve étant l'observation d'une transition du premier ordre à bas champ.

L'interprétation des mesures de Kummer et al. à fort champ suggère une transition du 2^e ordre, privilégiant le modèle d'échange multiple par rapport aux modèles de transitions structurales ou de lacunes de point zéro. Mais les résultats de Schuberth et

al. remettent en question l'ensemble des théories, aucune d'entre elles ne pouvant prévoir une deuxième transition du premier ordre à fort champ.

C'est dans ce contexte que nos mesures ont été effectuées ; nous décrivons dans les pages qui suivent les résultats de nos expériences et leurs conséquences sur l'interprétation des mesures de Kummer et al. et Schuberth et al., ainsi que sur la description théorique.

En utilisant le même appareillage expérimental, nous avons effectué une série de mesures à fort champ magnétique sur la courbe de fusion, concernant l'aimantation de ^3He liquide, la pression correspondant à l'ordre magnétique du solide, le "backstep", ainsi que des mesures sur ^3He liquide polarisé.

à) Appareillage expérimental

La cellule Pomeranchuk, entièrement en matière plastique, est décrite au chapitre II-C ; une bobine constituée de deux spires permet de soumettre ^3He à un champ radio-fréquence (~ 230 MHz) perpendiculaire à l'axe de la cellule, et de détecter le signal RMN de ^3He , à l'aide du Q-mètre Q_1 . (Ce système est décrit au chapitre III-C).

L'ensemble est placé dans la boîte à mélange du réfrigérateur à dilution (cf. Chapitre II-B) ; le contact thermique est assuré par des échangeurs de poudre d'argent frittée (cf. Appendice I), permettant de prérefroidir la cellule remplie de ^3He liquide de 100 mK à 4 mK en 40 heures, et de 4 mK vers la température de base du réfrigérateur (environ 3 mK sous un champ de 7.3 T) avec une constante de temps de 32 heures.

Deux jauges capacitives permettent de mesurer la pression et le volume de ^3He ; on connaît ainsi le volume de solide formé au cours d'une compression (cf. §II-C).

La température de la cellule est mesurée à champ nul par la courbe de fusion de ^3He (cf. § III-D), ce qui permet d'étalonner la résistance de Carbone Matsushita 68Ω , (cf. § III-E) et un thermomètre capacitif (lamelle de microscope à électrodes d'argent évaporé, cf. § III-F). Ce thermomètre a cassé au cours des premières expériences, et nous avons dû employer la température de la boîte à mélange pour estimer celle de la cellule à champ non nul. La correction des erreurs systématiques provenant de la constante de temps importante de la cellule conduit à des températures T_{CELL} , plus élevées que celle de la boîte à mélange (T_{BM}) ; $T_{\text{CELL}} - T_{\text{BM}} \sim 1$ mK pour $T_{\text{CELL}} \sim 4$ mK.

La température de la boîte à mélange est mesurée par une

inductance mutuelle contenant du CMN (cf. § III-B), et deux bobines de RMN du platine (cf. § III-C), résonnant à 320 KHz et 1.08 MHz, (la première, accordée à 250 KHz, a été mesurée en RMN continue et en RMN pulsée).

Ces thermomètres, utilisables à champ faible, permettent d'étalonner un thermomètre capacitif (polyéthylène dopé à l'antioxydant BHT, cf. § III-F) indépendant du champ magnétique, et utilisable, par conséquent, jusqu'à 7.2 T, notre champ maximum.

b) Mesures d'aimantation du solide

Ces mesures, effectuées avec G. Frossati, consistent à former le solide dans la cellule Pomeranchuk à température constante, dans un champ magnétique de 7.2 T. La raie d'absorption en résonance magnétique nucléaire continue est obtenue en balayant le champ ; la largeur de raie déterminée par l'inhomogénéité du champ, est d'environ 3 mT, et la fréquence de résonance de l'ordre de 230 MHz. L'expérience commence avec la cellule remplie de liquide ; le signal de RMN est petit, et pratiquement indépendant de la température ; il est proportionnel à l'aimantation du liquide,

$$M_L = \frac{C B_0}{T_F} \left[1 - 0.53 \left(T / T_F \right)^2 \right] \text{ où } C \text{ est la constante de Curie, et } T_F = 178 \text{ mK sur}$$

la courbe de Fusion (Wheatley, 1975) ; le terme en $(T / T_F)^2$, pour des températures inférieures à 30 mK, apporte une contribution inférieure à 1.5 %, et sera négligé.

Le liquide est comprimé jusqu'à ce que la courbe de fusion soit atteinte ; la figure IV-24 montre la "signature" de la courbe de fusion lors d'une compression : la suppression (de l'ordre de 100 à 200 Pa dans nos expériences) caractérise la transition du premier ordre liquide-solide ; le changement de pente de $P(T)$ est calculé au chapitre II-C.

La formation de solide s'effectue par compression Pomeranchuk ; afin de garder la température constante, on compense le refroidissement Pomeranchuk par un chauffage externe ; celui-ci est asservi à la lecture de la jauge de pression (cf. Chapitre II-C), de façon à maintenir la pression constante, et par conséquent, la température correspondante sur la courbe de fusion. Le signal de RMN (figure IV-24) est mesuré en fonction de la fraction de solide $x_S = \frac{N_S}{N_L + N_S}$.

Le solide est formé en plusieurs étapes, la fraction solidifiée étant de l'ordre de 10 % par étape. La figure IV-25 représente la surface \tilde{S} de la raie de RMN en fonction de la fraction de solide ; pour $x_S = 0$, \tilde{S} est proportionnel à l'aimantation du liquide. La valeur de \tilde{S}_S pour $x_S = 1$ est obtenue à partir de la pente $d\tilde{S} / dx_S$ mesurée sur la figure. On obtient ainsi le rapport $\tilde{S}_S / \tilde{S}_L$, soit M_S / M_L à chaque température.

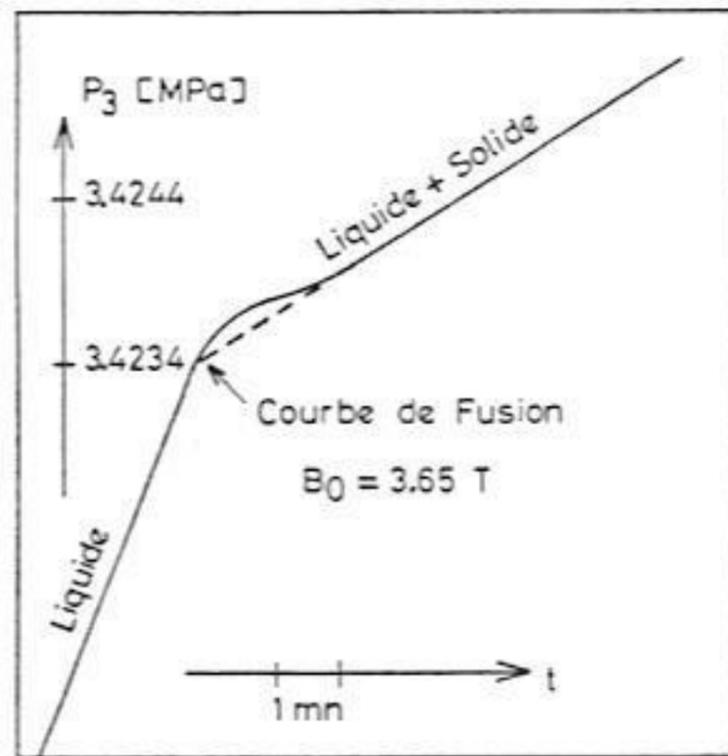
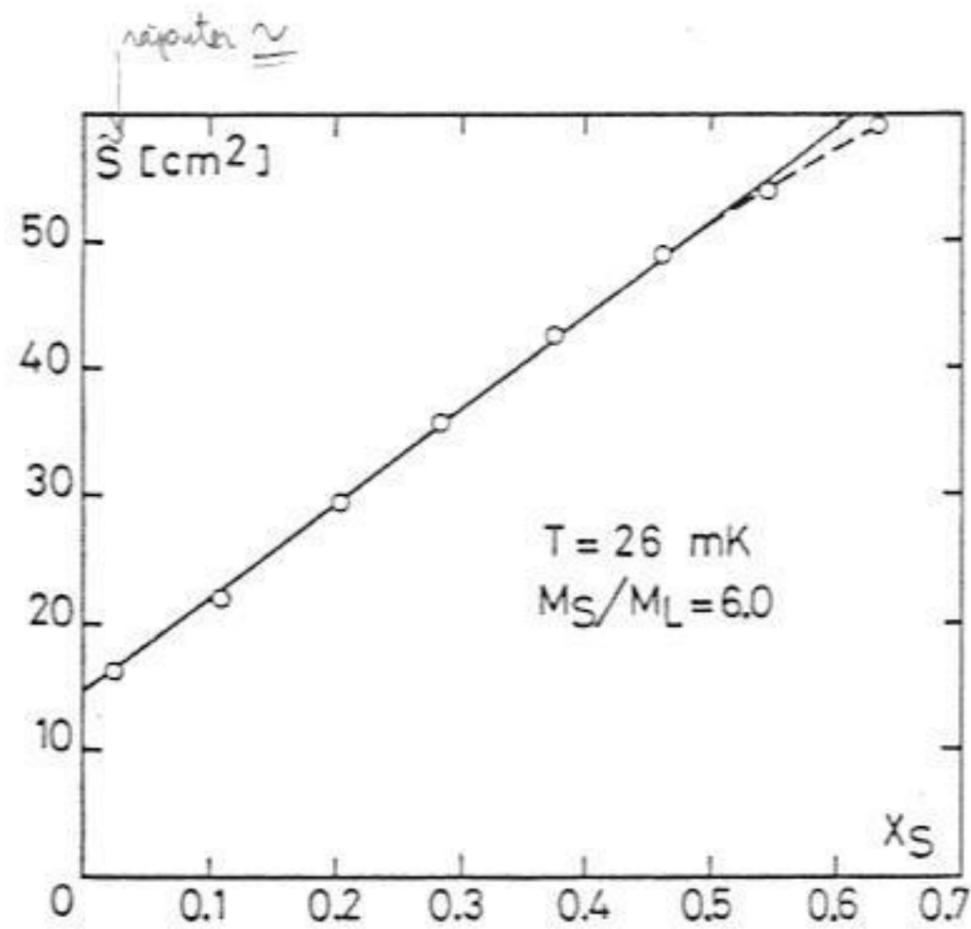


Fig. IV-24 : Compression Pomeranchuk.

Fig. IV-25 : Surface de la raie de RMN en fonction de la fraction de solide x_S .

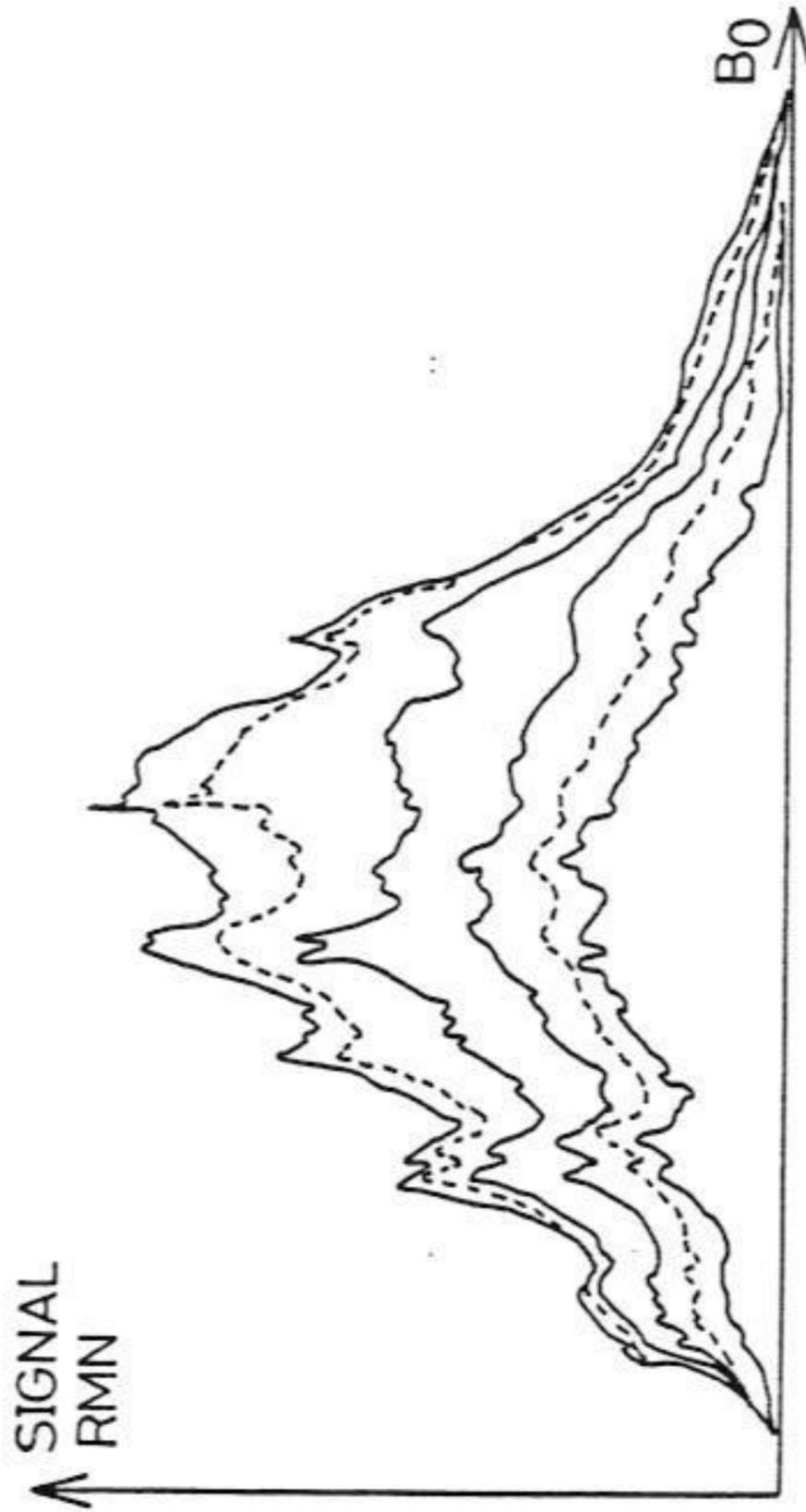


Fig. IV-26 : Signal de RMN au cours d'une compression. La courbe inférieure correspond au liquide.

La linéarité de $\tilde{S}(x_s)$ pour $x_s < 0.5$ est excellente (voir figure IV-25) ; le signal de RMN est proportionnel à la fraction de solide, pourvu que l'on attende l'équilibre.

Nous avons effectué des changements de volume très rapides (quelques secondes), à 7.2 T et $T \approx 4$ mK, et constaté que l'aimantation relaxe vers la valeur d'équilibre (celle que l'on obtient par une compression lente) avec un temps caractéristique $T_1 = 160$ secondes lorsque x_s est faible. Lorsque la fraction de solide est importante, ce temps devient plus long ; on constate sur la figure IV-26 que les points correspondant à $x_s > 0.5$ sont légèrement hors d'équilibre.

La figure IV-27 représente les résultats de nos mesures entre 3.5 et 30 mK ; les valeurs de l'aimantation du solide sont nettement inférieures à celles que l'on obtiendrait par une simple loi de Brillouin.

Les calculs de l'aimantation en champ moléculaire que nous avons effectués à l'ordinateur (cf. § IV-C) décrivent correctement ces résultats avec une température de Curie-Weiss $\theta = (-3 \pm 0.5)$ mK, en accord avec les mesures de susceptibilité à bas champ. (cf. § IV-D).

Nous avons essayé de poursuivre ces mesures au dessous de 3.5 mK, en utilisant la compression Pomeranchuk pour atteindre des pressions plus élevées (donc des températures plus basses), puis en asservissant la pression à cette nouvelle valeur lors de la formation de solide par chauffage.

Malgré cette réfrigération supplémentaire, l'aimantation du solide n'a jamais dépassé la valeur de 24 fois l'aimantation du liquide, c-à-d la valeur à $T = (3.5 \pm 0.5)$ mK. L'aimantation à saturation du solide étant $M_{S\SAT} = N\mu$, et celle du liquide $\frac{N \mu^2 B_0}{k_B T_F}$ entre 3 et 30 mK étant $M_{LMAX} = \frac{N \mu^2 B_0}{k_B T}$, on obtient :

$$M_{S\SAT} / M_{LMAX} = \frac{k_B T_F}{\mu B_0} = 32 \quad (\text{voir figure IV-27})$$

La polarisation maximale du solide obtenue dans ces expériences est alors
 $P_{MAX} = 24 / 32 = 0.75$.

Pour des compressions rapides (c-à-d effectuées en des temps $\ll 1$ mn), nous avons observé des pressions de fusion très élevées par rapport à la valeur à $T \approx 3$ mK ; l'aimantation mesurée dans ce cas est faible, typiquement $M_S / M_{LMAX} \sim 15$; la pression diminue très rapidement lorsque la compression est arrêtée.

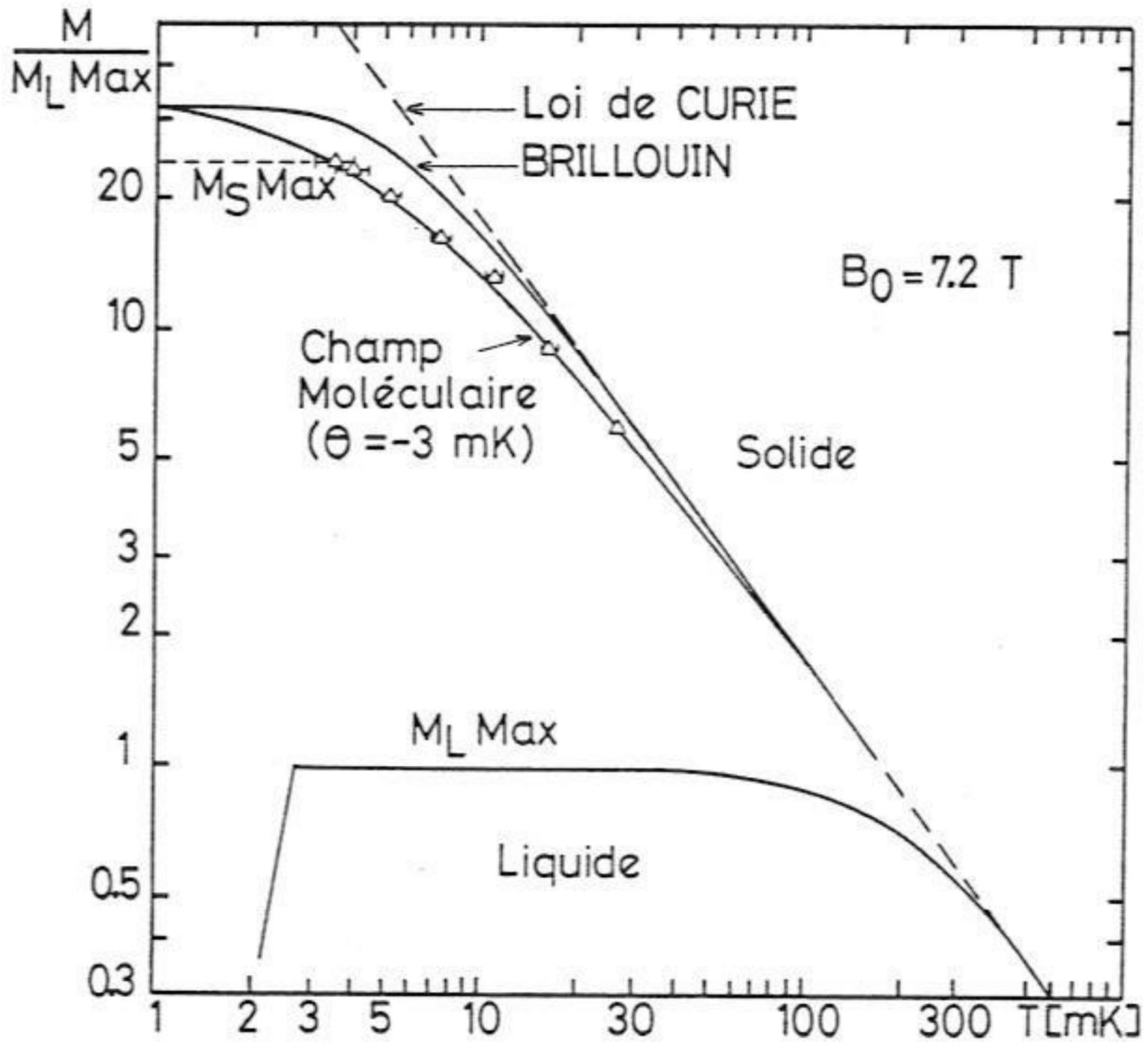


Fig. IV-27 : Mesure de l'aimantation du solide à $B_0 = 7.2 \text{ T}$.

Les expériences que nous décrivons dans la section suivante expliquent l'origine de ces effets associés à des compressions rapides ; pour des compressions lentes, nous pouvons conclure que l'aimantation à 7.2 T reste inférieure à 75 % de l'aimantation à saturation, et qu'une température de Curie-Weiss de (-3 ± 0.5) mK décrit correctement nos résultats.

c) Mesure des pressions caractéristiques sur la courbe de fusion à fort champ.

Ces mesures, effectuées avec la collaboration de A. Greenberg et D. Thoulouze, font partie d'une étude systématique du comportement de la courbe de fusion de l' ^3He lorsqu'on augmente le champ magnétique, rendue nécessaire par le caractère totalement irréproductible de nos expériences préliminaires à fort champ.

De plus, il était difficile d'établir un lien entre nos mesures à 7.2 T et celles de Kummer et al. ($0 < B_0 < 1.2$ T) et de Schuberth et al. ($B_0 = 2.0$ et 2.8 T) ; en particulier, nos mesures à 7.2 T ne montrent aucun signe de l'existence du "backstep", c-à-d de la transition observée par Schuberth et al. (1979). Nous avons effectué des compressions Pomeranchuk aux champs magnétiques suivants : 0 ; 1.044 T ; 2.088 T ; 3.132 T ; 3.654 T ; 4.176 T ; 4.50 T ; 5.22 T et 7.2 T, en déterminant la pression des transitions A_1, A_2, B' du superfluide, la pression maximum (correspondant à la température minimum) obtenue à chaque champ, ainsi que les conditions d'apparition du backstep.

1) Transitions superfluides de l' ^3He liquide.

Les propriétés de l' ^3He liquide superfluide sont décrites dans un article de revue récent (Wheatley, 1980). Nous ne considérerons ici que les propriétés de ^3He superfluide sur la courbe de fusion ; c'est d'ailleurs dans ces conditions et à champ nul, que Osheroff, Richardson et Lee (1972) découvrirent les phases superfluides A et B, la transition entre le fluide normal et la phase A est du deuxième ordre et la température de transition est notée T_A ; la transition T_{AB} , par contre, est du premier ordre, et l'on observe un surrefroidissement important. Ainsi la température de transition en refroidissant (T_B), est très inférieure à T_B , (obtenue au réchauffement), celle-ci étant expérimentalement identique à T_{AB} .

Kummer et al. (1977), Halperin et al. (1976 et 1978), et Schuberth et al. (1979) ont établi le diagramme de phases $[H - T]$ du superfluide en champ magnétique sur la courbe de fusion. (Figure IV-28).

La phase B disparaît pour $B_0 > 0.5$ T ; la phase A se sépare en deux composantes A_1 et A_2 , la première se limitant à une région étroite en températures. Cet

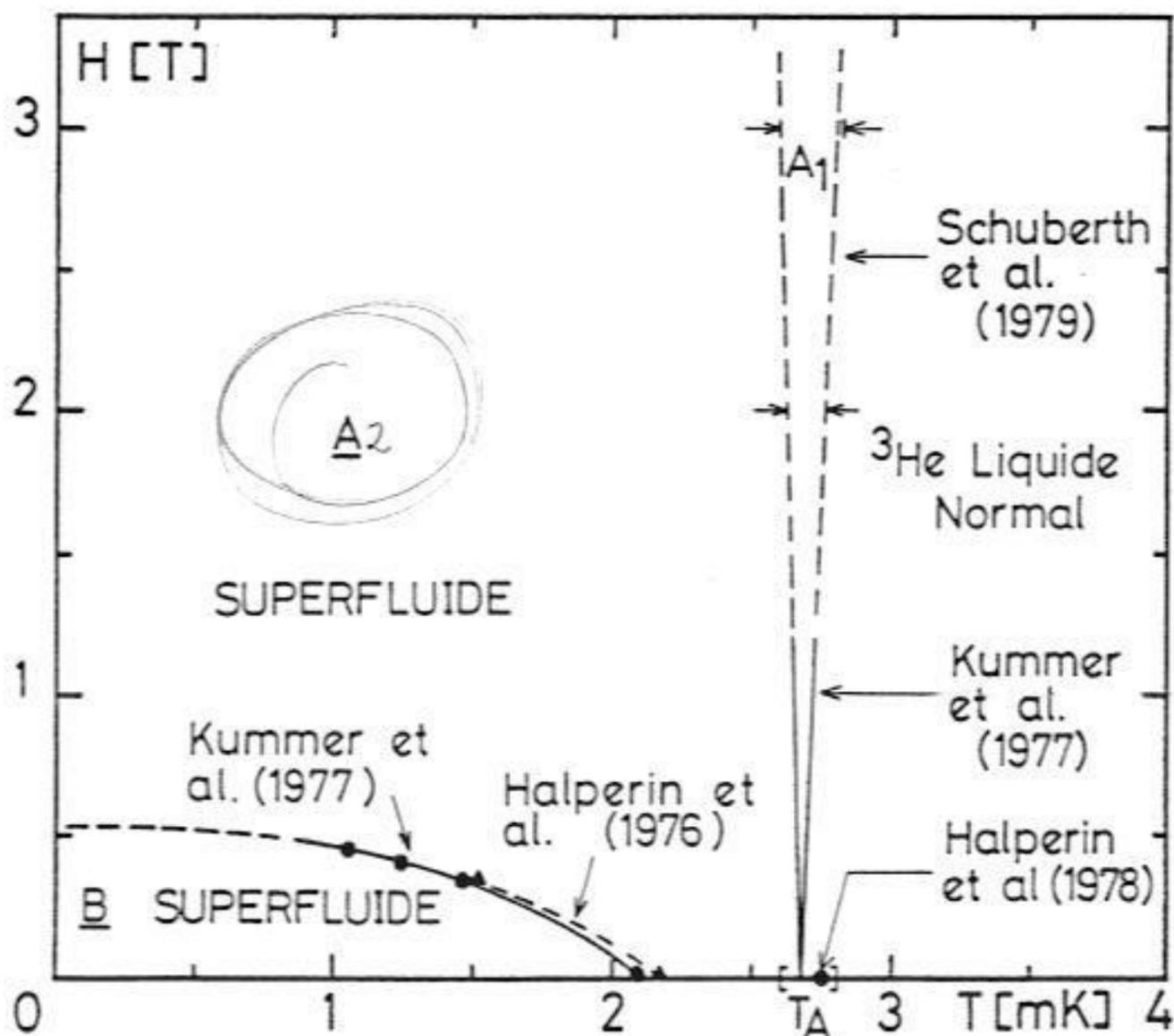


Fig. IV-28 : Diagramme de phases de l' ^3He superfluide.

effet a été observé par Gully, Osheroff, Lawson, Richardson et Lee (1973) : deux anomalies de la courbe de compression, P_{A_1} et P_{A_2} , caractérisent ces transitions.

Microscopiquement, l'existence de trois phases superfluides justifie l'attribution d'un moment angulaire orbital $l \neq 0$ aux paires de Cooper de l' ^3He , due à la remarque qu'un état s ($l = 0$), causerait une superposition importante des coeurs durs, défavorable énergétiquement.

En fait, l'état de spin est un triplet ; les états possibles sont alors $|\uparrow\uparrow\rangle$, $|\downarrow\downarrow\rangle$, et $|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle$.

La phase A est associée aux deux premiers. Sous champ, l'un des deux états est favorisé par rapport à l'autre et la phase se dédouble en A_1 et A_2 ; $|\uparrow\uparrow\rangle$ a une énergie Zeeman inférieure (μ est négatif pour l' ^3He), mais ce raisonnement simpliste ne tient pas compte de la présence des autres atomes d' ^3He . On ignore actuellement lequel des deux états caractérise A_1 . La phase A_2 est constituée par un mélange de $|\uparrow\uparrow\rangle$ et de $|\uparrow\downarrow\rangle$. Une transition du premier ordre donne une phase B correspondant à l'apparition de l'état $|\uparrow\uparrow\rangle + |\uparrow\downarrow\rangle$.

La courbe de fusion est déprimée en fort champ magnétique : la réduction de l'entropie du solide, discutée précédemment, est responsable de cet effet, décrit par la relation de Clausius-Clapeyron :

$$dp / dt \Big|_{C.F} = (S_S - S_L) / (V_S - V_L)$$

L'incertitude expérimentale sur la thermométrie sur la courbe de fusion à fort champ ne permet pas d'obtenir des valeurs précises de T_{A_1} et T_{A_2} , les températures correspondant aux transitions. Leur différence, par contre, a été mesurée par plusieurs groupes d'expérimentateurs.

- D'après Gully et al. (1973) : pour $B_0 < 1.4$ T

$$P_{A_2} - P_{A_1} = 200 B_0 \text{ Pa / T}$$

$$P_{A_1}(0) - P_{A_1}(B_0) = 670 B_0^2 \text{ Pa / T}^2$$

$T_{A_2} - T_{A_1}$ est estimé à $64 \mu\text{K/T}$ en supposant une pente locale de la courbe de fusion de -3.3 kPa / mK .

- Osheroff et Anderson (1974) ont vérifié la linéarité de $P_{A_2} - P_{A_1}$ en fonction de B_0 : elle est meilleure que 7 % pour $B_0 < 1.51$ T.

Pour $0.49 \text{ T} < B_0 < 0.75 \text{ T}$, $P_{A_2} - P_{A_1} = 227 B_0 \text{ Pa / T}$.

D'autre part, leurs mesures du déplacement de la fréquence de résonance transverse peuvent être décrites par la théorie de Anderson, Brinkman et Morel, ce qui conduit à la relation suivante pour les températures de transition :

$$0.375 T_{A_1} + 0.625 T_{A_2} = T_A (B_0 = 0) \equiv T_A$$

les coefficients étant reliés aux discontinuités de la chaleur spécifique à chaque transition.

La pression correspondant à la température T_A est alors :

$$P_A(B_0, T_A) = 0.375 P_{A_1} + 0.625 P_{A_2}$$

La première relation fournit un point fixe en température ; la deuxième permet de

suivre l'évolution de la pression à température fixe ($T = T_A$) en fonction du champ.

D'après les mesures d'Osheroff et Anderson :

$$P(0, T_A) - P(B_0, T_A) = 530 B_0^2 \text{ Pa} / T^2$$

- Les mesures de Kummer et al. (1977) fournissent les résultats suivants, pour $B_0 \leq 1.2 \text{ T}$:

$$P_{A2} - P_{A1} = 220 B_0 \text{ Pa} / T$$

$$T_{A2} - T_{A1} \approx (63 \pm 5) B_0 \text{ } \mu\text{K} / T$$

$$P_A(0, T_A) - P(B_0, T_A) = 564 B_0^2 \text{ (Pa} / T^2)$$

- Schuberth, Bakalyar et Adams (1979) effectuent des mesures à $B_0 = 2.0$ et 2.8 T :

A $B_0 = 2.0 \text{ T}$, $T_{A2} - T_{A1} = (61.0 \pm 5.0) B_0 \text{ } \mu\text{K} / T$, en accord avec les mesures précédentes.

A 2.8 T , par contre, ces auteurs mesurent une déviation par rapport à la linéarité : $(T_{A2} - T_{A1}) / B_0 = (74.5 \pm 5) \text{ } \mu\text{K} / T$, $P_{A2} - P_{A1}$ coïssant également plus rapidement qu'une extrapolation linéaire.

Finalement, $P_A(0, T_A) - P(B_0, T_A) = 524 B_0^2 \text{ Pa} / T^2$.

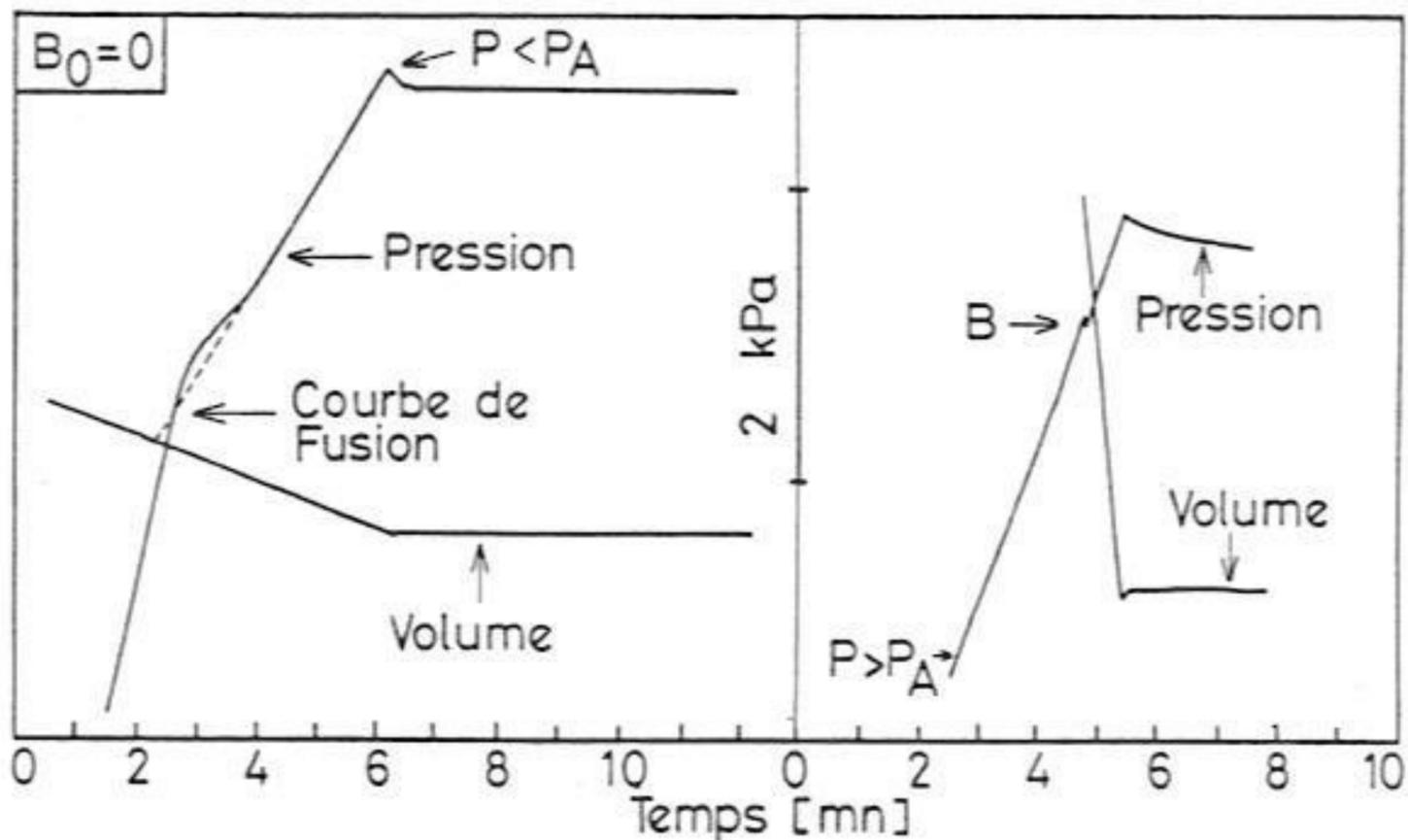


Fig. IV-29 : Compressions à champ nul.

Les résultats de nos mesures à champ nul sont similaires à ceux de Halperin et al. et de Kummer et al. Une légère surpression caractérise le point où la compression du liquide provoque la formation du solide. (Figure IV-29, "courbe de fusion"). Cet effet, signalé par Halperin et al. est dans leur cas de l'ordre de 2 kPa, et 5 fois inférieur dans notre cellule, où la nucléation de solide semble par conséquent plus aisée.

Nous observons également la cassure de pente de $P(t)$ à T_A , les accidents associés à B' et B (ce dernier manifestant un fort surrefroidissement), ainsi que la cassure de pente et le maximum de la courbe de fusion associé à l'ordre nucléaire du solide. Les pressions que nous mesurons à champ nul sont :

$$P_{B'} = 3.43620 \text{ MPa}$$

$$P_S = 3.43935 \text{ MPa}$$

avec un étalonnage en pression recalé sur la valeur $P_A = 3.43420 \text{ MPa}$ de Halperin et al. (1978), (cf. Chapitre II-C).

Ainsi :

$$P_{B'} - P_A = (2.00 \pm 0.02) \text{ kPa}$$

$$P_S - P_A = (5.15 \pm 0.05) \text{ kPa}$$

Les valeurs de Halperin et al. sont :

$$P_A = 3.43420 \text{ MPa} \quad P_{B'} = 3.4362 \text{ MPa} \quad P_S = 3.4394 \text{ MPa}$$

$$P_{B'} - P_A = (1.990 \pm 0.01) \text{ kPa}$$

$$P_S - P_A = (5.23 \pm 0.02) \text{ kPa}$$

et celles de Kummer et al. : $P_A \cong 3.43420 \text{ MPa}$ (par étalonnage)

$$P_{B'} - P_A = 2.07 \text{ kPa}$$

$$P_S - P_A = 5.48 \text{ kPa}$$

Nos différences de pression sont par conséquent en excellent accord avec celles de Halperin et al., et mettent en évidence une erreur systématique de l'ordre de 5 % sur l'étalonnage de la jauge de pression de Kummer et al.

Nous avons également remarqué une différence dans le comportement de la courbe $P(t)$ après un arrêt de la compression suivant que le liquide soit superfluide ou normal. Dans le premier cas la pression reste constante, si l'on exclut une décroissance caractérisée par une longue constante de temps qui peut être attribuée au rééquilibre thermique de l'ensemble solide-liquide dans la cellule.

Dans le deuxième cas l'arrêt de la compression est suivi par une décroissance rapide, ($\tau \sim 10$ s à $T \sim 5$ mK, et $\tau \propto T^{-2}$), qui peut être associée au temps d'équilibre thermique du liquide normal ; celui-ci est limité par la diffusion :

$D = 7 \times 10^{-11} T^{-2} \text{ m}^2/\text{s K}^2$ de l' ^3He liquide de Fermi dans une cellule où les dimensions caractéristiques sont de l'ordre de quelques millimètres.

Nos mesures en champ inférieur à 2 T sont en accord avec celles de Kummer et al., sur les valeurs des pressions P_{A1} et P_{A2} et la linéarité de la différence $P_{A2} - P_{A1}$, avec le champ magnétique.

EFFETS IRREVERSIBLES A FORT CHAMP

Toutefois, nous avons mis en évidence une variation systématique de P_{A1} et P_{A2} avec la vitesse de compression, cet effet augmentant avec le champ. Pour des compressions lentes, c-à-d $dP/dt < 1$ Pa/s, soit $dT/dt \ll 1 \mu\text{K/s}$, P_{A1} et P_{A2} sont reproductibles et ont la même valeur à la compression ou à la décompression. Au cours des compressions rapides ($dP/dt \sim 10$ Pa/s) on obtient des valeurs de P_{A1} trop fortes, et il en est de même pour P_{A2} (l'effet étant moins marqué) ; le décalage des pressions est de l'ordre de $P_{A2} - P_{A1} (\sim 300 \text{ Pa})$.

Des décompressions avec le même $|dP/dt|$ conduisent à des valeurs de P_{A1} inférieures à celle que l'on obtient par compression lente ; P_{A2} , par contre, n'est pas sensiblement affectée.

Nous avons par conséquent établi une distinction entre les compressions réversibles, caractérisées par des valeurs de pression correspondant à l'équilibre, et les compressions rapides ou irréversibles. Au cours de ces dernières, les pressions mesurées correspondent à des courbes de fusion hors équilibre ; celles-ci sont déterminées principalement par l'entropie du solide, qui est une fonction de l'aimantation. Ainsi, la compression rapide du liquide à faible aimantation (liquide de Fermi) produira un solide sous-aimanté (l'aimantation à l'équilibre du solide, de type Curie-Weiss, étant supérieure d'un ordre de grandeur à celle du liquide ; voir nos mesures d'aimantation, § IV-E-b).

La courbe de fusion correspondante se rapproche par conséquent de la courbe de fusion à aimantation nulle (c-à-d $B_0 = 0$), et on obtient des pressions plus élevées à chaque température.

A la décompression en partant d'un solide très aimanté, l'effet inverse se produit : le solide fond en produisant un liquide de très forte polarisation. L'aimantation du solide à l'interface est augmentée (effet analogue à la fusion de zones), ce

qui provoque la dépression de la courbe de fusion.

Ceci est précisément l'effet prédit par Castaing et Nozières (1979), qui a conduit à l'observation à Grenoble (Schumacher et al. 1979) et à Copenhague (1979) de l' ^3He liquide fortement polarisé.

Les articles de Lhuillier et Laloë (1979) et Castaing et Nozières (1979) prédisaient également la dépression de la courbe de fusion lors de la fusion du solide : nous avons observé cet effet grâce à la pression de la transition A_1 du liquide.

Au cours de nos mesures d'aimantation à $B_0 = 7.2 \text{ T}$, nous avons également observé directement la formation de solide sous aimanté (§ IV-E-b), la polarisation à l'équilibre se reconstruisant en 160 secondes.

Une vérification supplémentaire est apportée par des compressions extrêmement rapides ($dT / dt \gtrsim 100 \text{ Pa/s}$) ; la figure IV-30 montre l'effet de plusieurs augmentations de dP / dt consécutives, à $B_0 = 3.132 \text{ T}$.

La pression maximale irréversible, $P_{\text{MAX}}^{\text{IRR}} = 3.4366 \text{ MPa}$, est incompatible avec n'importe quelle extrapolation à basses températures de la courbe de fusion à ce champ. En fait, elle est très proche d'une courbe de fusion à champ nul !. L'irréversibilité est mise en évidence par la température indiquée par la résistance de carbone : un bref refroidissement, au début de la compression, est suivi par un réchauffement important, dû au processus d'aimantation du solide dans le champ externe, avec une constante de temps $T_1 = 160 \text{ s}$.

L'arrêt de la compression produit une très forte décroissance de la pression, la valeur finale étant supérieure à celle de départ, ce qui confirme la forte irréversibilité du système.

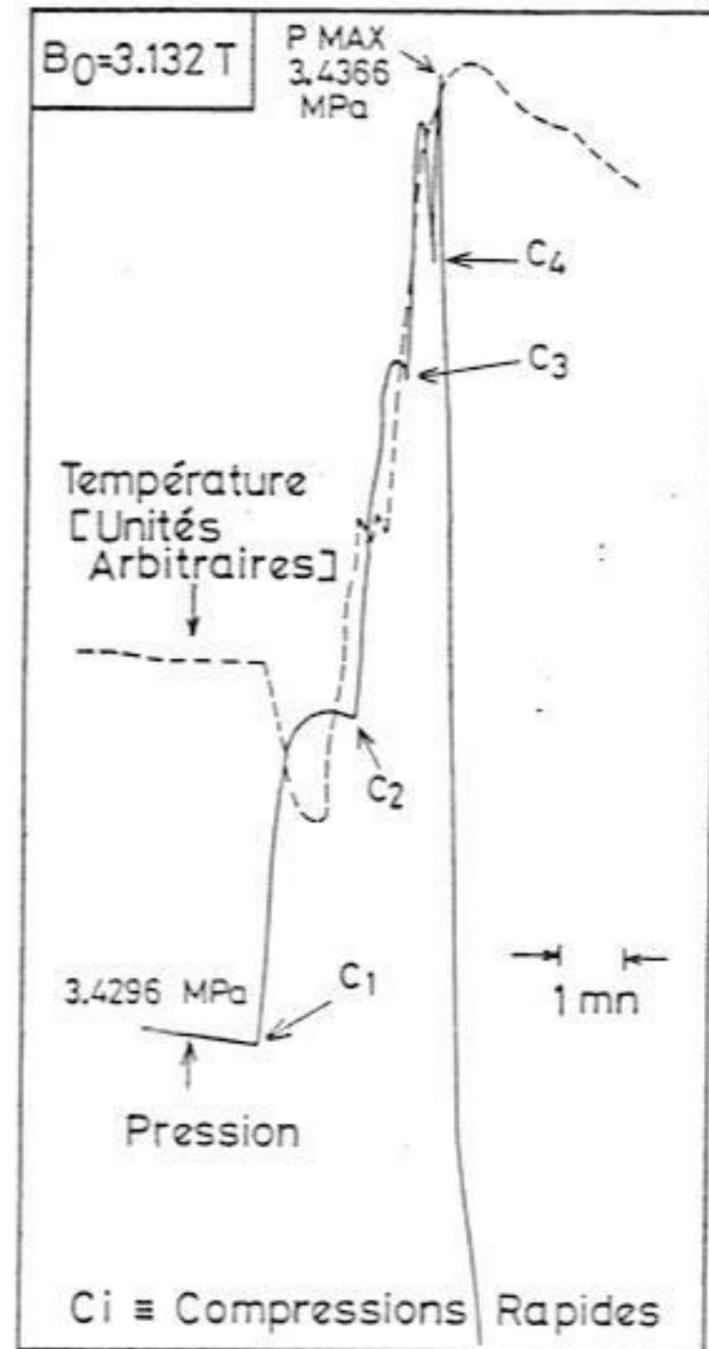
- Le "backstep"

Nous avons observé des backsteps du type mis en évidence par Schuberth et al. (1979) (voir figures IV-23 et IV-30b).

Au cours des compressions irréversibles, c-à-d lorsque les pressions P_{A_1} et P_{A_2} n'ont pas leur valeur à l'équilibre, nous observons un retour relativement rapide aux pressions d'équilibre à une température légèrement inférieure à T_{A_2} , et d'autant plus proche de T_{A_2} que la compression est lente. Pour des compressions réversibles, cet accident n'est pas observable. L'effet est très important à fort champ ; vers 4 T, la pression après le backstep reste constante, et a la valeur P_{MAX} obtenue par les compressions réversibles, discutée par la suite.

Fig. IV-30 a :

Effets irréversibles dans des compressions rapides : la pression atteint des valeurs élevées, mais la résistance de carbone chauffe (après un léger refroidissement). L'arrêt de la compression provoque une chute brutale de la pression (retour à l'équilibre).



A la décompression, on n'observe pas d'effets analogues ; la pression P_{A_2} varie peu, P_{A_1} est fortement déprimée, mais ce déséquilibre persiste, ce qui est mis en évidence par une longue constante de temps de $P(t)$ lorsque la décompression est arrêtée.

Ainsi, la courbe de fusion est à l'équilibre dans le superfluide A_2 ; dans le fluide normal ou la phase A_1 , par contre, des vitesses de compression très lentes sont nécessaires pour mesurer des propriétés à l'équilibre.

Dès la publication de Schuberth et al. interprétant le "backstep" comme une transition de phase, Delrieu (communication privée) avait suggéré la possibilité d'un effet irréversible dû à la formation de solide sous-aimanté. Le temps de relaxation dans le liquide normal n'est pas le T_1 intrinsèque ($> 10^3$ s, mais est contrôlé par la diffusion de spin vers les parois (voir Chapitre V). Il est de l'ordre de quelques secondes dans notre cellule ; dans le superfluide A_2 , T_1 devient inférieur à 10 ms, grâce à ses propriétés de transport d'aimantation extraordinaires. (Corrucini et Osheroff, 1978 ; Webb, 1978). Le solide n'aura l'aimantation à l'équilibre que si la diffusion de spin est suffisamment rapide pour fournir à l'interface des spins orientés

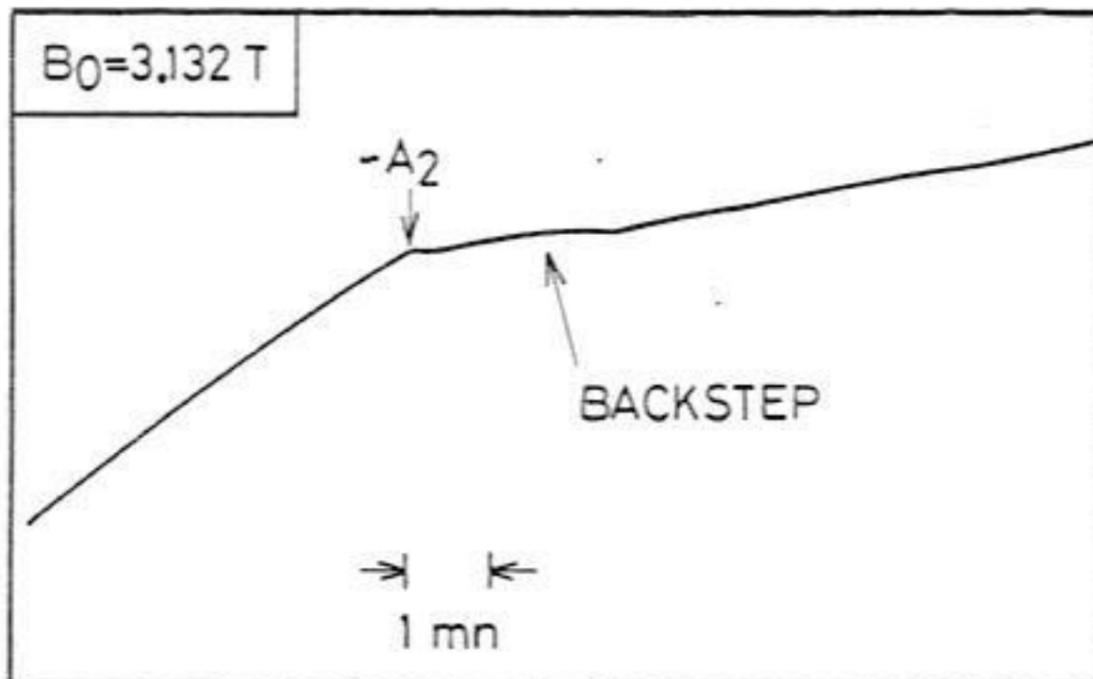
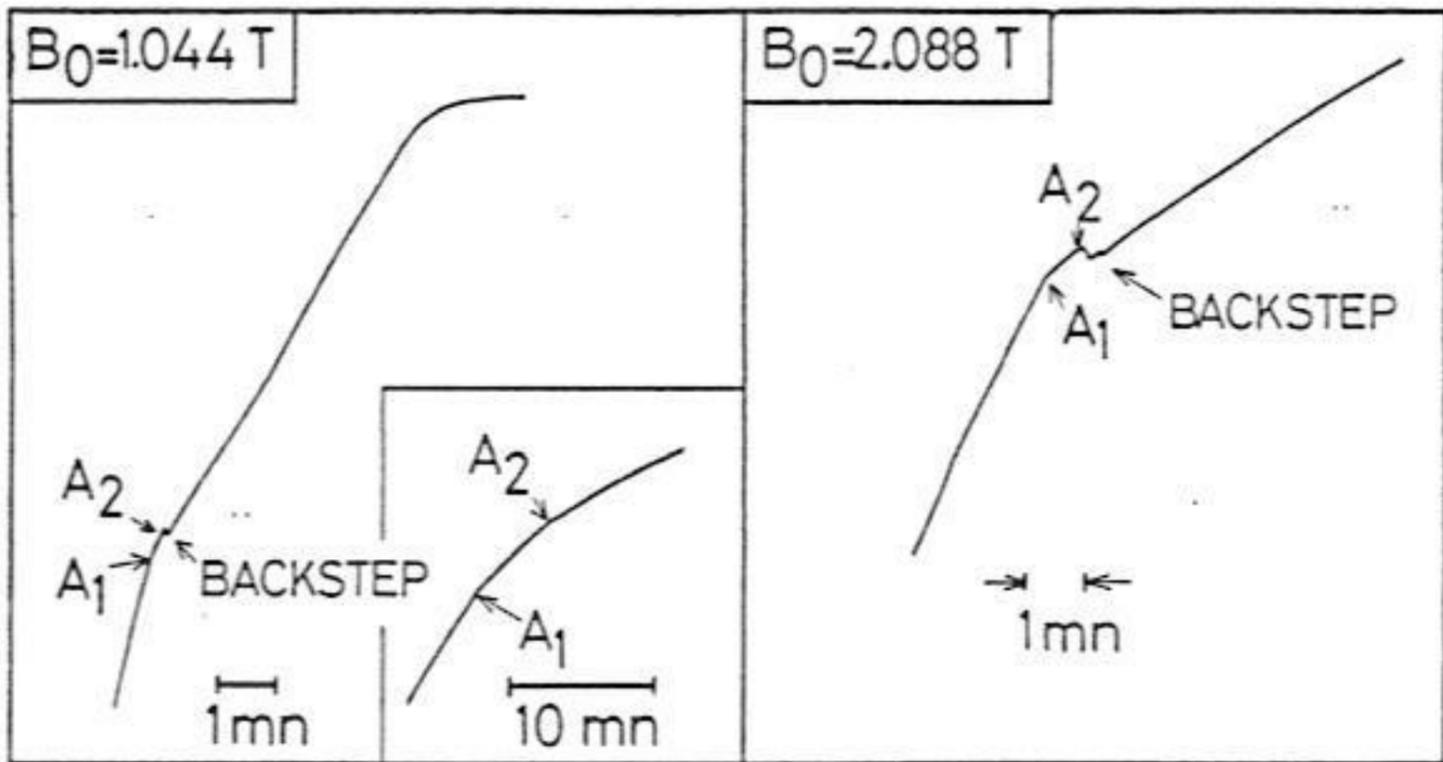


Fig. IV-30 b : Backsteps à champ faible.

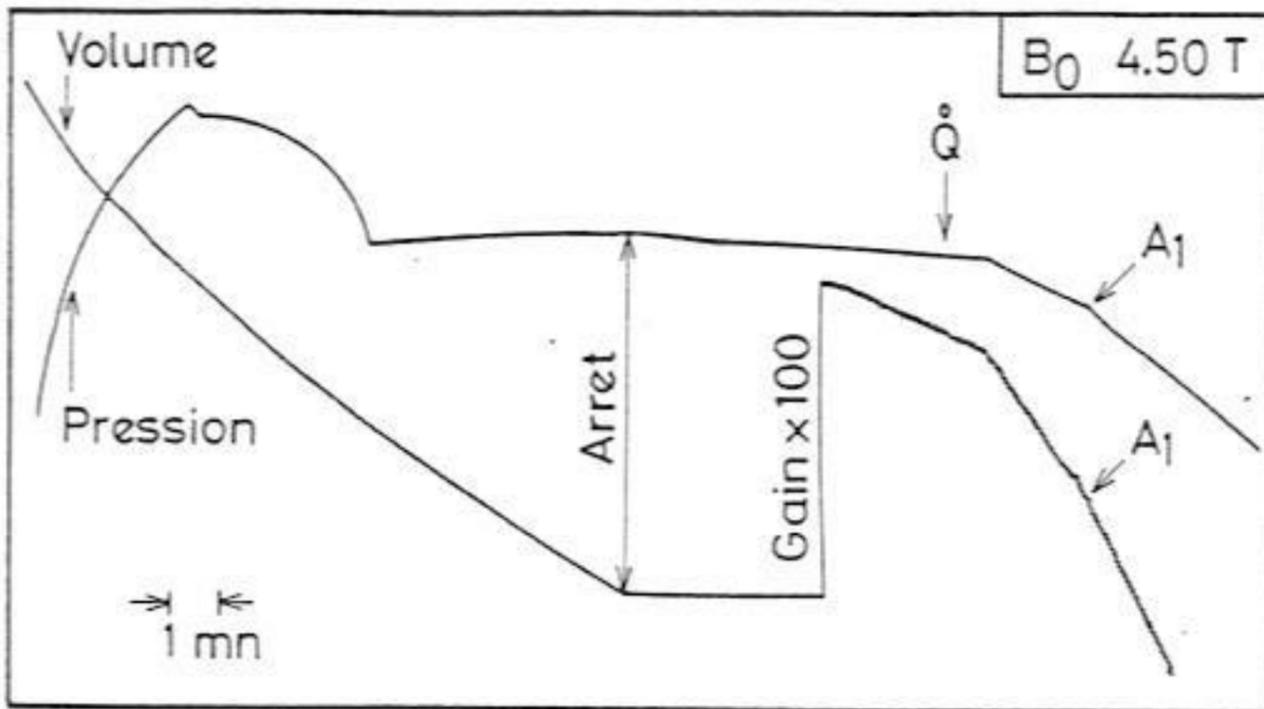
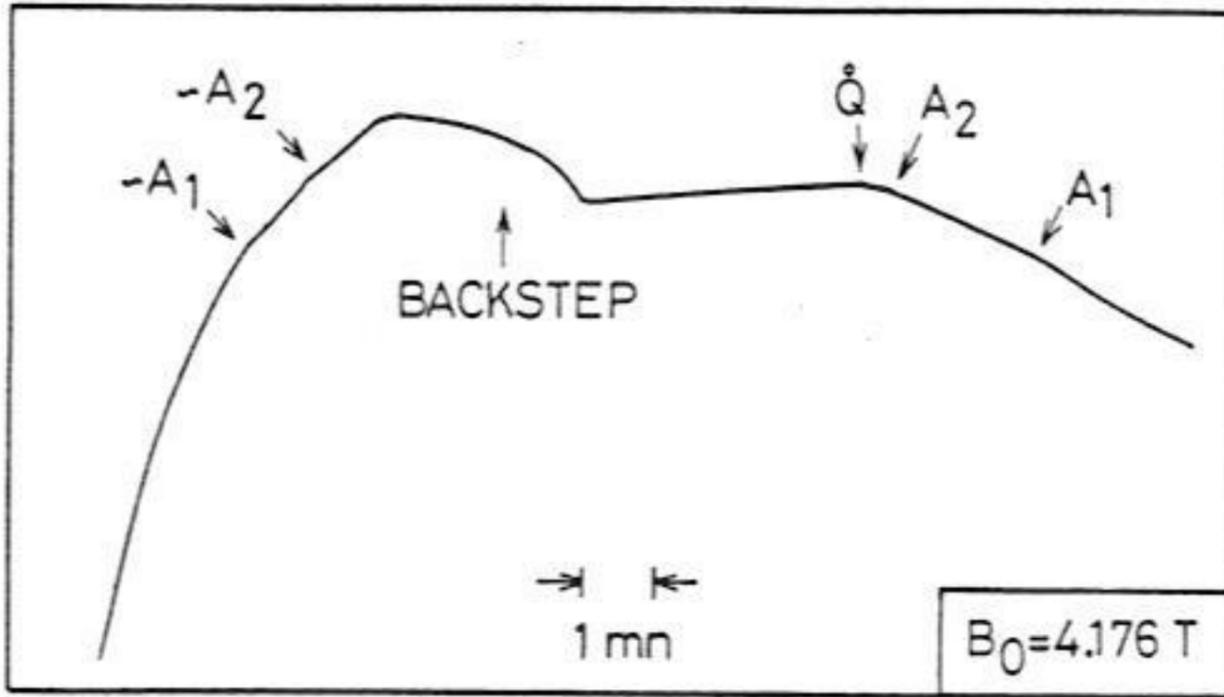


Fig. IV-30 c : "backsteps" à champ fort.

parallèlement au champ.

Yu et Anderson (1979) ont développé ces arguments, montrant la relation entre le déficit d'aimantation du solide, la courbe de fusion hors équilibre, et le changement du temps caractéristique d'équilibre.

Nos mesures des pressions P_{A_1} et P_{A_2} montrent clairement que la courbe de fusion pour des compressions rapides n'est pas en équilibre. Nous avons également observé la sous-polarisation du solide formé rapidement à 7.2 T à partir du liquide normal, par une mesure directe de l'aimantation.

L'observation du temps d'équilibre, après un arrêt de la compression, nous a permis de vérifier qu'ils sont longs (en accord avec le calcul basé sur la diffusion de spin) dans le fluide normal, et plus rapides d'au moins deux ordres de grandeur dans la phase A_2 .

Finalement, nous n'observons le backstep que dans des compressions irréversibles (fournissant des valeurs de P_{A_1} et P_{A_2} hors équilibre).

Nous avons par conséquent vérifié toutes les hypothèses théoriques émises par Delrieu et Yu et Anderson pour expliquer le backstep ; nos mesures démontrent expérimentalement que le backstep ne correspond pas à une transition de phase, mais à un effet hors-équilibre analogue à la méthode thermodynamique de production d' ^3He (^3He polarisé) de Castaing et Nôzières (1979).

RESULTATS A L'EQUILIBRE

Après avoir mis en évidence ces effets irréversibles, et trouvé leur explication dans le cadre des théories sur l' ^3He liquide polarisé, nous avons pu poursuivre nos expériences à fort champ.

Les résultats de nos mesures de $P_{A_2} - P_{A_1}$ sont fournis par la table suivante et la figure IV-31.

Table IV-5.

$H(T)$	1.044	2.088	3.132	3.654	4.176
$P_{A_2} - P_{A_1}$ [Pa]	218 ± 10	445 ± 25	496 ± 6	502 ± 6	$420 \begin{matrix} +80 \\ -20 \end{matrix}$

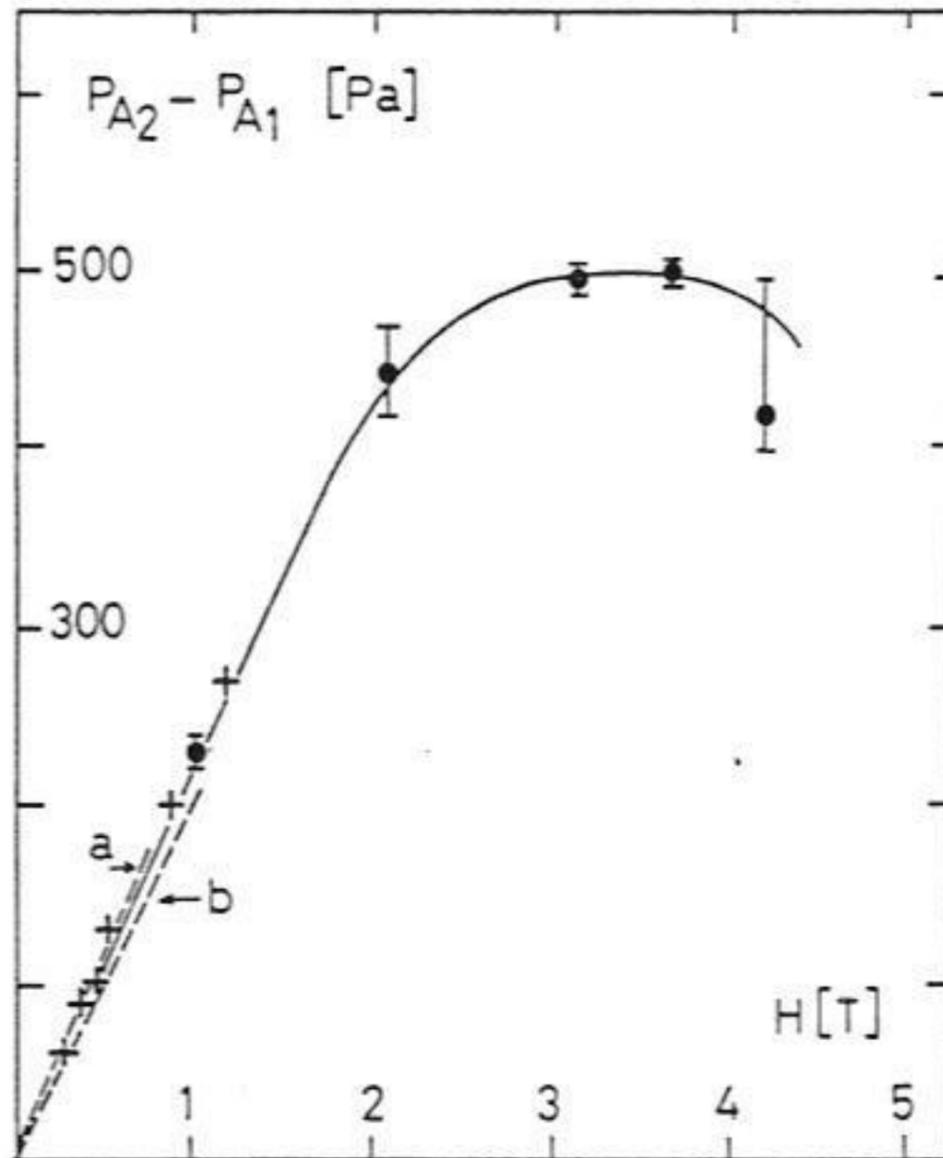


Fig. IV-31 : Ecart entre les pressions des transitions superfluides A_1 et A_2 à fort champ. Nos mesures mettent en évidence la présence d'un maximum (voir texte).

A des champs $B_0 < 2$ T, nous obtenons :

$$P_{A2} - P_{A1} = (208 \pm 10) B_0 \quad \text{Pa / T}$$

en excellent accord avec

les mesures citées précédemment : $200 B_0$; $227 B_0$; $220 B_0$.

Pour $B_0 > 2$ T, nous avons mis en évidence un effet remarquable ; $P_{A2} - P_{A1}$ atteint un maximum de l'ordre de 500 Pa, puis décroît pour $B_0 > 4$ T.

Les barres d'erreur sont une conséquence de la variation de P_{A1} et P_{A2}

avec la vitesse de compression ; elles encadrent l'ensemble de nos compressions les plus lentes à chaque champ.

Sous $B_0 = 4.176$ T, la transition A_2 est difficilement identifiée, la pression atteignant un maximum qui sera discuté plus loin ; A_1 est mesurable ; l'incertitude sur $P_{A_2} - P_{A_1}$ est importante, malgré la lenteur des compressions pratiquement au maximum de la courbe de compression $P(t)$.

Finalement, aucune des transitions n'apparaît à 7.2 T. Schuberth et al. (1979) avaient signalé une augmentation de $P_{A_2} - P_{A_1}$ par rapport à l'extrapolation linéaire pour $B_0 = 2.8$ T ; nos mesures montrent clairement que les écarts à la linéarité sont négatifs.

Nous attribuons ce désaccord à la forte irréversibilité présente dans les expériences de Schuberth et al., dont les vitesses de compression sont très importantes.

La valeur de la pression à la température fixe T_A est donnée, d'après Osheroff et Anderson (1974), par la relation citée précédemment :

$$P_A(B_0, T_A) = 0.375 P_{A_1} + 0.625 P_{A_2}$$

Halperin et al. (1978) obtiennent un résultat similaire :

$$P_A(B_0, T_A) = 0.364 P_{A_1} + 0.636 P_{A_2}$$

Les résultats de nos mesures de P_{A_1} et P_{A_2} , et le calcul de $P_A(B_0, T_A)$ avec la relation d'Osheroff et Anderson sont donnés par la table IV-6 et la figure IV-32.

Table IV-6.

B_0 [Teslas]	P_{A_1} [MPa]	P_{A_2} [MPa]	$P_A(B_0, T_A)$ [MPa]	$P_A(B_0, T_A) - P_A$ [kbar]
1.044	3.43345	3.43367	3.43359	0.61 ± 0.02
2.088	3.43152	3.43197	3.43180	2.40 ± 0.02
3.132	3.42913	3.42962	3.42944	4.76 ± 0.02
3.654	3.42769	3.42819	3.42800	6.20 ± 0.02
4.176	3.4266	~ 3.4270	3.42685	7.4 ± 0.2
4.50	~ 3.4251	-	3.4257	8.5 ± 0.2
5.22	-	-	3.4232	11.0 ± 0.2
7.153	-	-	3.4163	17.9 ± 0.5

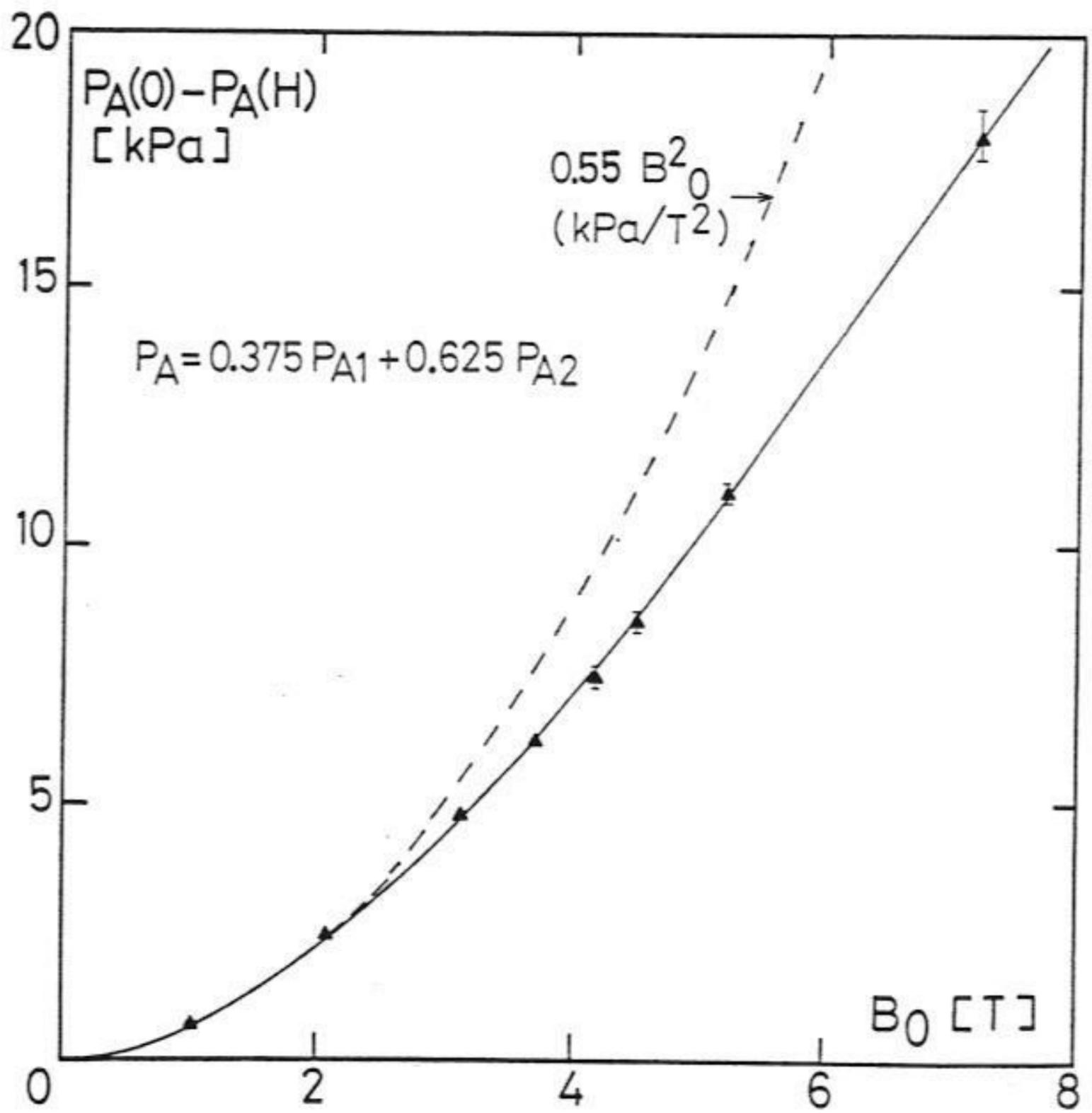


Fig. IV-32.

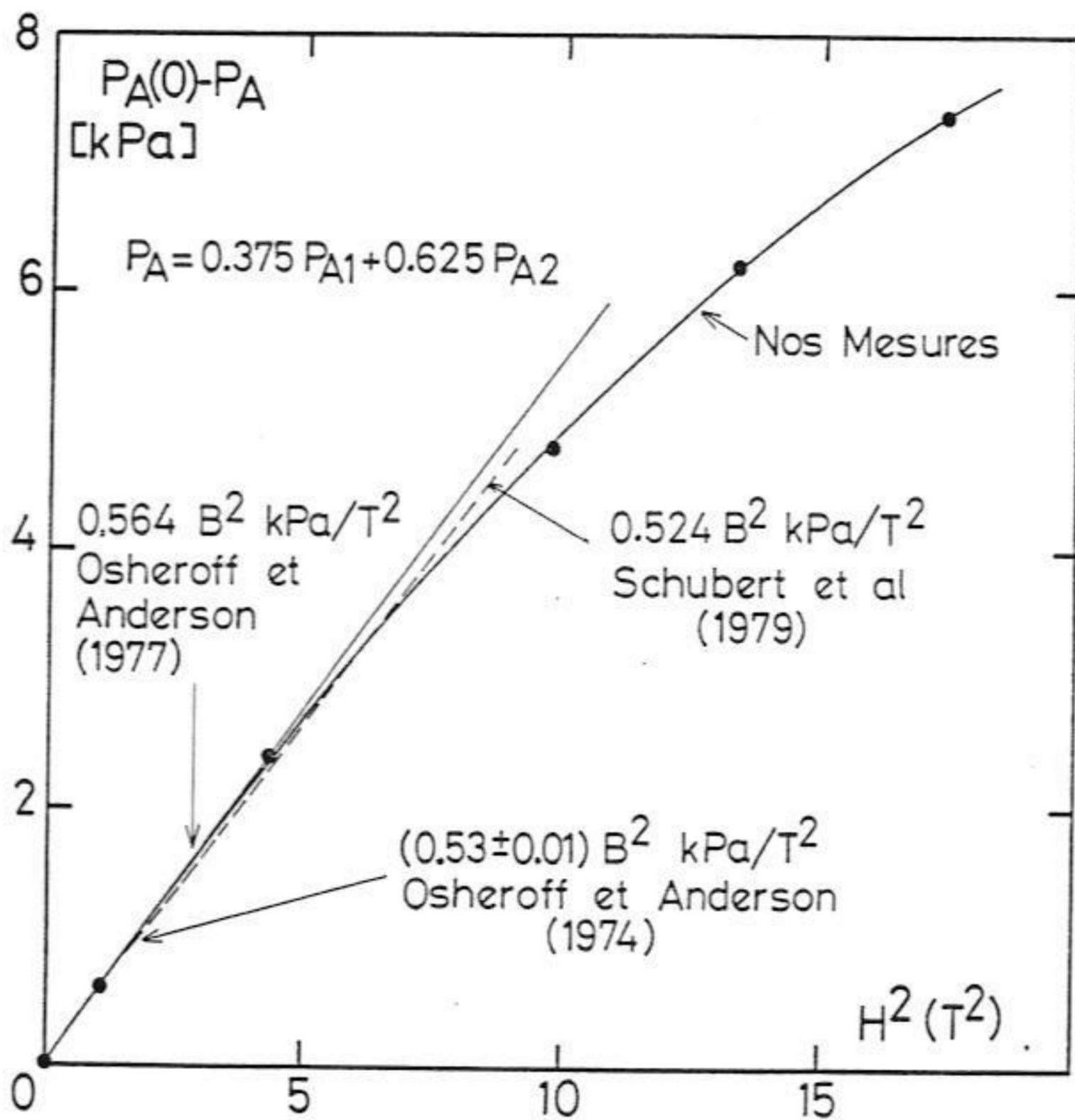


Fig. IV-33.

Les valeurs de $P_A(B_0, T_A)$ pour des champs supérieurs à 4.50 T sont celles du maximum de la courbe de compression réversible, et ne correspondent pas, par conséquent, à une observation directe de A_1 et A_2 . Cette assimilation de P_{MAX} à P_A sera justifiée par la suite.

A bas champ, ($B_0 = 1.044$ et 2.088 T), nos mesures sont en excellent accord avec les résultats antérieurs. En effet, nous obtenons :

$$P_A(B_0, T_A) - P_A = (550 \pm 10) B_0^2 \text{ Pa} / T^2$$

(Osheroff et Anderson (1974) : $530 B_0^2$; Kummer et al. (1977) : $564 B_0^2$; Schuberth et al. (1979) : $524 B_0^2$).

Au-dessus de 2.2 T, la loi quadratique en champ ne décrit plus correctement les résultats ; $P_A(B_0, T_A) - P_A$ croît plus lentement que $550 B_0^2$, ce qui explique la valeur faible ($524 B_0^2$) du coefficient trouvée par Schuberth et al. avec deux points à 2.0 et 2.8 T.

Pour $B_0 > 4$ T, la dépendance de P_A en champ est nettement linéaire, celle de P_{MAX} .

- Pression maximale à l'équilibre.

Au cours d'une compression Pomeranchuk la pression de ^3He augmente en suivant la courbe de fusion, la température décroissant en conséquence. On atteint une pression maximum (c-à-d une température minimum) lorsque la puissance frigorifique de l'effet Pomeranchuk est réduite au niveau des pertes thermiques sur la cellule, c-à-d lorsque l'entropie du solide a décru de façon appréciable (en pratique, pour $S \sim 0.1 R \ln 2$).

La décroissance de l'entropie a également pour conséquence la réduction de la pente de la courbe de fusion, la pression étant alors peu sensible à la variation de la température.

D'autre part, le maximum de capacité calorifique associé à la réduction d'entropie du solide s'opposera au refroidissement du solide préalablement formé dans la cellule.

Ainsi, une réduction rapide de l'entropie à une température donnée se traduit par un plafonnement de la pression de fusion au-dessous de cette température.

Pour des compressions réversibles nous observons à chaque champ B_0 une pression maximum pratiquement indépendante de la vitesse de compression ; cette valeur décroît peu, et très lentement, lorsque la compression est arrêtée, à cause des entrées de

chaleur, inférieures à 0.1 nW.

La table IV-7 donne nos valeurs de P_{MAX} en fonction du champ, représentées graphiquement sur la figure IV-33.

Table IV-7.

B_0 [Teslas]	P_{MAX} [MPa]
0	3.43939 \pm 0.00005
1.044	3.43740 \pm 0.0001
2.088	3.43385 \pm 0.0001
3.132	3.43039 \pm 0.0001
3.654	3.42856 \pm 0.0001
4.176	3.42714 \pm 0.0002
4.50	3.4257 \pm 0.0002
5.22	3.4232 \pm 0.0003
7.153	3.4163 \pm 0.0004

A champ nul, nous observons une cassure de pente de $P(t)$ pour $P = 3.43935$ MPa ; le maximum est très proche de cette valeur ($P = 3.43939$ MPa).

La variation de la pression maximum pour des champs entre 1 et 7.2 T est linéaire, et très rapide par rapport à la pression caractérisant la transition du premier ordre (pratiquement constante).

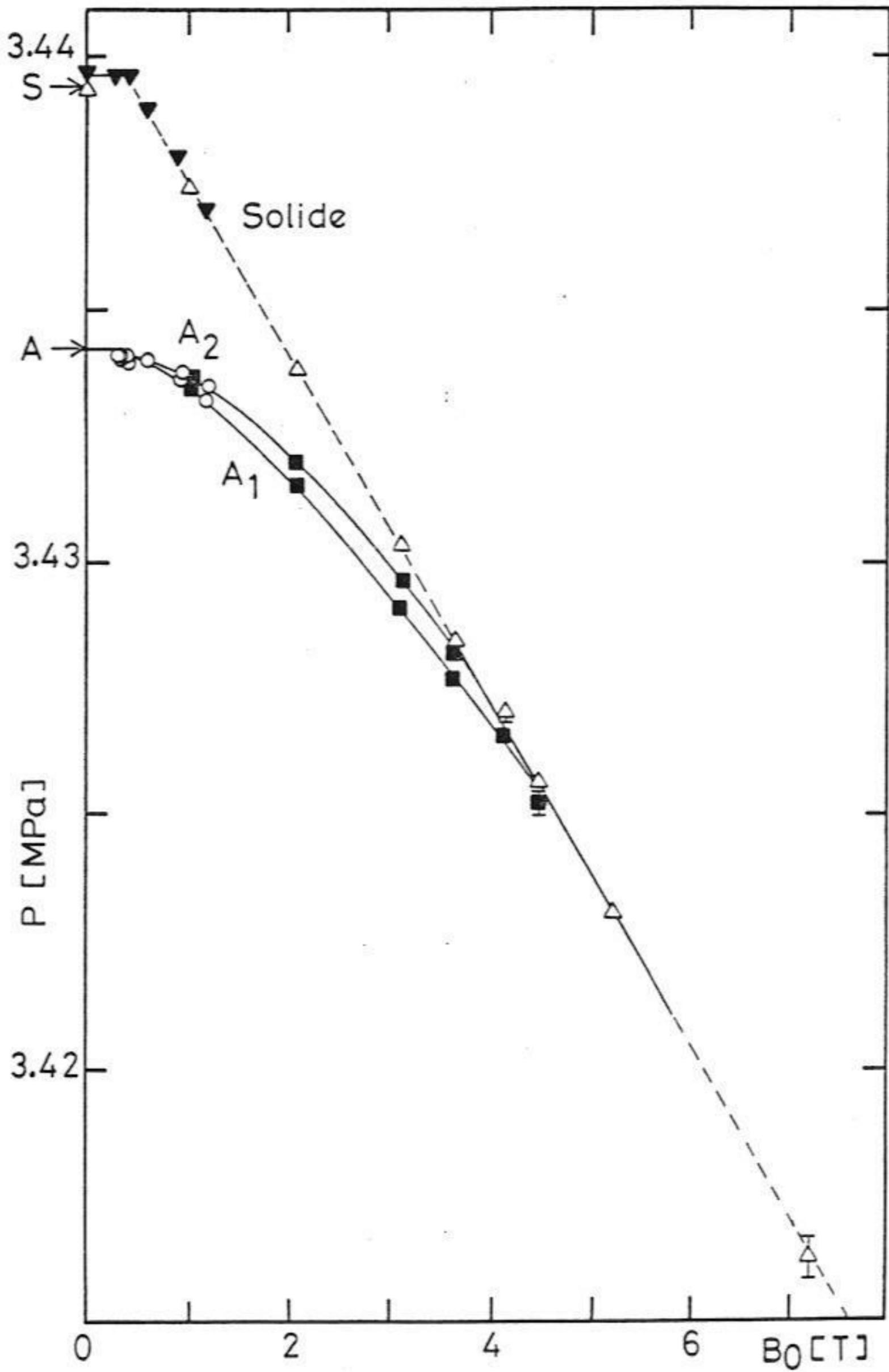
Nous avons également représenté sur la figure IV-33 les pressions P_{A1} et P_{A2} des transitions superfluides du liquide. Pour B_0 de l'ordre de 4 T, les courbes se rejoignent et se confondent avec celle de P_{MAX} .

d) Thermodynamique de l'équilibre solide-liquide

L'équilibre du solide avec le liquide sur la courbe de fusion est décrit mathématiquement en égalant les énergies libres de Gibbs des deux phases (Landau et Lifshitz, Electrodynamique des milieux continus, 1967) $d\tilde{G}(T,P,H) = -S dT + V dP - \frac{1}{2} \int \vec{B} \cdot d\vec{H} dV$ Soit \vec{H}' le champ magnétique produit par le même système de courants en l'absence du milieu aimanté ; dans ce cas $\vec{\nabla} \times \vec{H} = \vec{\nabla} \times \vec{H}'$, et $d\tilde{G}(T,P,H') = -S dT + V dP - \mu_0 M V dH'$.

Pour des milieux à faible aimantation, comme l' ^3He solide, $B_0 = \mu_0 (H + M) \approx \mu_0 H$ et $H' \approx H$.

Fig. IV-34 : Diagramme de Phases Pression - Champ Magnétique.



Par conséquent :

$$d\tilde{G}(T, P, H') = -S dT + V dP - M V dB_0$$

L'égalité de \tilde{G} dans les deux phases implique :

$$-S_S dT + V_S dP - M_S V_S dB_0 = -S_L dT + V_L dP - M_L V_L dB_0$$

A un champ fixé B_0 , cette expression se réduit à l'équation de Clausius-Clapeyron :

$\frac{dP}{dT} \Big|_{C.F.} = \frac{S_L - S_S}{V_L - V_S}$ reliant la pente de la courbe de fusion aux différences d'entropie et de volume molaire des deux phases.

On obtient de la même façon la variation de la température correspondant à une pression donnée en fonction du champ :

$$\frac{dT}{dB_0} \Big|_{C.F.} = - \frac{M_S V_S - M_L V_L}{S_S - S_L}$$

et la variation de la pression à température constante en fonction du champ magnétique :

$$\frac{dP}{dB_0} \Big|_{C.F.} = \frac{M_S V_S - M_L V_L}{V_S - V_L}$$

Ces relations thermodynamiques vont nous permettre de transposer les résultats de nos mesures en pression en d'autres variables plus intuitives : l'entropie du solide, et son aimantation.

e) Entropie du solide à fort champ

La relation $\frac{dP}{dB_0} \Big|_{C.F.} = \frac{S_L - S_S}{V_L - V_S}$ peut être exploitée de la façon suivante : à la température T_A (~ 2.75 mK), nous avons mesuré la largeur de la phase A_1 en pression : $P_{A_2} - P_{A_1}$; sa largeur en température croît linéairement avec le champ : $T_{A_2} - T_{A_1} = -64 B_0 \mu K/T$ (voir la discussion à ce sujet du § 9).

Nous pouvons écrire alors :

$$\frac{dP}{dB_0} \Big|_{T_A} \sim \frac{P_{A_2} - P_{A_1}}{T_{A_2} - T_{A_1}} \sim (P_{A_2} - P_{A_1}) / -64 \times 10^{-6} B_0 \quad (SI)$$

La différence entre le volume molaire du liquide et celui du solide a été mesurée par Halperin et al. (1978) : $V_L - V_S = 1.314 \text{ cm}^3$ ($T < 20$ mK), ainsi que l'entropie du li-

guide à T_A : $S_L(T_A) = 1.183 \times 10^{-2}$ R par mole.

Celle-ci est faible devant l'entropie du solide que nous considérons, $S_S \sim R \ln 2$.

Par conséquent :

$$S_S \sim - (V_L - V_S) (P_{A_2} - P_{A_1}) / (T_{A_2} - T_{A_1}) + S_L$$

$$S_S \sim 2.05 \times 10^{-3} (P_{A_2} - P_{A_1}) / B_0 + S_L$$

soit

$$S_S / R \ln 2 = 3.56 \times 10^{-3} (P_{A_2} - P_{A_1}) / B_0 + 0.017$$

En utilisant nos mesures de $P_{A_2} - P_{A_1}$ nous obtenons l'entropie du solide à T_A :

Table IV-8.

B_0 (T)	$S_S / R \ln 2$
1.044	0.76 ± 0.03
2.088	0.776 ± 0.044
3.132	0.581 ± 0.007
3.654	0.506 ± 0.006
4.176	0.375 ± 0.07 $- 0.02$

Ces valeurs sont représentées sur la figure IV-35.

Pour des champs inférieurs à 2 T, l'entropie est peu affectée par le champ magnétique, ($\mu B_0 < k_B \theta$) ; elle reste de l'ordre de $S_S(T_A) / R \ln 2 = 0.830$ (Halperin et al. 1978, Kummer et al. 1977).

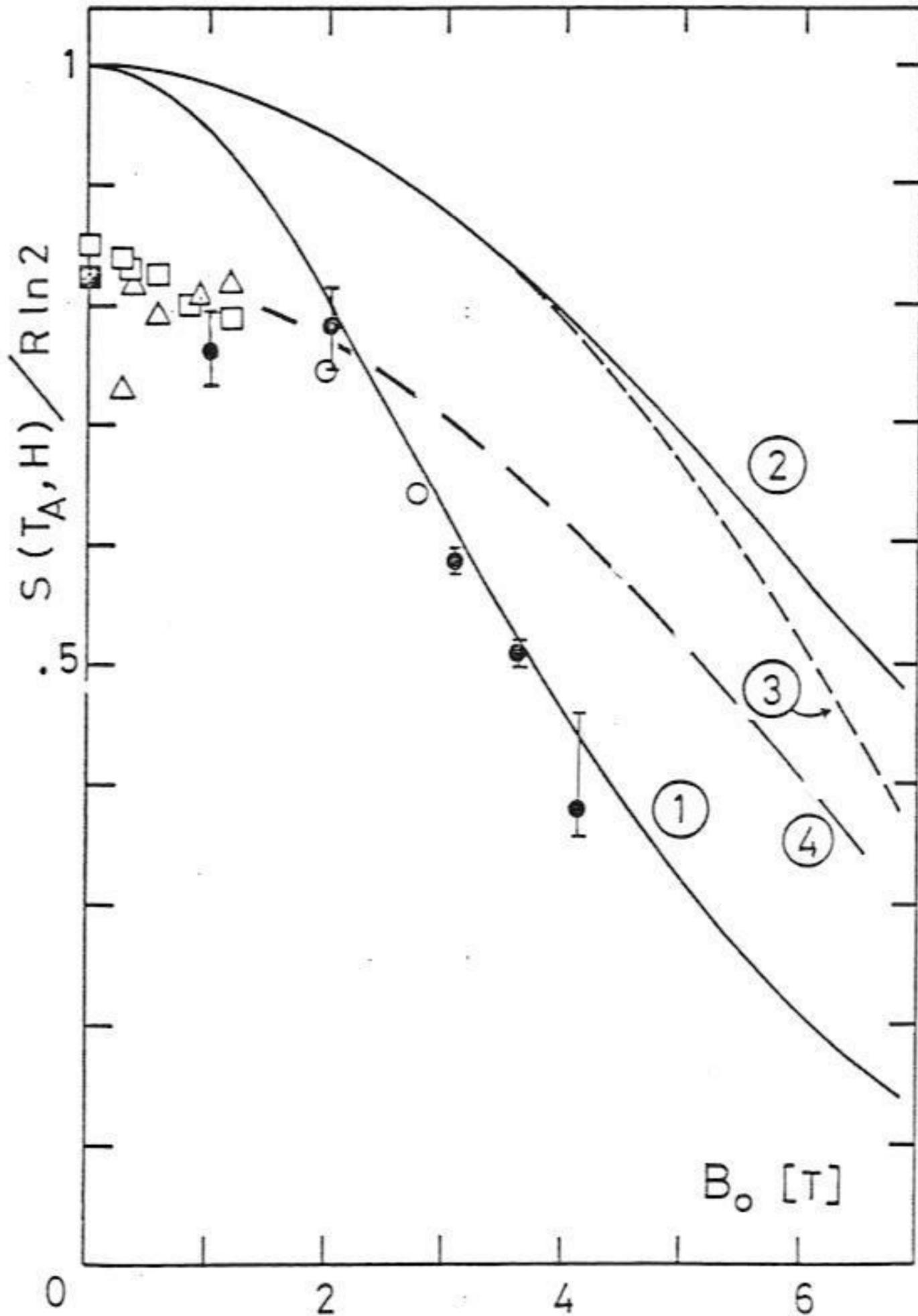
Au-dessus de 2 T, nous obtenons une diminution rapide de l'entropie, qui devient de l'ordre de celle des spins sans interaction. Le calcul de l'entropie en champ moléculaire tenant compte d'interactions antiferromagnétiques ($\theta = -3$ mK) n'est pas en accord avec nos résultats expérimentaux : ceci confirme l'existence simultanée d'une tendance ferromagnétique déjà observée sur la susceptibilité à bas champ (cf. § IV-D-a-1), qui s'écarte d'un comportement de type Curie-Weiss en se rapprochant de la loi de Curie.

Fig. IV-35.

Entropie de l' ^3He solide à T_A en fonction du champ magnétique :

- Halperin et al. 1974, 1978.
- Kummer et al. 1975, 1977.
- Schuberth et al. 1979.
- △ Calculé avec les données de Kummer et al., en suivant la procédure décrite dans cette thèse.
- Nos résultats.

- ① Spins libres.
- ② Champ moléculaire, $\theta = -3 \text{ mK}$.
- ③ $S = \ln 2 - 0.5 [\mu H / k (T + \theta)]^2$ avec $\theta = -3 \text{ mK}$.
- ④ Champ moléculaire, $\theta = -3 \text{ mK}$, décalé pour obtenir $S(T_A, B = 0)$.



La méthode de calcul qui consiste à effectuer le développement de la fonction de partition à hautes températures fournit le résultat suivant pour l'entropie :

$$S(T, B_0) / R = \ln 2 - \frac{\tilde{e}_2}{8 (k_B T)^2} + \frac{\tilde{e}_3}{12 (k_B T)^3} + \dots$$

$$- \frac{1}{2} \left(\frac{\mu B_0}{k_B T} \right)^2 \left[1 + \frac{2\theta}{k_B T} + \frac{3\tilde{C}}{(k_B T)^2} + \dots \right]$$

A la température $T_A = 2.75$ mK :

- Pour $B_0 = 0$, si l'on considère, en accord avec des mesures de C_V et P_V , que $\tilde{e}_2 = 7$ mK, la valeur de $S(0, T_A)$ obtenue en négligeant \tilde{e}_3 est raisonnable :

$$S(0, T_A) / R - \ln 2 = 0.12 \quad (\text{Halperin et al. 1978}) \quad \text{et}$$

$$\tilde{e}_2 / 8 (k_B T_A)^2 = + 0.115.$$

Une valeur de $\tilde{e}_3 = 7.8$ mK a été proposée par Roger, Delrieu et Hetherington (1980) pour décrire le comportement de l'entropie au voisinage de la transition anti-ferromagnétique à bas champ. Cette valeur fournirait, de par le terme $\tilde{e}_3 / 12 (k_B T)^3$, une correction de 0.031 se soustrayant de la valeur 0.115 ; ainsi $S(0, T_A) / R - \ln 2$ (calculé) serait de 0.084, en désaccord avec la valeur expérimentale 0.12.

Nous pensons par conséquent que la valeur de $\tilde{e}_3 = 7.8$ mK est surestimée, les termes d'ordre supérieur n'étant pas négligeables au voisinage immédiat de l'ordre ; nous proposons de considérer que la valeur de Halperin et al. égale à 0.12 ± 0.01 implique une valeur inférieure à 0.01 pour le terme en \tilde{e}_3 , soit $|\tilde{e}_3| < 2.5$ mK.

- Pour $B_0 \neq 0$, le développement en série est peu utile à T_A , car $T_A \sim \theta$. La première correction est $2\theta / k_B T_A \approx - 2.2$; la deuxième est $3\tilde{C} / (k_B T_A)^2$, soit $3(\theta^2 - B) / (k_B T_A)^2 \approx + 4.6$.

Il n'est donc même pas possible d'obtenir le signe de ce terme. Nos mesures indiquent que la valeur doit être très proche de 1 à T_A puisque nous obtenons un comportement proche du paramagnétisme.

f) Calcul de l'aimantation du solide

Nous avons également calculé l'aimantation du solide à $T_A \approx 2.75$ mK en fonction du champ magnétique à partir de nos mesures de la pression $P_A(B_0, T_A)$.

En effet,

$$\left. \frac{dP}{dB_0} \right|_{T, C.F.} = \frac{M_S V_S - M_L V_L}{V_S - V_L}$$

$$\left. \frac{dP}{dB_0} \right|_{T, C.F.} = - \left[M_S - M_L \left(\frac{V_L}{V_S} \right) \right] / \frac{V_L - V_S}{V_S}$$

D'après Halperin et al. (1978) : $V_L = 25.537 \text{ cm}^3$ à $T = 3 \text{ mK}$
 et $V_L - V_S = 1.314 \text{ cm}^3$ ($T < 30 \text{ mK}$)

soit : $V_S = 24.223 \text{ cm}^3$, $V_L / V_S = 1.054$ et $\frac{V_L - V_S}{V_S} = 5.42 \times 10^{-2}$.

Le moment magnétique $M_S V_S$ du solide est de l'ordre de 30 fois celui du même nombre d'atomes de liquide, $M_L V_L$:

$$\frac{M_S V_S}{M_L V_L} \sim \frac{T_P^{**}}{T - \theta} = \frac{178 \text{ mK}}{2.75 - (-3) \text{ mK}} = 31$$

A fort champ, les effets de saturation (loi de Brillouin) deviennent importants : à 7.2 T, nous avons mesuré $\frac{M_S V_S}{M_L V_L} = 24$ au voisinage de T_A .

Ainsi, $M_S V_S - M_L V_L \approx 0.97 M_S V_S$

$$\text{et } \left. \frac{dP}{dB_0} \right|_{T_A, C.F.} = - 0.97 M_S V_S / (V_L - V_S) = - 17.9 M_S$$

$$M_S(T_A) \sim - 5.59 \times 10^{-2} \left. \frac{dP}{dB_0} \right|_{T_A, C.F.} \quad (\text{S.I.})$$

$\frac{M_S}{M_{SAT}} = \frac{M_S V_S}{N_0 \mu}$ avec $\mu = g \mu_n$ ($\mu_n = 5.05125 \times 10^{-24} \text{ ergs/G} = 0.05125 \times 10^{-27} \text{ Am}^2$)

pour 1^3He $g_s = -2.1274$

$$\text{Soit } \mu = 1.0746 \times 10^{-23} \text{ ergs/G} = 1.0746 \times 10^{-26} \text{ Am}^2$$

(μ désigne le module du moment magnétique de 1^3He).

$$\text{et } \mu / k_B = 7.7835 \times 10^{-8} \text{ K/G} = 7.7835 \times 10^{-4} \text{ K/T}$$



Le moment magnétique à saturation par mole est :

$$M_{SAT} \cdot V_M \neq N_0 \mu = 6.47142 \text{ ergs/G.mole}$$

$$= 6.47142 \times 10^{-3} \text{ Am}^2 / \text{mole}$$

Donc :

$$\frac{M_S}{M_{SAT}} = M_S V_S / 6.47142 \times 10^{-3} \quad (\text{SI})$$

Soit, pour $V_S = 24.22 \times 10^{-6} \text{ m}^3$:

$$\frac{M_S(T_A)}{M_{SAT}} = - 5.59 \times 10^{-2} \left. \frac{dP}{dB_0} \right|_{T_A, \text{ C.F.}} \cdot 24.22 \times 10^{-6} / 6.471 \times 10^{-3}$$

$$\frac{M_S(T_A)}{M_{SAT}} = - 2.092 \times 10^{-4} \left. \frac{dP}{dB_0} \right|_{T_A, \text{ C.F.}}$$

En utilisant les valeurs de $P(B_0, T_A)$ que nous avons mesurées (table IV-6 et figure IV-32), et la relation précédente, nous obtenons la courbe d'aimantation à T_A (figure IV-36).

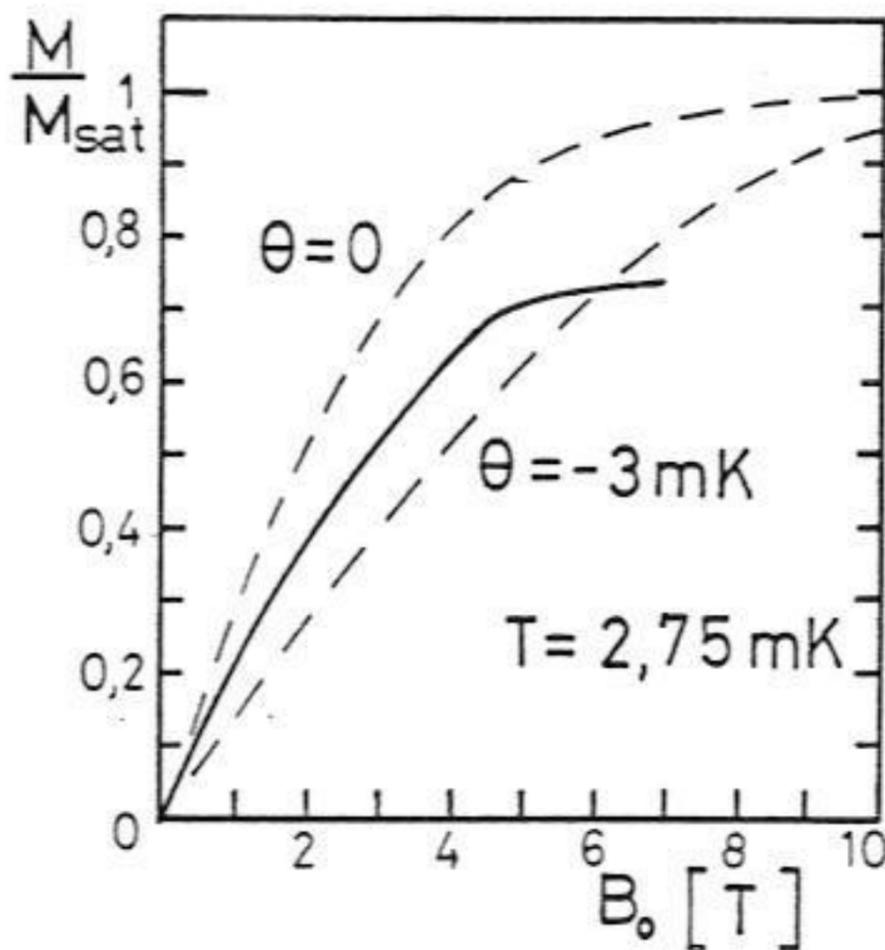


Fig. IV-36 : Aimantation de l'³He solide déduite de nos mesures de pression.

A bas champ ($B < 2$ T), $P(B_0, T_A) - P_A = - (550 \pm 10) B_0^2$ Pa / T²

$$\text{d'où } M_S = - 5.59 \times 10^{-2} \left. \frac{dP}{dB_0} \right|_{T_A, C.F.} = 61.5 B_0 \quad (\text{S.I.})$$

$$\text{et } \chi_S(T_A) = \frac{\mu_0 M_S}{B_0} = (7.73 \pm 0.14) 10^{-5} \quad (\text{S.I.})$$

La constante de Curie est :

$$C = \mu_0 N_0 S(S+1) g^2 \mu_n^2 / 3 k_B V_m = \mu_0 N_0 \mu^2 / k_B V_m$$

$$\text{soit } C = 6.3295 \cdot 10^{-12} / V_m \quad (\text{S.I.})$$

et pour le volume molaire $V_m = 24.22$ cm³ (solide sur la courbe de fusion).

$$C = 2.613 \cdot 10^{-7} \text{ K}$$

Une loi de Curie impliquerait $\chi_C(2.75 \text{ mK}) = 9.5 \times 10^{-5}$, et une loi de Curie-Weiss avec $\theta = -3$ mK : $\chi_{C-W} = 4.5 \times 10^{-5}$.

La valeur que nous obtenons ($\chi = 7.7 \times 10^{-5}$) est par conséquent plus proche d'une loi de Curie que de celle de Curie-Weiss ; cette tendance ferromagnétique, que nous avons évoquée au cours de nos calculs de l'entropie à T_A , est en accord avec les mesures directes de Prewitt et Goodkind (1977) et Deville, Bernier et Delrieu (1979), qui obtiennent en champ très faible ($B_0 \lesssim 20$ mT) :

$$\chi = 5.2 \times 10^{-6} \text{ cgs à } T_A,$$

$$\text{soit } \chi = (6.5 \pm 0.7) 10^{-5} \quad (\text{S.I.})$$

Si l'on considère les barres d'erreur et une incertitude de l'ordre de 5 % sur la température T_A , l'ensemble des résultats est cohérent.

A plus fort champ, ($2 < B_0 < 4$ T), l'aimantation reste comprise entre les courbes données par la loi de Brillouin et le calcul en champ moléculaire avec $\theta = -3$ mK. (figure IV-36).

A fort champ, ($B_0 > 4$ T), l'aimantation se sature à une valeur de l'ordre de 70 % de l'aimantation à saturation (figure IV-36).

Le calcul de cette aimantation à fort champ exige une discussion supplémentaire. Les courbes des pressions P_{A1} et P_{A2} rejoignent alors la pression maximum (figure IV-34), et la différence $P_{A2} - P_{A1}$, diminue (figure IV-31) : la réduction de l'entropie du solide cause un aplatissement de la courbe de fusion qui rend négligeable la

différence $P_{MAX} - P_A$ pour les calculs qui suivent. Afin de rendre compte de la décroissance linéaire de P_{MAX} avec le champ ($\frac{d P_{MAX}}{d B_0} = 3.40 \text{ kPa / T}$), nous considérons l'égalité des énergies libres de Gibbs du solide et du liquide :

$$- S_S dT + V_S dP - M_S V_S dB_0 = - S_L dT + V_L dP - M_L V_L dB_0$$

soit $(S_S - S_L) dT - (V_L - V_S) dP + (M_S V_S - M_L V_L) dB_0 = 0$

L'estimation de ces termes donne les ordres de grandeur suivants, en supposant que la variation de pression $dP \sim 3.4 \text{ kPa}$ pour $dB_0 = 1T$ correspond au plus à $dT \sim 1 \text{ mK}$:

Pour $\Delta S \sim S_S \sim R \ln 2$ et $dT \sim 1 \text{ mK}$: $\Delta S dT \sim 6 \times 10^{-3} \text{ J}$

$\Delta V = V_L - V_S \sim 1.3 \text{ cm}^3$ et $dP \sim 3.4 \text{ kPa}$: $V_S dP \sim 5 \times 10^{-3} \text{ J}$

$\Delta(MV) \sim M_S V_S \sim 0.7 M_{SAT} V_S \sim 5 \times 10^{-3}$ et $dB_0 \sim 1 T$: $M_S V_S dB_0 \sim 5 \times 10^{-3} \text{ J}$

Ainsi, tant que l'entropie du solide est de l'ordre de $R \ln 2$ par mole, les trois termes sont importants. Or nous avons observé une forte décroissance de l'entropie à forts champs : à $4 T$, $S \sim 0.4 R \ln 2$ à T_A , et inférieure à cette valeur pour $P_{MAX} > P_A$, c-à-d $T_{MIN} < T_A$.

En fait, d'après les mesures d'entropie pour $0 < B_0 < 1.2 T$ de Halperin et al. (1978) et Kummer et al. (1977), l'effet Pomeranchuk permet de former facilement du solide dont l'entropie est inférieure à $0.1 R \ln 2$.

Nous avons vérifié ceci jusqu'à $7.2 T$ en formant du solide à vitesse constante, et en chauffant simultanément pour maintenir la pression constante ; en tenant compte des entrées de chaleur parasites, nous pouvons estimer l'entropie du solide formé aux plus basses températures : $S_S (P \sim P_{MAX}) < 0.2 R \ln 2$.

Ainsi, même si la relation $dT = 0$ n'est pas strictement vérifiée pour $P_A \sim P_{MAX}$, nous pouvons négliger le terme d'entropie $\Delta S dT$.

L'expression $\left. \frac{dP}{dB_0} \right|_{S \sim 0, C.F.} = - \frac{M_S V_S - M_L V_L}{V_L - V_S}$

est alors identique à celle de $\left. \frac{dP}{dB_0} \right|_{T, C.F.}$

Ainsi, pour $\frac{d P_{MAX}}{d B_0} = 3.40 \text{ kPa/T}$, nous obtenons une aimantation :

$$M_S (S \sim 0) = - 5.59 \times 10^{-2} \frac{d P_{MAX}}{d B_0} = 190 \quad (\text{S.I.})$$

et $\frac{M_S}{M_{SAT}} (S \sim 0) = -2.092 \times 10^{-4} \frac{d P_{MAX}}{d B_0} = 0.71$

$$\frac{M_S}{M_{SAT}} = 71 \%$$

Cette valeur de l'aimantation est obtenue en utilisant une approximation linéaire à $P_{MAX}(B_0)$. Si l'on considère les petites déviations à la linéarité, on obtient une aimantation $\frac{M_S}{M_{SAT}} \sim 0.6$ à bas champ ($B_0 \sim 1 \text{ T}$), et ~ 0.75 à fort champ ($B_0 \sim 7 \text{ T}$) (figure IV-37).

La courbe d'aimantation atteint des valeurs très élevées à bas champ (pseudo-ferromagnétique), et bloquées à 71 % de l'aimantation à saturation jusqu'à 7.2 T : ce comportement diffère radicalement de celui d'un antiferromagnétique classique (figure IV-10). Par contre, il est en accord avec le modèle d'échange multiple (cf. § IV-C-e) : la phase à fort champ, caractéristique de la présence d'un échange à 4 spins important, possède une forte aimantation ; l'extrapolation à champ nul est donnée par l'expression : $(J_t / K_p)^{1/2}$ (modèle à deux paramètres).

Avec les valeurs $J_t = - 0.100 \text{ mK}$ et $K_p = - 0.355 \text{ mK}$ obtenues des mesures de θ et \tilde{e}_2 , on calcule :

$$M / M_{SAT} (B_0 \rightarrow 0, S \rightarrow 0) = (J_t / K_p)^{1/2} = 0.53$$

La figure IV-37 montre nos résultats de P_{MAX} et M_S en les comparant à ceux du modèle d'échange multiple. On constate un décalage de la courbe de $P_{MAX}(B_0)$, dû au fait que l'approximation de champ moléculaire surestime le champ de transition entre les deux phases.

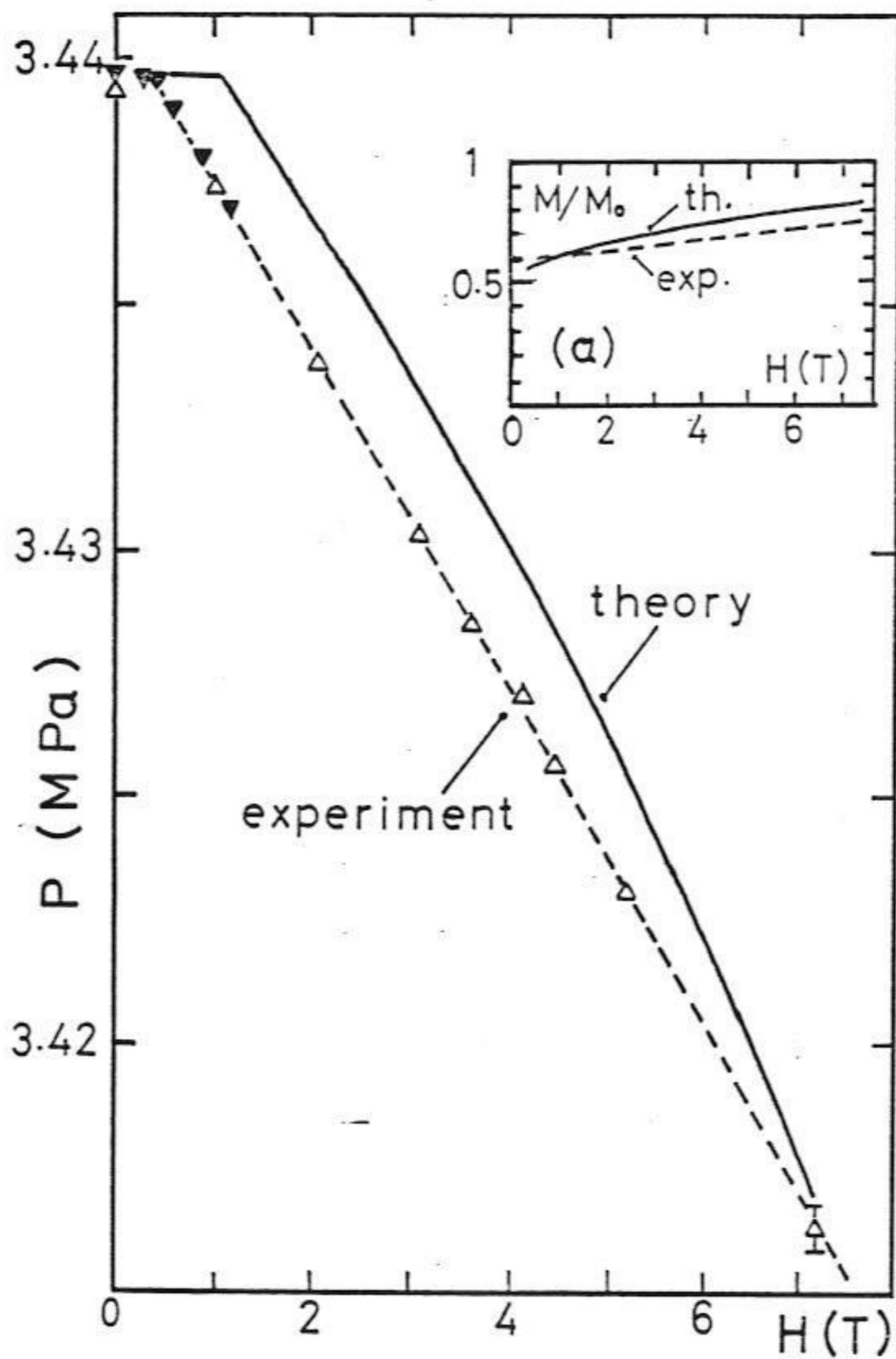
L'aimantation, par contre, est en excellent accord avec nos mesures.

De plus, celles-ci sont confirmées par notre mesure directe de M_{sat} / M à 7.2 T, fournissant la valeur 0.75 (cf. § IV-E-b).

g) Température caractérisant la décroissance de l'entropie

Afin de déterminer la température où se produit la chute d'entropie, et par conséquent l'aplatissement de la courbe de fusion et celle d'aimantation, nous avons

Fig. IV-37 : Comparaison entre la théorie d'échange multiple et nos résultats.



employé les transitions A_1 et A_2 , en supposant que $T_{A_2} - T_{A_1} \sim 64 B_0 \mu K / T$, définissant ainsi un nouveau thermomètre dans la gamme du millikelvin.

S'il est difficile d'affirmer que cette relation reste valable à fort champ ($B_0 \sim 7 T$), il est également certain que les faibles déviations à la linéarité observées par Schuberth et al (1979) sont dues à l'irréversibilité de ces mesures. En effet, elles trouvaient leur justification dans un écart à la linéarité positif de $(P_{A_2} - P_{A_1})$ en fonction de B_0 , alors que nos mesures prouvent que celui-ci est négatif (cf. figure IV-31) pour des compressions lentes.

Nous considérons par conséquent les résultats de Schuberth et al. comme une preuve du faible écart à la linéarité de $T_{A_2} - T_{A_1}$, jusqu'à des champs de l'ordre de 3 T.

Nous supposons également que T_{A_1} et T_{A_2} se séparent de la valeur à champ nul T_A de façon symétrique lorsque l'on augmente le champ B_0 : une isotherme $T = 2.75$ mK peut être imaginée entre les courbes A_1 et A_2 de la figure IV-34. Les accidents caractérisant A_1 et A_2 de la courbe de fusion fournissent ainsi deux "points fixes" pour chaque valeur du champ qui permettent d'estimer la température à leur voisinage. Ainsi, à 4.2 T on atteint la pression maximum à la température de la transition A_2 ($T \sim 2.6$ mK), et à 5.0 T ceci a lieu à la température de la transition A_1 ($T \sim 2.9$ mK).

À 7.2 T, la température correspondant à la chute d'entropie est de (3.25 ± 0.25) mK, d'après les mesures décrites plus loin.

On a ainsi une estimation de la température à laquelle les spins voient leur entropie fortement diminuée, c-à-d celle qui correspond au maximum de la chaleur spécifique du solide, en fonction du champ magnétique; ces points sont représentés sur la figure IV-38, ainsi que le diagramme de phases prédit par le modèle d'échange multiple. On constate à nouveau un bon accord entre les expériences et le modèle.

h) Courbe de fusion et entropie à 7.2 T

Nous avons effectué, en collaboration avec G. Frossati, des mesures de pression de fusion en fonction de la température à $B_0 = 7.2 T$. Comme nous l'avons expliqué au début de ce chapitre, la température de la cellule (T_{CELL}) est obtenue à partir de celle de la boîte à mélange (T_{BM}), fournie par un thermomètre capacitif. Afin de tenir compte du temps d'équilibre thermique entre la cellule pleine de liquide et la boîte à mélange, nous avons supposé une relaxation exponentielle avec une constante de temps $\tau = 32$ heures. Cette valeur a été mesurée à $B_0 = 0$, et vérifiée à 7.2 T lorsque le thermomètre capacitif de la cellule fonctionnait, au début de l'expérience.

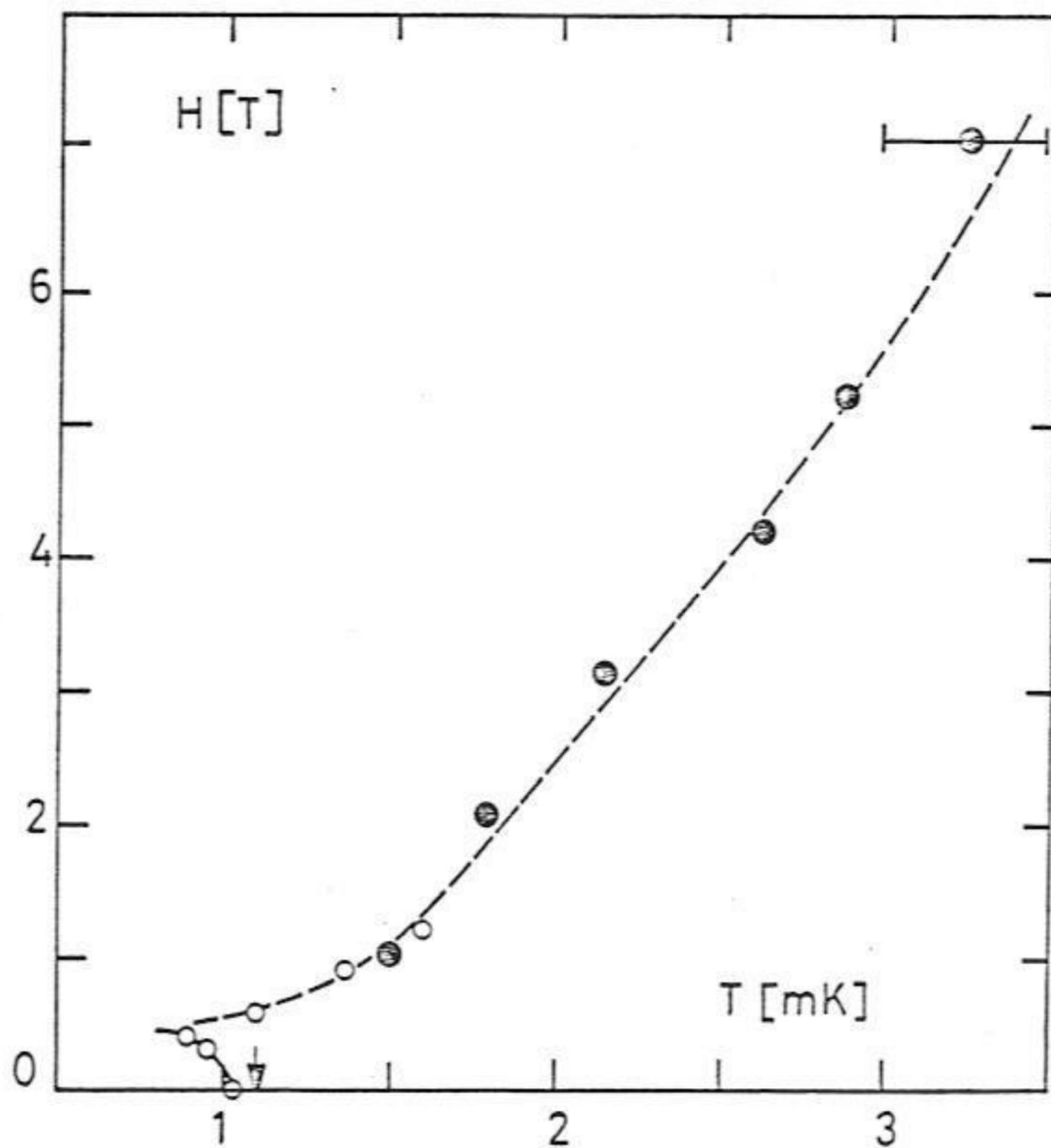


Fig. IV-38 : Diagramme de phases déduit de nos mesures de pression.

‡ : Halperin et al. (1974 et 1978).

○ : Kummer et al. (1975 et 1977).

● : nos mesures.

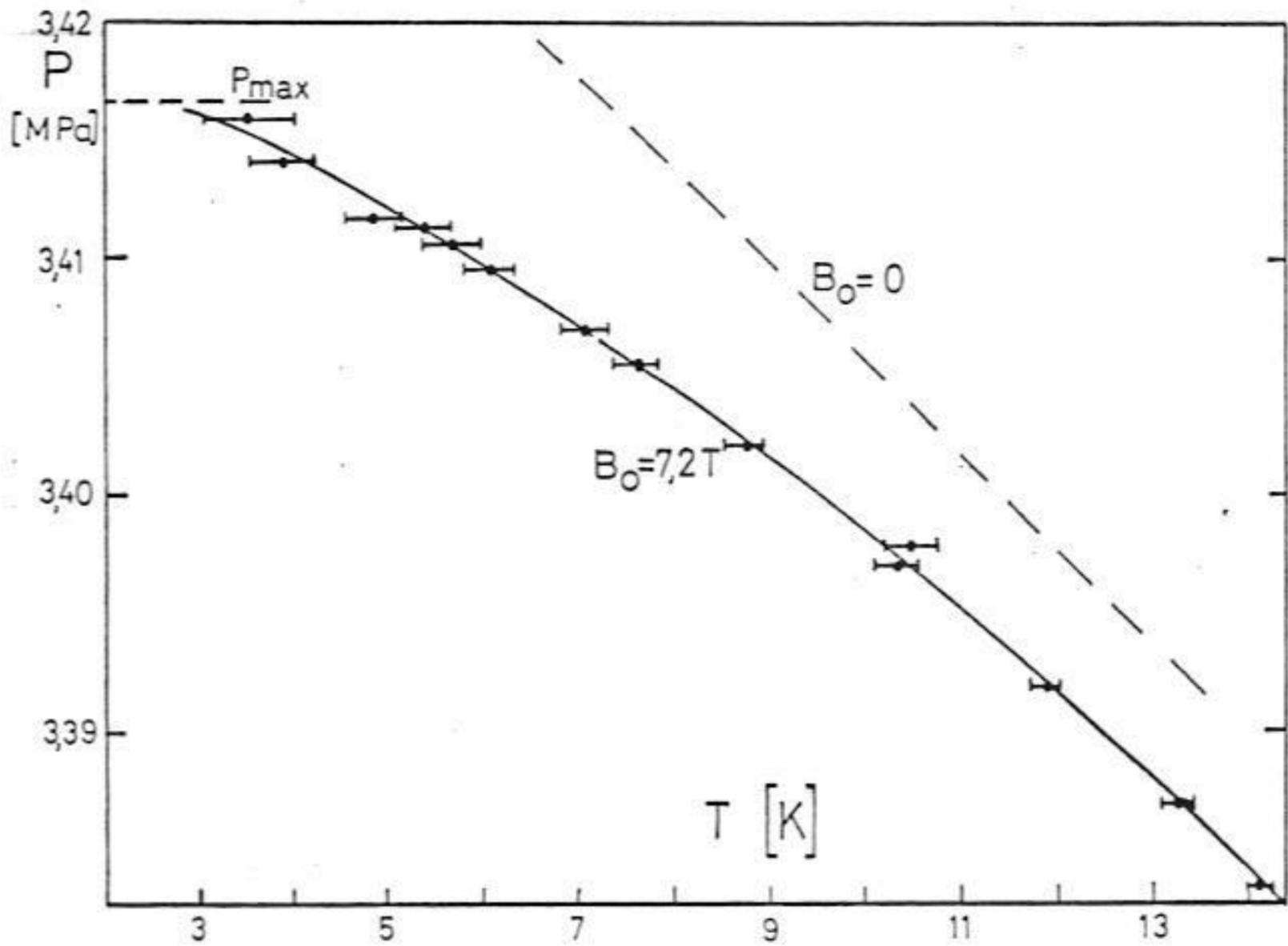
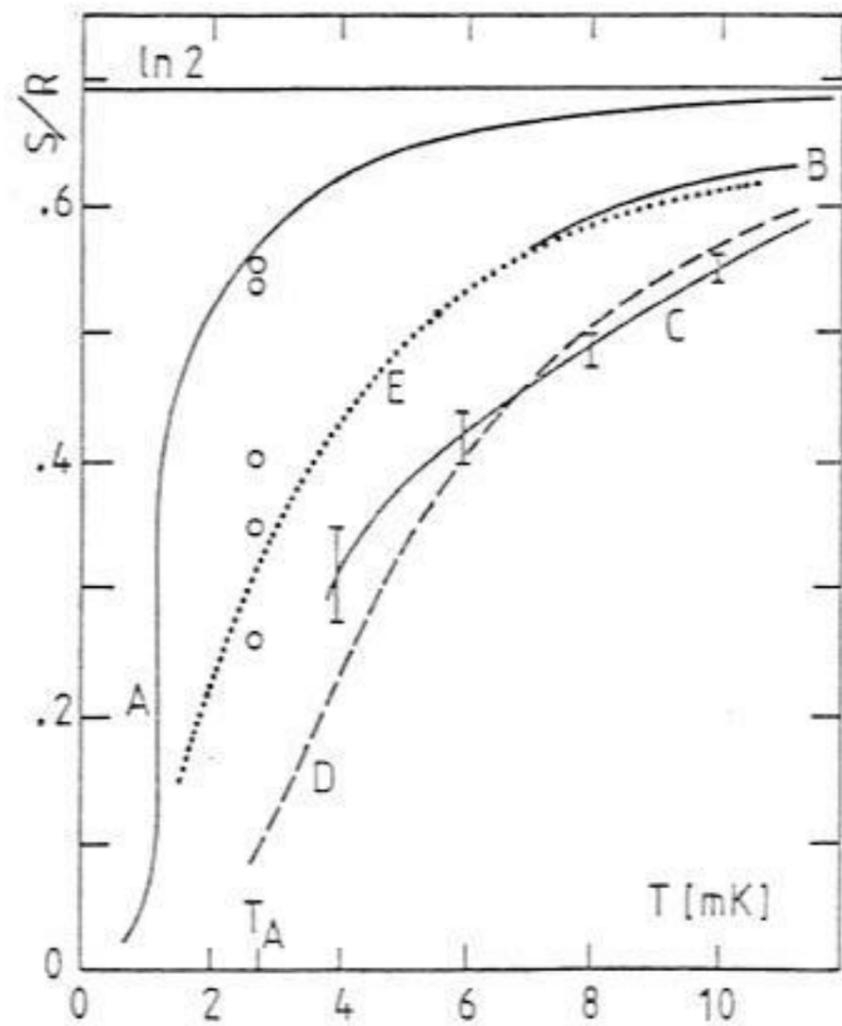


Fig. IV-39.: Courbe de fusion à 7.2 T.

Fig. IV-40 :
Entropie de l' ^3He solide :
A : Halperin et al. (1977) $B = 0$.
B : Johnson et al. (1972) $B = 6.36 T$.
C : nos résultats (1980) $B = 7.2 T$.
D : spins libres $B = 7 T$.
E : champ moléculaire, $\theta = -3 \text{ mK}$.
O : nos résultats à T_A ($B_0 = 1.04 ; 2.09 ; 3.13 \text{ et } 4.18 T$).



Bien que très imprécise, cette procédure a l'avantage de fournir la première mesure de la courbe de fusion à fort champ ($B_0 = 7.2 \text{ T}$), représentée sur la figure IV-39.

L'entropie du solide, déduite par dérivation au moyen de la relation de Clausius-Clapeyron, permet d'obtenir l'entropie en fonction de la température à $B_0 = 7.2 \text{ T}$. Les résultats sont représentés sur la figure IV-40.

Pour des températures supérieures à 6 mK, l'entropie est très proche de celle d'un paramagnétique, et s'écarte par conséquent de la valeur calculée en champ moléculaire avec le modèle d'Heisenberg, (pour $\theta = -3 \text{ mK}$, soit $J = -0.75 \text{ mK}$). Johnson, Rapp et Wheatley (1972) avaient observé le même effet à plus hautes températures, et 6.36 T.

Nous avons également représenté sur la figure IV-40 les points que nous avons obtenu à T_A pour l'entropie sous 1.044 ; 2.088 ; 3.13 ; 3.65 et 4.18 Teslas, qui permettent de vérifier la décroissance rapide de l'entropie sous champ magnétique.

i) Résumé des Résultats

Nos résultats peuvent être groupés en deux catégories : d'une part ceux qui prouvent l'existence d'effets irréversibles, et d'autre part les mesures à l'équilibre thermodynamique. L'irréversibilité lors des "compressions rapides" définies précédemment a été mise en évidence :

- par la Variation des pressions P_{A_1} et P_{A_2} en fonction de la vitesse de compression, de décompression, ou de la puissance de chauffage ;

- par la mesure directe de l'évolution de l'aimantation en fonction du temps après avoir formé rapidement du solide, et l'observation de pressions de fusion caractéristiques d'une sous-polarisation du solide ;

- par l'observation de temps d'équilibre remarquablement plus courts lorsque le liquide est dans la phase superfluide A_2 .

Ces observations nous ont permis de conclure à l'existence d'une forte irréversibilité dans les mesures en Pomeranchuk effectuées jusqu'à présent, et de déterminer les conditions nécessaires pour effectuer des mesures à l'équilibre.

Nous avons prouvé expérimentalement que le "backstep" correspond à ces effets irréversibles, et ne constitue pas une transition de phase dans le solide.

D'un point de vue plus technique, nos expériences ont montré les limitations à fort champ de la réfrigération Pomeranchuk et de la thermométrie au moyen de la courbe

de fusion.

L'utilisation d'un réfrigérateur à dilution atteignant des températures inférieures à 3 mK nous a permis d'effectuer des compressions extrêmement lentes, à partir de liquide froid ; dans ce cas nous avons mesuré, avec une jauge très sensible et précise, les pressions caractéristiques de A_1 , A_2 , B' , C , et du maximum de la courbe de fusion. Nous avons observé des déviations négatives de $P_{A_2} - P_{A_1}$ par rapport à la linéarité en fonction de B_0 , en contradiction avec Schuberth et al. ; dans notre cas, l'importance de l'effet observé (et la faible incertitude expérimentale) garantit l'exactitude du résultat : l'effet inverse décrit par Schuberth et al. peut être expliqué par l'irréversibilité.

Nous avons mis en évidence une déviation de $P(O, T_A) - P(B_0, T_A)$ par rapport à la loi quadratique en B_0 (cf. figure IV-32), en effectuant la première mesure des pressions P_{A_1} et P_{A_2} à fort champ ($B > 3$ T). Lorsque le champ dépasse 4 T, P_{A_1} et P_{A_2} dévient de l'ordre de P_{MAX} , la pression maximum atteinte dans la cellule ; celle-ci est remarquablement linéaire en fonction de B_0 pour $1 < B_0 < 7.2$ T (cf. figure IV-34).

Nous avons obtenu, au moyen d'une analyse thermodynamique des mesures de pression, l'entropie du solide à T_A en fonction du champ magnétique ; ces résultats, en accord avec les mesures de Kummer et al. à bas champ, indiquent une valeur de $S(T_A)$ à fort champ voisine de celle d'un paramagnétique.

Cette mesure confirme donc la tendance ferromagnétique observée en susceptibilité à bas champ (cf. § IV-D-a) ; il devient alors nécessaire d'admettre un deuxième paramètre dans l'Hamiltonien du problème pour tenir compte de la compétition entre deux types d'ordre : échange et lacunes dans le modèle d'Andreev et Marchenko, échange à 3 et 4 spins dans celui d'échange multiple.

D'autre part, il est clair qu'une théorie n'introduisant l'échange que par un modèle d'Heisenberg fournira une transition du deuxième ordre à bas champ, en contradiction avec l'expérience. Dans ce cas, il faut considérer soit un échange à deux paramètres, comme l'échange multiple, soit un couplage entre l'échange et les lacunes ou les phonons.

Ces théories, décrites au § IV-C, peuvent en principe rendre compte de ces effets. Le calcul détaillé n'a été effectué jusqu'à présent que pour le modèle d'échange multiple. En fort champ, celui-ci prédit une transition du deuxième ordre vers une phase ordonnée à forte aimantation. Si nous associons la forte décroissance d'entropie que nous mesurons à cette transition, nous obtenons un accord remarquable entre la prédiction de l'aimantation de cette phase et les résultats que nous déduisons de nos mesures de P_A et P_{MAX} en fonction du champ. (figure IV-37).

De plus, l'estimation de nos températures d'ordre correspond bien avec le diagramme de

phases théoriques (figure IV-38).

Les modèles invoquant le couplage échange-lacunes ou échange-phonons pourraient éventuellement décrire nos résultats concernant l'entropie à fort champ. Ceci impliquerait l'introduction d'un certain nombre de paramètres ajustables et une description de l' ^3He solide fort compliquée. Le modèle d'échange multiple, par contre, explique l'ensemble des résultats à partir d'un Hamiltonien de premiers principes et deux paramètres, directement mesurables.

La forte aimantation déduite de nos mesures de P_{MAX} privilégie ce modèle : les autres théories présentées jusqu'à présent ne peuvent pas rendre compte de ce résultat.

Il est donc légitime de mettre les mesures de P_{MAX} en question, et en particulier de rechercher les causes pouvant limiter la température minimum (donc la pression maximum) au cours des expériences à fort champ, si l'on exclut l'hypothèse d'une transition de phase.

Nous avons étudié la possibilité que la température minimum soit atteinte lorsque la puissance frigorifique Pomeranchuk est égale à la puissance dégagée par l'aimantation du solide s'il est formé hors équilibre. Dans ce cas, la conversion liquide-solide absorbe une énergie $T(S_S - S_L) \sim TS_S$, et le chauffage est donné par $B_0 \Delta M$, où ΔM est la différence entre l'aimantation du solide formé et sa valeur à l'équilibre. Avec la définition $\alpha = \Delta M / M_{\text{EQUIL}}$ (fraction de l'aimantation hors équilibre), si l'on considère les "températures d'ordre" que nous mesurons, et qu'on suppose l'entropie voisine de celle d'un paramagnétique, on constate que l'irréversibilité (donc α) devrait être faible à fort champ ($B_0 \sim 7 \text{ T} \Rightarrow \alpha \sim 8 \%$), mais très forte à bas champ ($\alpha \approx 1$ à 7.2 T !), contrairement à ce que l'on observe expérimentalement.

D'autres effets peuvent limiter la température finale. Nous pouvons écarter cependant tous ceux qui ne dépendent pas du champ, puisque à $B_0 = 0$ notre cellule permet d'obtenir des températures au dessous de la transition du premier ordre, donc $T < 1 \text{ mK}$, $S_S < 0.1 R \ln 2$.

Ayant écarté la possibilité de l'irréversibilité dans le processus d'aimantation du solide, il serait nécessaire de considérer des pertes thermiques sur la cellule dépendant du champ. Celle-ci sont $\lesssim 10^{-10}$ Watts même à 7 T (valeur déduite à partir de la résistance de Kapitza mesurée et en tenant compte du fait que la différence entre la température de la cellule et celle de la boîte à mélange est de l'ordre de 1 mK) ; il faudrait des entrées de chaleur supérieures de deux ordres de grandeur pour expliquer par cet effet les températures minimum que nous obtenons.

Nous pensons par conséquent que ces effets sont réellement dûs à la réduction de l'entropie dans un état magnétique ordonné, et que les pressions maximum que nous

observons proviennent de l'aplatissement de la courbe de fusion associée à la faible valeur de l'entropie.

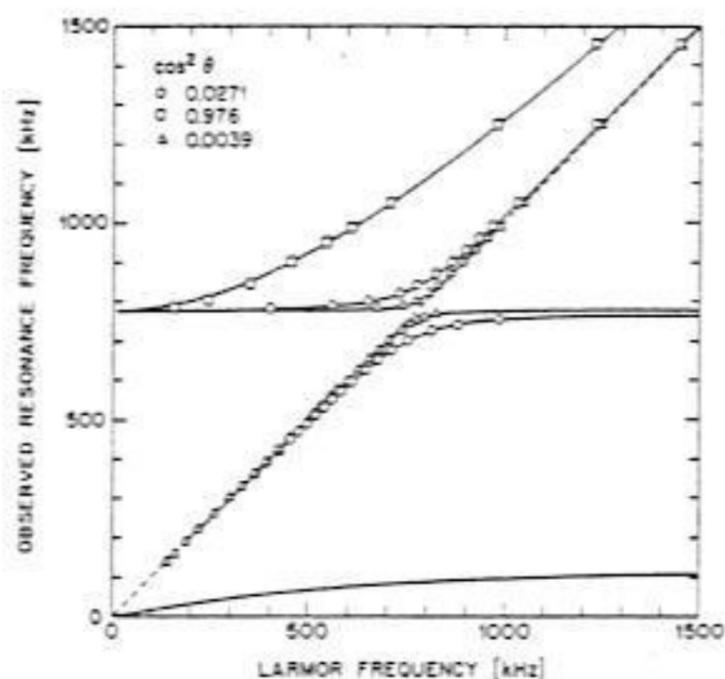
j) Résultats des autres groupes de recherche en 1980

Nous décrivons dans ce paragraphe les résultats publiés par divers groupes de recherche simultanément avec les nôtres, dont l'ensemble a permis de comprendre le comportement de l' ^3He solide.

1) Osheroff, Cross et Ficher (1980) ont effectué des mesures du spectre de résonance antiferromagnétique des monocristaux d' ^3He solide dans la phase à bas champ. Leurs résultats (figure IV-41) montrent que le cristal est divisé en trois domaines magnétiques, et qu'il existe deux modes de résonance pour chaque domaine : un mode dont la fréquence atteint une valeur finie Ω_0 à champ nul, et un mode dont la fréquence est proportionnelle à B_0 à bas champ. La valeur de Ω_0 est de 825 KHz à température $T \rightarrow 0$, incompatible avec un état magnétique de symétrie cubique.

Fig. IV-41.

FIG. 1. NMR spectra for a single crystal of solid ^3He containing three domains. Lower and upper frequency modes of the same domain are denoted by the same symbol. The dashed line is the Larmor resonance line. The solid lines are theoretical curves generated from Eq. (1) with $\Omega_0/2\pi = 777.7$ kHz and values of $\cos^2\theta$ chosen to obtain a best fit to the data. For the upper mode, linewidths were typically 300 Hz in high fields, and 1.5 kHz at zero field. For the lower mode the linewidth broadened rapidly from about 300 Hz to about 2 kHz as the resonance frequency was decreased to slightly below one-half the value of the frequency of the upper mode in zero field. We believe this broadening results from a three-magnon process.



Osheroff et al. concluent que la phase à bas champ est anisotrope, et déterminent sa structure, du type UDD décrit au § IV-C-e. L'existence de 3 domaines magnétiques implique que les axes d'anisotropie soient (100), (010) ou (001). Dans le cas d'un axe (001), les spins dans les plans (001) ont l'orientation représentée sur la figure IV-15 (anisotropie planaire).

Le modèle d'échange multiple permet de rendre compte de cette phase UDD à bas champ, et prédit sa susceptibilité, en accord avec l'expérience de Prewitt et Goodkind (1977). La fréquence Ω_0 calculée est de 870 kHz, très proche de la valeur expérimentale.

Le modèle de Guyer et Kumar permet également d'obtenir cette structure, associée à une déformation du réseau.

Finalement, les mesures de Osheroff et al. confirment le caractère du premier ordre de la transition, à une température $T_N = (1.03 \pm 0.01)$ mK, la discontinuité de l'entropie étant de $0.443 R \ln 2$.

2) Adams, Schuberth, Haas et Bakalyar (1980) ont effectué des mesures de RMN continue sur l' ^3He solide produit dans une cellule Pomeranchuk, pour des champs inférieurs à 3 T. Au dessous de 420 mT, ils observent la raie de résonance antiferromagnétique correspondant au mode de haute fréquence décrit par Osheroff et al., moyennée à cause de la présence de plusieurs cristaux. Ils en concluent également que la structure magnétique ne peut pas être cubique.

Au dessus de 420 mT, ils observent un déplacement de la raie de résonance vers les hautes fréquences correspondant à un champ interne de l'ordre de celui que produirait un alignement total des spins suivant le champ.

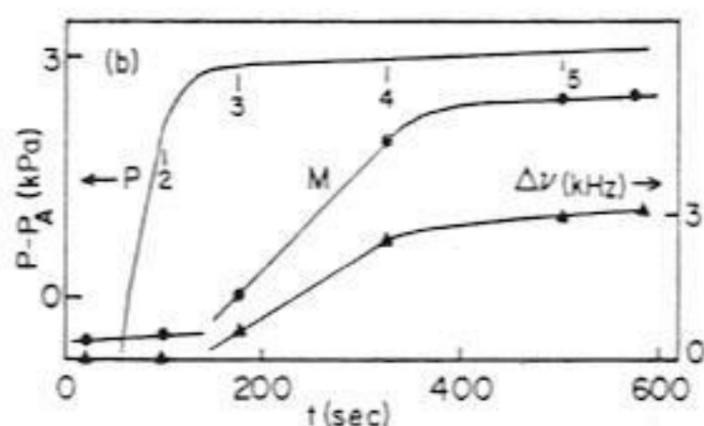


Fig. IV-42.

La figure IV-42 montre le comportement de la pression, de l'aimantation, et du décalage en fréquence, pour $B_0 = 1.67$ T : on constate une forte augmentation de $\frac{dM}{dt}$ et $\frac{d(\Delta\nu)}{dt}$ associée au plafonnement de la pression de fusion, en accord avec l'hypothèse d'une transition de phase vers un état de forte polarisation. Leurs mesures ne peuvent pas fournir une valeur absolue de l'aimantation, car ils ne peuvent observer qu'une partie du solide formé dans la cellule, mais confirment la forte aimantation du solide ordonné même à des champs relativement faibles (< 2 T).

En associant la discontinuité de $d(\Delta\nu) / dt$ à la transition, ils obtiennent le diagramme de phases de la figure IV-43.

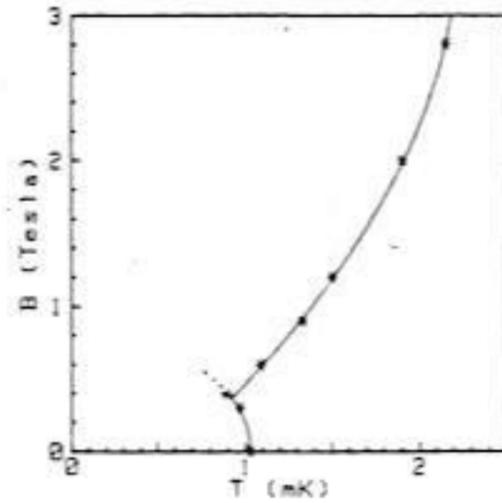


FIG. 4. Magnetic phase diagram as determined from this work and that of Kummer, Mueller, and Adams (Ref. 2) and of Schuberth, Bakalyar, and Adams (Ref. 12).

Fig. IV-43.

Ces résultats sont en excellent accord avec les nôtres ; en particulier, ils justifient notre interprétation de l'aplatissement de la courbe de fusion comme une transition de phase, et l'utilisation de P_{MAX} pour déterminer l'aimantation du solide ordonné.

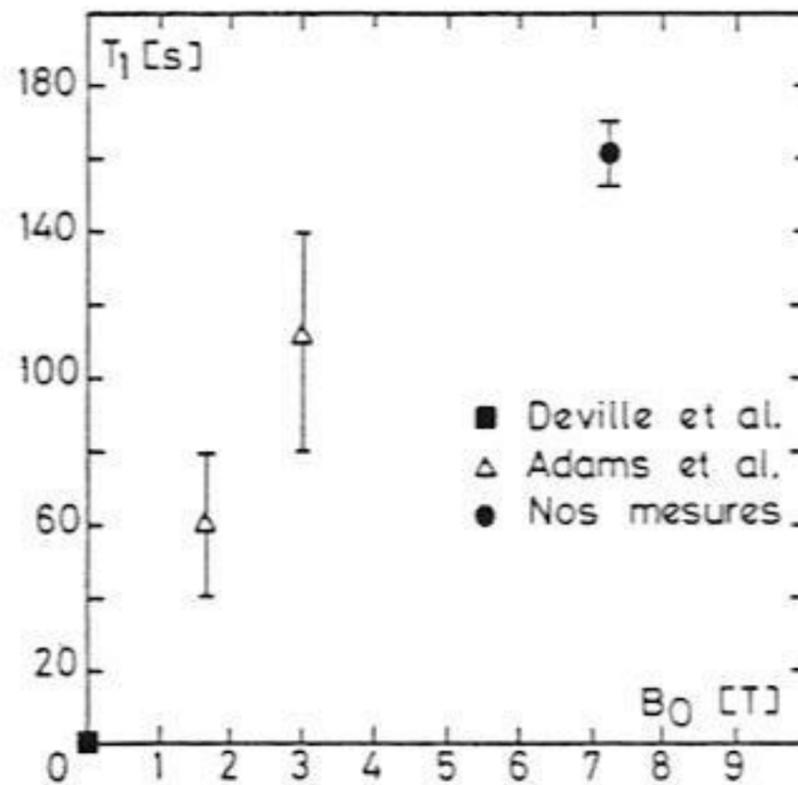


Fig. IV-44 : Temps de relaxation T_1 de l' ^3He solide sur la courbe de fusion.

Les valeurs de T_1 obtenues par ces auteurs sont comparables aux nôtres (figure IV-44) mais plus courtes que ceux que l'on mesure hors de la courbe de fusion (Schumacher et al. (1979)).

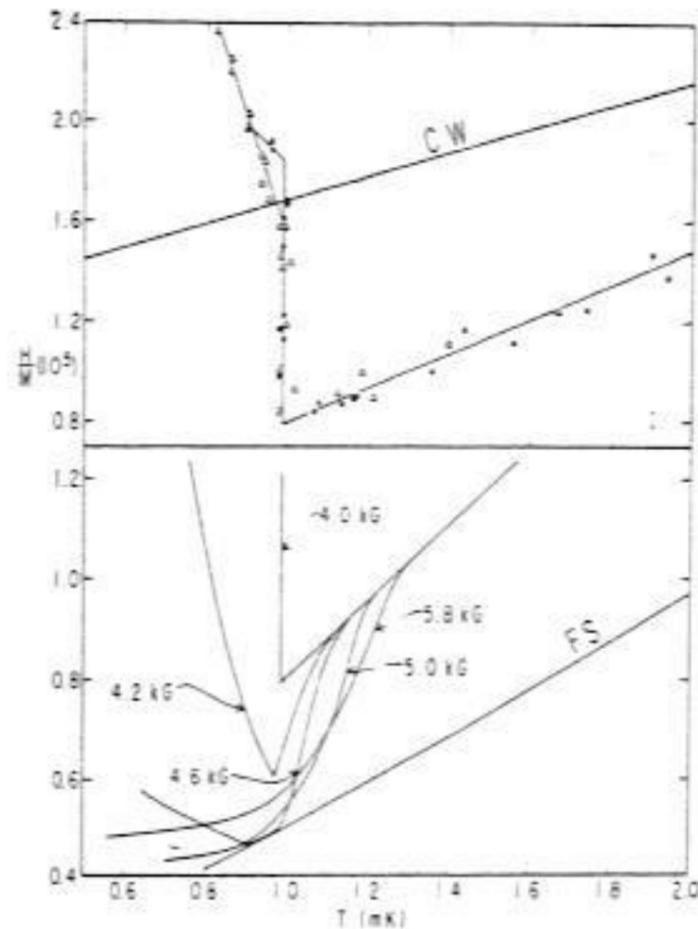
3) Prewitt et Goodkind (1980) ont mesuré l'aimantation du solide jusqu'à 0.85 T, pour un volume molaire proche de la courbe de fusion (24.2 cm^3).

Pour des champ inférieurs à 0.4 T, leurs mesures confirment la forte chute de l'aimantation au dessous de T_N , et les déviations ferromagnétiques par rapport à la loi de Curie au dessus de T_N .

Pour $B_0 = 0.46 \text{ T}$, ils observent une forte augmentation de l'aimantation, après une discontinuité de dM / dT , en accord avec l'hypothèse d'une transition de phase du deuxième ordre (figure IV-45).

Fig. IV-45.

The inverse effective susceptibility ($\chi_{eff}^{-1} = H/M$) for solid ^3He . Upper graph is for the fields (triangles) 4.0 kG and (circles) 0.8 kG. The line labeled CW is the Curie-Weiss $\chi_{eff}^{-1} = (T + \Theta)/C$ with Weiss temperature $\Theta = 2.5 \text{ mK}$ and Curie constant C . The lower graph (note the change in scales) is for fields 4.0–5.8 kG. Individual datum points have been omitted for clarity. Lines are free-hand fit to the data. The line labeled FS is χ_{eff}^{-1} for free spins at 5.0 kG with the ^3He moment and density.



Nous avons comparé les aimantations maximum qu'ils obtiennent à très basses températures à nos mesures directes de M / M_{SAT} à 7.2 T et les résultats déduits de nos pressions P_{MAX} entre 1 et 7.2 T. (figure IV-47), ainsi qu'aux prédictions du modèle d'échange multiple : il est clair que ces résultats sont d'accord sur l'existence d'une forte aimantation ($M / M_{SAT} \sim 0.6$) même à des champs faibles (1T).

FIG. 2. The ^3He magnetic phase diagram as obtained by (crosses) Kummer, Mueller, and Adams, and (circles) this work. Error bars for this work (omitted for fields above 4.0 kG) represent an estimate of the uncertainties due to possible sample molar volume variations from field to field.

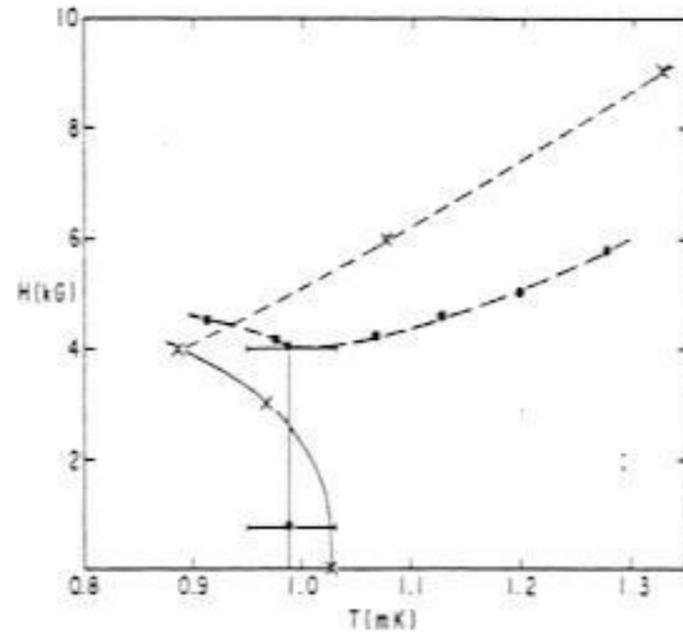


Fig. IV-46.

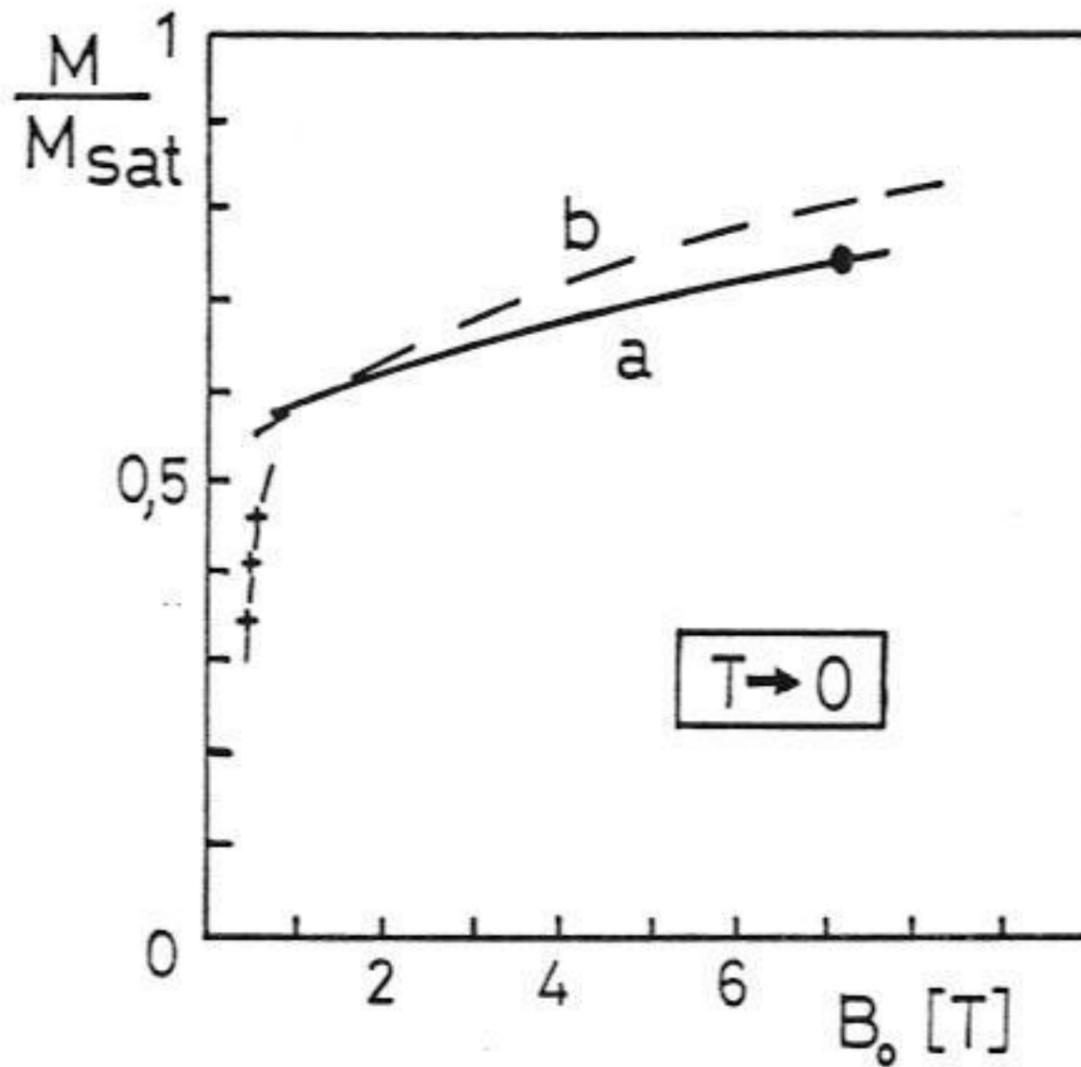
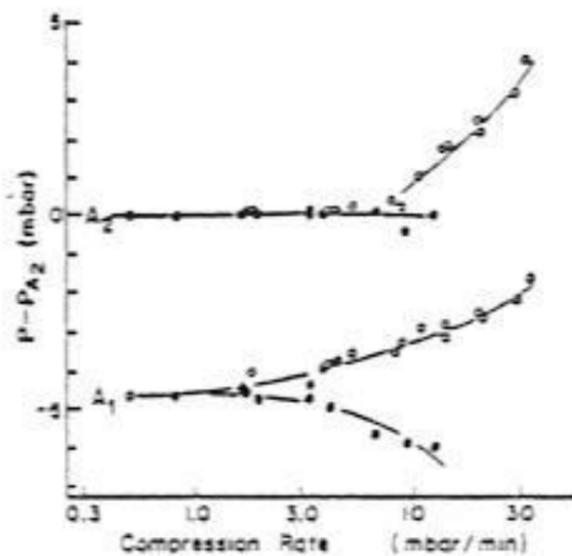
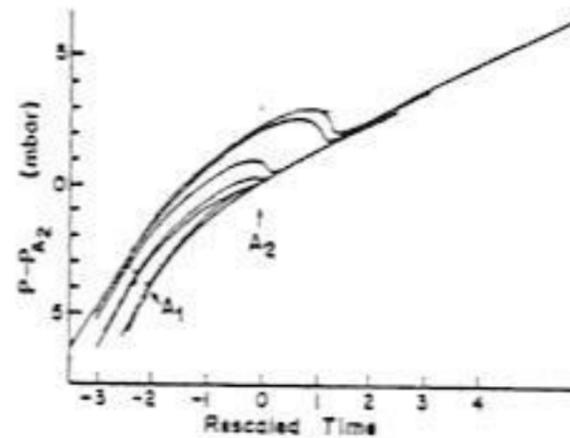


Fig. IV-47 : Courbe d'aimantation de ^3He solide :
 + : Prewitt et Goodkind (1980).
 ● : nos mesures d'aimantation à 7.2 T.
 a) nos résultats (analyse thermodynamique).
 b) théorie : échange multiple.

4) Yurke, Polturak, Sagan et Lee (1980) ont observé les transitions A_1 et A_2 à des champs $B_0 = 2.0$ et 2.5 T au moyen de mesures d'atténuation du son zéro. Des mesures systématiques en fonction de la vitesse de compression prouvent un décalage des pressions P_{A_1} et P_{A_2} , et par conséquent l'existence de courbes de fusion hors équilibre conduisant à l'observation du backstep (figure IV-48).



P_{A_1} and P_{A_2} at 2.5 T as a function of compression (o) and decompression (•) rate. Solid lines are a guide to the eye.



Pressure (relative to P_{A_2}) vs. normalized time traces for various compression rates at 2.5 T. The horizontal axis is proportional to temperature (details of the normalization procedure are given in the text). The arrows show the position of the A_1 and A_2 transitions for each trace. The compression rates used (top to bottom) were 5.89, 5.78, 3.16, 2.41, 1.49, 1.00, and 0.44 mbar/min, respectively, at pressures following the backstep.

Fig. IV-48.

Ces résultats sont de toute évidence en accord avec les nôtres. Ces auteurs ont également mesuré la différence $P_{A_2} - P_{A_1}$ pour $B_0 = 2.0$ et 2.5 T, et indiquent que $P_{A_2} - P_{A_1} = 180 B_0$ Pa/T, c-à-d $P_{A_2} - P_{A_1} = 360$ Pa, pour $B_0 = 2$ T, et 450 Pa pour $B_0 = 2.5$ T.

Nos mesures sont en excellent accord avec la valeur à 2.5 T (en fait ce point est situé exactement sur notre courbe $(P_{A_2} - P_{A_1}) (B_0)$ si l'on considère la valeur 470 Pa au lieu de 450 Pa, obtenue de leur graphe, figure IV-48).

La valeur 360 Pa à 2.0 T, par contre, est légèrement trop faible d'après nos mesures ; ceci pourrait expliquer le fait que leur dépendance de $P_{A_2} - P_{A_1}$ en B_0 soit décrite par le coefficient $180 B_0$, inférieur à toutes les valeurs mesurées jusqu'à présent (200, 208 (notre résultat), 220, 227 B_0 , cf. § IV-E-c).

IV - F - CONCLUSION

Les mesures que nous venons de discuter confirment nos résultats ainsi que leur interprétation. Le modèle d'échange multiple décrit correctement l'ensemble des expériences, alors que les autres théories en sont incapables. Nous pensons cependant qu'il est possible que les phénomènes physiques décrits par ces modèles existent, sans toutefois déterminer le comportement général, ou bien en s'inscrivant dans une description reliée à l'échange multiple.

Ainsi, la présence de lacunes de point zéro affecte les permutations des spins, et modifie les coefficients d'échange (Roger, thèse, 1980). Le couplage échange-réseau favorise le rapprochement de spins parallèles, et l'éloignement des spins de direction opposée, modifiant de ce fait les probabilités de permutation.

Les propriétés générales de l'³He solide semblent par conséquent avoir été comprises, aussi bien à l'équilibre thermodynamique que hors équilibre. Des mesures plus précises sont maintenant nécessaires pour permettre de nouveaux progrès à la théorie ; nous pensons qu'il est indispensable par exemple de réaliser les expériences suivantes :

- mesure directe de l'aimantation en fonction du champ et de la température, au dessous de la température d'ordre, pour $B_0 \gtrsim 1 \text{ T}$,

- détermination précise de la courbe de fusion en fonction du champ magnétique afin de vérifier la forte décroissance de l'entropie. (Nous avons essayé de mesurer directement l'entropie par la méthode de Halperin et al., mais les irréversibilités à fort champ rendent ce procédé peu fiable à fort champ.)

- Mesure des températures T_{A1} et T_{A2} en fonction du champ, afin de déceler d'éventuels écarts à la linéarité. Ces résultats auraient d'une part un intérêt considérable du point de vue technique (par l'usage thermométrique que nous avons proposé), mais également du point de vue de la physique de l'³He superfluide.

- Expériences de diffraction de neutrons, afin de déterminer les structures magnétiques de phases ordonnées : la phase UDD n'est que la plus simple parmi celles qui sont compatibles avec l'expérience d'Osheroff et al. (Roger et Delrieu ont suggéré des structures du type $UU \cdot UDD \cdot D$), et la phase "naf" avec deux sous-réseaux orthogonaux ayant la direction du champ magnétique pour bissectrice, n'est évidemment pas la seule à expliquer notre résultat à fort champ $M / MSAT \sim \sqrt{2} / 2$.

Ces expériences présentent plusieurs difficultés ; la section efficace de capture des neutrons par l'³He pose des problèmes de réfrigération, et la thermométrie à fort champ, très rudimentaire actuellement, devra être développée pour effectuer les autres mesures proposées.

D'autres voies sont ouvertes : les mesures en dehors de la courbe de fusion, en particulier, devraient être sensibles aux variations de l'échange avec le volume molaire. Delrieu et Roger ont suggéré, par exemple, d'observer les interactions ferromagnétiques dans l' ^3He solide hexagonal, dont le comportement devrait être dominé par l'échange triple.

Finalement, les problèmes d' ^3He adsorbé peuvent constituer une excellente épreuve pour les modèles d'échange, appliqués à 2 dimensions ; nos résultats dans ce domaine sont exposés dans le chapitre suivant.

CHAPITRE V

PROPRIETES DE L'³HE ADSORBE

V - A - INTRODUCTION

Nous avons étudié au cours des chapitres précédents les propriétés des phases solides et liquides de l'³He à trois dimensions. Au voisinage d'une surface ("substrat"), celles-ci sont fortement modifiées par l'existence d'une force attractive de van der Waals. Il est ainsi possible de restreindre les déplacements des atomes à deux dimensions lorsque le taux de couverture est inférieur à une couche atomique ("monocouche"), et de créer de nouveaux systèmes, fortement anisotropes, lorsque plusieurs couches sont adsorbées sur le substrat.

Nous décrirons en premier lieu les propriétés concernant la structure des couches adsorbées ; nous considérerons ensuite le magnétisme nucléaire de l'³He dans ces conditions.

Ces études sont très récentes, d'où le caractère spéculatif des théories et le nombre restreint des résultats expérimentaux.

V - B - PHYSISORPTION - STRUCTURE DES COUCHES ADSORBEES

a) Adsorption

L'attraction d'un atome par une surface est un phénomène général. On distingue habituellement la chimisorption de la physisorption. La première est caractérisée par la formation de liaisons fortes entre l'atome adsorbé et le substrat (énergies caractéristiques supérieures à 10^4 K / atome) ; elle dépend par conséquent très fortement de la nature des espèces chimiques considérées.

La physisorption correspond à des énergies de liaison de l'ordre de quelques

centaines de degrés Kelvin par atome, dues aux forces de van der Waals. Ces liaisons ne sont pas spécifiques, sont favorisées par un abaissement de la température, et permettent la formation de couches épaisses, contrairement à ce que l'on observe en chimisorption.

L'interaction des gaz rares avec une surface a lieu évidemment par physisorption ; nous n'étudierons donc que la physisorption de l'hélium par différents substrats. Une discussion plus détaillée est fournie par les ouvrages de Steele (1974), Fripiat, Chaussidon et Jelli (1971), et Dash (1975).

L'un des modèles les plus simples consiste à supposer l'interaction d'un atome isolé avec un substrat plan, cristallin et semi-infini, dont les propriétés de surface seraient les mêmes que dans le matériau massif (paramètre de réseau, symétrie, composition chimique). On suppose également que les forces sont décrites par un potentiel de Lennard-Jones, et additives.

Ainsi l'énergie totale sera :

$$U_{TOT}(r) = \sum_i U(r_i)$$

$$\text{où } U(r_i) = 4 \epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r_i}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_i}\right)^6 \right]$$

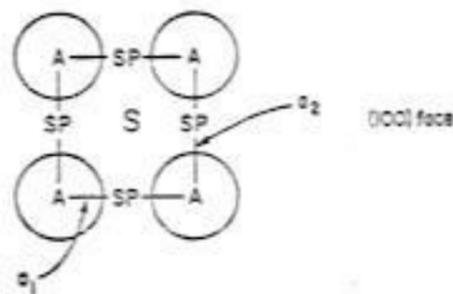
où r_i est la distance entre l'atome d'hélium et l'atome "i" du substrat, ϵ la profondeur du puits de potentiel, et σ la distance pour laquelle l'interaction entre l'atome d'hélium et un atome du substrat change de signe (cf. Chapitre IV - B).

Le potentiel résultant n'est pas simple ; en décrivant le solide comme un milieu continu à n atomes par unité de volume, on obtient le potentiel loin de la surface, en fonction de la distance Z perpendiculairement à la surface :

$$U(Z) = \frac{2\pi}{3} n \sigma^3 \epsilon \left[\frac{2}{15} \left(\frac{\sigma}{Z}\right)^9 - \left(\frac{\sigma}{Z}\right)^3 \right]$$

Au voisinage de la surface, la présence du réseau périodique fait apparaître des composantes périodiques du potentiel, représentées habituellement par une série de Fourier.

Ainsi, pour un substrat à réseau carré, on a des sites fortement attractifs (notés "S"), des sites peu attractifs ("A") ; le déplacement d'un atome entre deux sites S s'effectue en franchissant la barrière de potentiel en "selle à cheval" (points notés "SP") :



Ainsi, pour de l' ^4He sur la face (100) du Xe solide,

$$U_S = - 246 \text{ K}$$

$$U_{SP} = - 152 \text{ K}$$

$$U_A = - 98 \text{ K}$$

alors que sur le noir de carbone graphitisé (substrat "plan"),

$$U_S = - 252 \text{ K}$$

$$U_{SP} = - 235 \text{ K}$$

$$U_A = - 232 \text{ K}$$

Ces valeurs correspondent à l'énergie potentielle. Il faut également tenir compte de l'énergie cinétique T ; dans le cas de l'hélium, même à très basses températures, celle-ci n'est pas négligeable :

- à faible densité superficielle, on obtient un gaz de Fermi bidimensionnel, et les vitesses caractéristiques, de l'ordre de la vitesse de Fermi, sont importantes ($v_F \sim 50 \text{ m/s}$).

- lorsque la densité superficielle est élevée, on retrouve dans le solide bidimensionnel l'énergie de point zéro (cf. Chapitre IV-B).

Dans les deux cas, $T \gg |U_A - U_S|$ pour le graphite : les atomes d'hélium ne seront pas localisés sur ce substrat.

De plus, la position (distance à la surface) d'un atome sera plus grande que celle qui correspond au minimum de l'énergie potentielle (cf. Chapitre IV-B) ; ainsi, même si $U \sim - 250 \text{ K}$ pour l'hélium sur le graphite, l'énergie de liaison par atome, $|U + T|$, est $\sim 140 \text{ K}$ (^3He), et $\sim 145 \text{ K}$ (^4He).

L'adsorption préférentielle de l' ^4He est due à son énergie de point zéro plus faible (voir Thompson, 1978).

Il faut également tenir compte des interactions entre atomes d'hélium :

$\epsilon_{\text{He} - \text{He}} \sim 10 \text{ K / atome}$. Dans ce cas l'interaction avec le substrat ("verticale") est beaucoup plus importante que les interactions $\text{He} - \text{He}$ ("latérales"), ce qui favorisera

l'adsorption en couches uniformes.

Influence du substrat. Les substrats utilisés en laboratoire sont malheureusement très différents du cas idéal décrit précédemment.

En effet, le plupart des expériences requièrent une surface volumique importante (plusieurs m^2 / cm^3), problème qui est résolu actuellement de deux façons : soit par le recours à des poudres très fines (taille de grains $\leq 1000 \text{ \AA}$), soit par l'utilisation de matériaux exfoliés, dont nous donnerons une description plus détaillée par la suite.

Il se pose alors un problème fondamental, celui de l'homogénéité du substrat. Ainsi un matériau pulvérisé présentera de nombreuses faces cristallographiques, caractérisées par des énergies d'adsorption différentes, et les mesures sur ces systèmes ne fourniront qu'une information moyennée.

Les substrats peuvent être caractérisés aisément au moyen des isothermes d'adsorption de gaz rares, c-à-d la mesure de la pression du gaz en équilibre avec les couches adsorbées, à température constante, en fonction du nombre d'atomes de gaz, dans un volume donné.

Dans le cas d'un substrat uniforme, la pression reflète souvent la formation de couches successives ; cette méthode peut alors être utilisée afin de déterminer le nombre d'atomes correspondant à une monocouche pour un substrat et un gaz donnés. Un exemple de ce type de comportement est donné par l'isotherme du Kr sur le graphite exfolié (figure V-1).

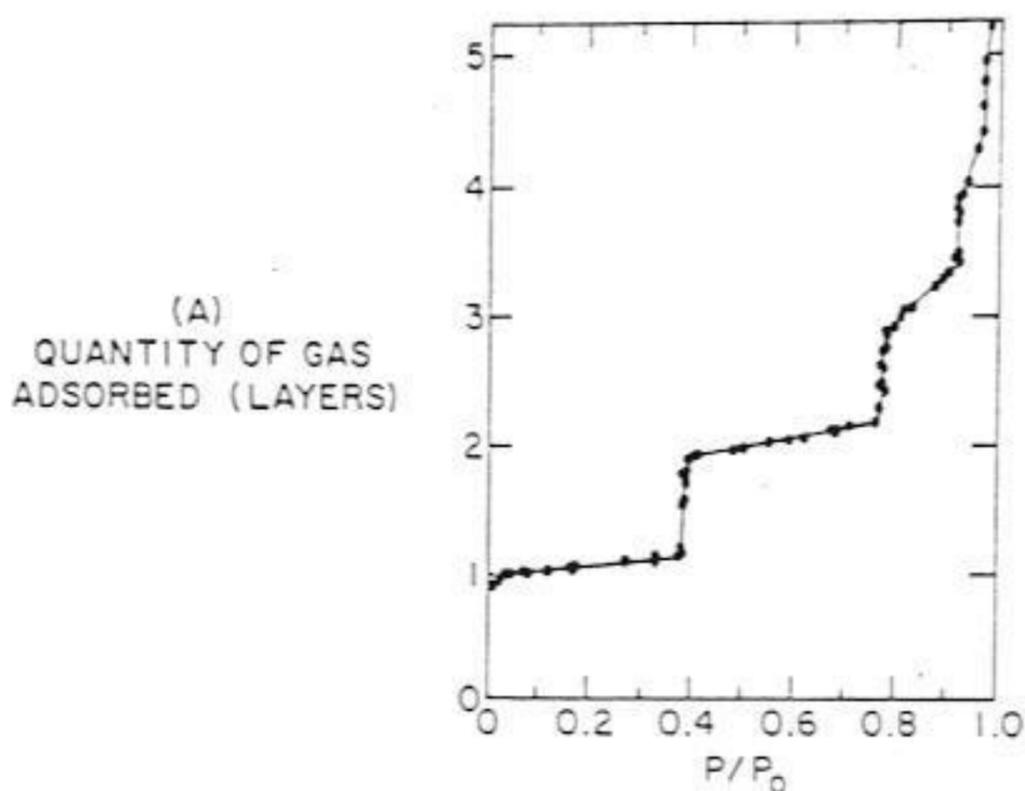


Fig. V-1 : Isotherme d'adsorption du Krypton sur le graphite exfolié.

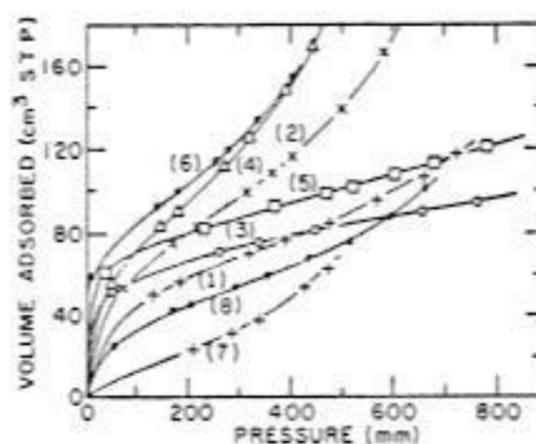


Fig. V-2 : isotherme d'adsorption sur un substrat hétérogène.

Dans le cas de substrats hétérogènes, on obtient des "courbes sigmoïdes" (figure V-2), que l'on décrit habituellement par l'équation de Brunauer, Emmett et Teller ("BET"), bien que le modèle physique sous-jacent ne corresponde pas à la réalité (Dash, 1975 et 1978).

Nous n'avons abordé jusqu'à présent que l'effet de l'hétérogénéité sur les isothermes. En fait, il faut également considérer les propriétés de nucléation de la phase tridimensionnelle à partir de la surface (nucléation hétérogène). Une analyse thermodynamique détaillée montre en effet que la croissance en couches décrite précédemment, et caractérisée par des isothermes à marches, n'est qu'un des 3 cas possibles dans la classification effectuée par Dash (1978) : la classe I. Dans ce cas la substance adsorbée "mouille" le substrat à toutes les pressions P , jusqu'à ce que la tension de vapeur saturante P_0 soit atteinte.

La classe II correspond aux cas où le mouillage est parfait (c-à-d la couche est uniforme) jusqu'à une pression critique $P_C < P_0$; la croissance se poursuit alors sous forme de gouttes de la phase massive.

Finalement, la classe III décrit les cas où il n'y a pas d'adsorption : la phase massive nucléée sous forme de gouttes, sans former de couches uniformes. Dans ce cas, l'isotherme ne présente pas de marches, la pression croît régulièrement jusqu'à P_0 .

Cette classification n'est pas absolue : un ensemble gaz-substrat peut changer de classe en fonction de la température. En particulier, tous les systèmes ont au moins une région de températures (pour $T >$ Température critique de la phase à 3 - D de l'adsorbant) où ils sont dans la classe I. Un système de classe III à basses températures deviendra classe II, puis I, à plus hautes températures.

Dans le cas de ^3He et ^4He sur du graphite, à $T \sim 1\text{ K}$, l'appartenance à la classe II semble établie ; il en est de même pour ^4He sur le mylar et sur MgO .

(Bienfait, Dash et Stoltenberg, 1980). L'épaisseur critique à partir de laquelle la phase 3-D se formerait est de l'ordre de 4 couches sur le graphite, 1.5 couches sur MgO, et entre 3 et 4 sur le mylar.

Substrats Expérimentaux

Nous avons discuté au cours des paragraphes précédents les problèmes reliés à l'inhomogénéité des substrats. Les premières expériences sur des films d'He adsorbé ont toutes été effectuées sur des substrats hétérogènes : poudre de Fe_2O_3 (rouge de joaillier), de TiO_2 , verre Vycor, noir de fumée, Zeolite (pores $\sim 13 \text{ \AA}$.)

Des progrès importants ont été réalisés grâce à l'utilisation de substrats plus homogènes : le carbone graphitisé, et les poudres comme FeCl_2 ou MgO, présentant des faces cristallines équivalentes.

Dans le cas du graphite, les liaisons sont très fortes dans les plans perpendiculaires à l'axe c du réseau hexagonal, et très faibles perpendiculairement à ces plans. Ainsi les plans de base sont très denses (distance interatomique = 1.42 \AA), et leur séparation importante (3.40 \AA).

La graphitisation de petites particules de carbone (traitement à haute température, $T > 1000^\circ\text{C}$) favorise l'apparition de plans de base, et par conséquent l'homogénéité de ces substrats.

Le graphite exfolié est probablement l'un des meilleurs substrats à surface spécifique importante dont on dispose actuellement. La préparation s'effectue en intercalant des chlorures de Fe, Co, Cu ou Al, puis en chauffant brutalement, ce qui produit l'exfoliation. Nous avons employé pour nos expériences un graphite exfolié commercial (Union Carbide Corporation) dénommé Grafoil (voir par exemple Dash, 1975).

Après traitement thermique, le grafoil est comprimé sous forme de feuilles, dont la densité est environ la moitié de celle du graphite massif. Sa surface spécifique est de $20 \text{ m}^2 / \text{g}$. Les plans de base sont orientés préférentiellement parallèlement à la feuille, avec une distribution angulaire d'environ 30° . Les plans de base ont des dimensions de l'ordre de 100 \AA , et les cavités $\sim 500 \text{ \AA}$.

Les mesures aux neutrons exigent souvent une meilleure orientation des cristaux de carbone ; on a alors recours à une autre variété de graphite exfolié, le ZYX. Sa surface spécifique est faible ($\sim 2 \text{ m}^2 / \text{g}$), mais l'orientation des cristaux est meilleure, et la longueur de cohérence supérieure à 300 \AA .

b) Structure des couches d'hélium adsorbées sur le graphite.

Le diagramme de phases de 1^4He sur du graphite pour des taux de couverture inférieurs à une monocouche est représenté sur la figure V-3.

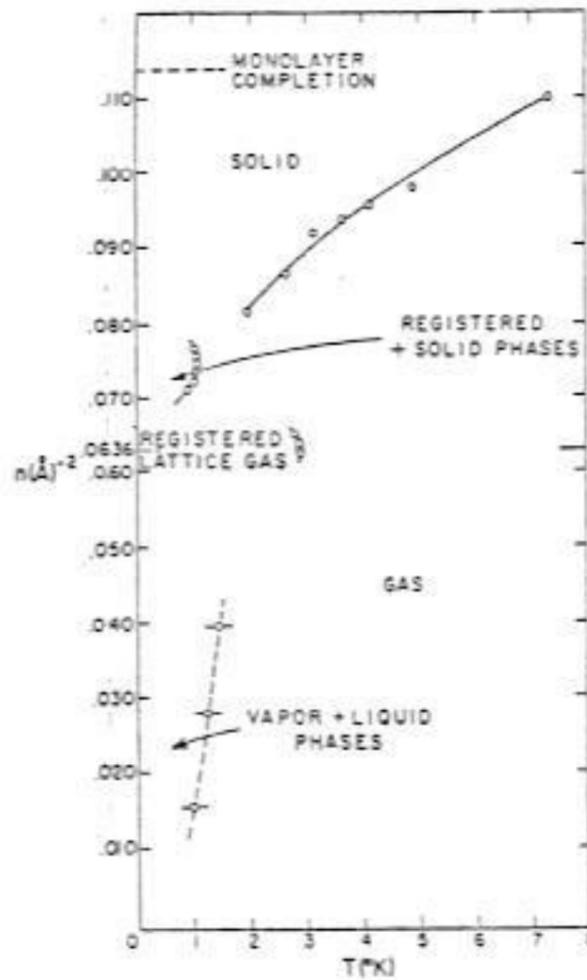
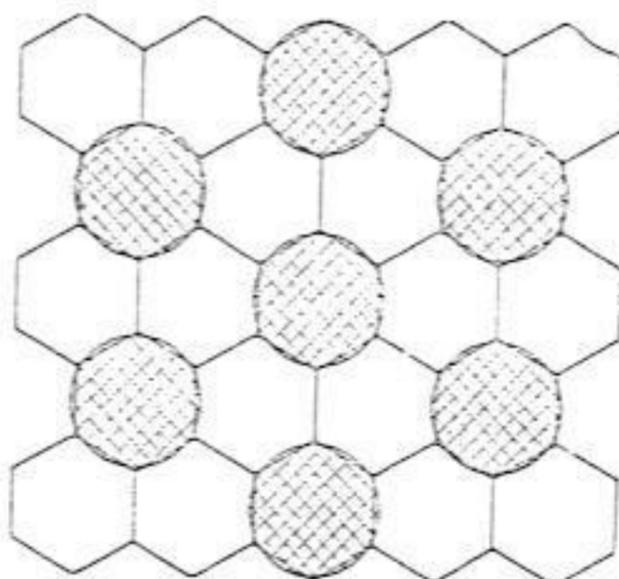


Fig. V-3 : Diagramme de phases ; 1^{ère} couche de ^4He / Graphite.

La densité superficielle (nombre d'atomes / \AA^2) correspondant à chaque transition est portée en fonction de la température. Ces mesures sont effectuées à surface constante ; en obtient par conséquent des régions de coexistence de phases différentes. De plus, seule la région hautes températures ($T > 1\text{ K}$) du diagramme de phases a été explorée. A basses densités et hautes températures, on observe un gaz bidimensionnel, à fort caractère quantique (statistique de Bose-Einstein). A plus basses températures, les mesures de capacité calorifique mettent en évidence la coexistence de liquide et de gaz 2-D. Une transition d'un type particulier a lieu à $T \approx 3\text{ K}$ pour $n = 0.0637\text{ \AA}^{-2}$; les atomes d' ^4He adoptent alors une structure ordonnée spatialement, commensurable avec le réseau du graphite ("phase registradae $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ "), représentée sur la figure V-4.

A forte densité, et basse température, on obtient une phase solide bidimensionnelle, non commensurable avec le réseau du graphite. La capacité calorifique varie en T^2 , en accord avec un modèle de solide de Debye à 2-D (Bretz et al. 1973).

Fig. V-4 : Phase registradae.



Des mesures de diffraction de neutrons r v lent une structure triangulaire ; la densit  correspondant   une monocouche compl te est $n_1 = 0.113 \text{ atomes} / \text{ }^2$. (Carneiro et al. 1976). La temp rature de fusion de couche compl te est d'environ 9 K.

Le probl me de la fusion   2-D a  t   tudi  th oriquement en particulier par Kosterlitz et Thouless (1975) et Feynman (non publi ) ; un effort de recherche important porte actuellement sur ce sujet.

Finalement, le diagramme de phases pr sente une r gion interpr t e par Dash (1978) comme une coexistence de phases solides et registr es.

Lorsqu'on augmente le taux de couverture au del  d'une monocouche compl te, on observe deux effets distincts : d'une part l' tablissement d'une deuxi me couche, et d'autre part une l g re augmentation de la densit  de la premi re couche. (Lauter et al. 1980 ; Carneiro et al., non publi ).

La deuxi me couche de 1^4He pr sente un comportement similaire   celui de la premi re, mais on n'a pas observ  de phase registr e. La phase solide a une structure triangulaire, et la distance entre premiers voisins lorsque la couche est compl te est de 3.59   (alors qu'on obtient 3.16   en premi re couche).

Il est probable que la deuxi me couche solide soit commensurable avec la premi re, (Lauter, communication priv e).

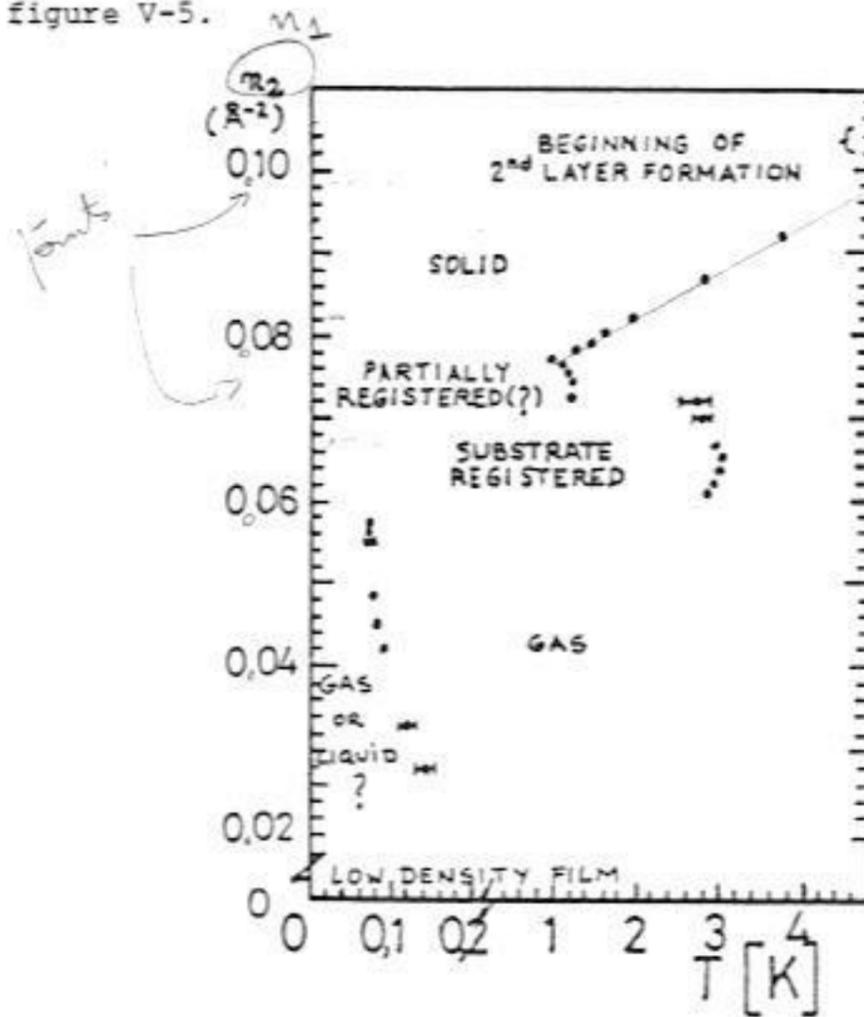
On n'observe pas de phase solide au del  de la deuxi me couche pour 1^4He sur le graphite.

1^3He adsorb  sur le graphite a un comportement similaire en premi re couche : on observe les transitions gaz-liquide, gaz-solide, ainsi que le phase registr e et probablement le domaine de coexistence solide-phase registr e. La densit  de la monocouche compl te (non registr e) est $0.112 \text{ atomes} / \text{ }^2$.

A basse densit  on observe un comportement de liquide de Fermi   2-D.

Le diagramme de phases de la première couche obtenu par Van Sciver et Vilches (1980) est représenté sur la figure V-5.

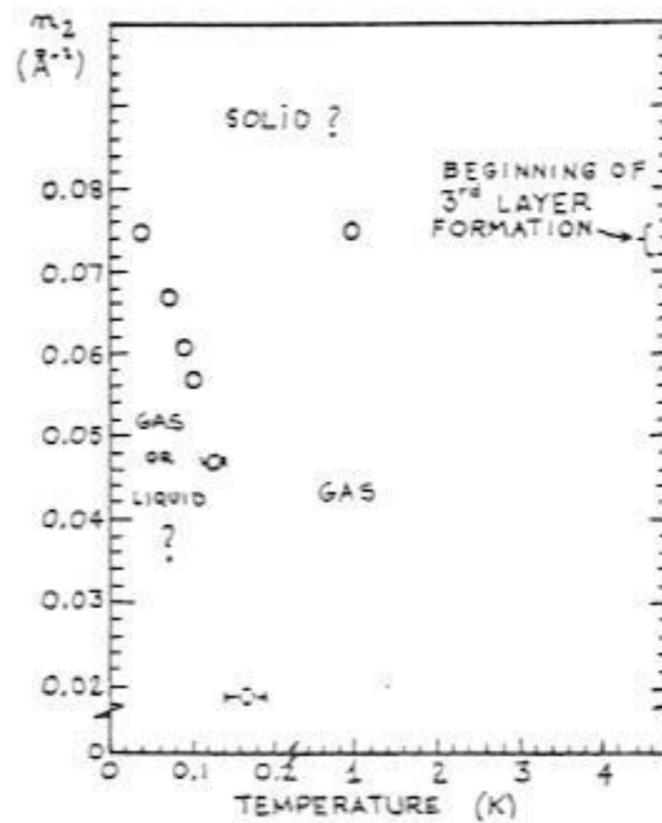
Fig. V-5 : 1^e couche de ^3He / graphite.



La région basses températures du diagramme de phases est relativement mal connue.

La deuxième couche ne présente pas de phase enregistrée ; on observe par conséquent un comportement de liquide de Fermi jusqu'à des densités élevées.

Fig. V-6 : 2^e couche de ^3He / graphite.



Van Sciver et Vilches signalent que leurs mesures de capacité calorifique de 1^3He sur du graphite pourraient s'interpréter en supposant que la deuxième couche devient solide (avec une température de fusion $\sim 1\text{ K}$) lorsqu'elle est recouverte par un faible nombre d'atomes en troisième couche. Nous reviendrons sur ce point, qui est en désaccord avec nos mesures.

Leur diagramme de phases de la deuxième couche est représenté sur la figure V-6.

A partir de la 2^e couche, la croissance s'effectuerait sous forme de gouttes de la phase liquide 3-D (Van Sciver, 1978).

c) Nucléation de solide à partir du substrat.

Dans le cas où le substrat est placé dans de l'hélium liquide, celui-ci pouvant être sous pression, il est parfois possible de nucléer la phase solide à partir du solide bidimensionnel adsorbé.

L'observation peut être soit directe, au moyen de neutrons, soit indirecte, en observant la dépression de la courbe de fusion pour de l'hélium en contact avec une surface importante bien caractérisée.

Quelques expériences ont été effectuées à Sussex sur du verre Vycor, à Haifa sur du grafoil et du MgO, à Paris sur du grafoil, et à Grenoble et à Mayence sur du grafoil et du MgO. Les résultats peuvent être décrits schématiquement ; sur de substrats homogènes :

^4He / Grafoil : - la phase hexagonale nucléée de façon continue.
- la phase cubique centrée ne nucléée pas.

^3He / Grafoil : - la phase cubique ne nucléée pas.
- il n'existe pas de mesures dans la phase hexagonale.

^4He / MgO : - la phase hexagonale ne nucléée pas.
- la phase cubique ne nucléée pas.

^3He / MgO : - la phase cubique nucléée.

(Références : Lauter, Stühn, Tiby, Wiechert ; à paraître ; Balibar et Castaing (1980) ; Landau et al. (1980) ; Eckstein, Landau, Lipson et Olami (1980)).

D'après le groupe de Haifa, la symétrie du substrat détermine la nucléation : les phases hexagonales nucléent sur le graphite, alors que la phase cubique de 1^3He nu-

clée sur le réseau cubique de MgO. (Dans le cas de l' ^4He cubique, l'absence de nucléation serait due à la faible région du diagramme occupée par cette phase).

Nous avons proposé, avec H. Lauter, un mécanisme différent : la nucléation est déterminée par la structure de la dernière couche solide adsorbée, à pression nulle. Les couches solides étant triangulaires dans le cas de l'hélium sur le graphite, la croissance de la phase hexagonale est favorisée. Des expériences sur la deuxième couche de ^4He et ^3He sur MgO seront prochainement effectuées afin de mettre cette hypothèse à l'épreuve. Elles sont devenues indispensables pour établir le lien entre les expériences à faible taux de couverture (≤ 1 monocouche) et celles qui impliquent un substrat plongé dans l'hélium liquide.

V - C - MAGNETISME NUCLEAIRE A DEUX DIMENSIONS

Nous étudierons dans ce paragraphe les résultats concernant le magnétisme nucléaire des couches d' ^3He adsorbées, obtenus par des techniques de résonance magnétique nucléaire (cf. III-C).

a) RMN des couches adsorbées.

Les premières études (Santini et al. 1963 ; Monod et Cowan, 1967 ; Brewer, 1970)... ont été effectuées sur des substrats inhomogènes, et leur interprétation est difficile. Des expériences récentes sur du grafoil ont permis de mettre en évidence quelques propriétés simples concernant la susceptibilité magnétique et les temps de relaxation T_1 et T_2 des couches adsorbées, dans le cas de faibles taux de couverture x ($x = 1$ correspond à une monocouche).

Hedge et Daunt (1978) ont montré que pour $x < 0.4$ on observe une forte mobilité des atomes adsorbés, la susceptibilité étant celle d'un liquide de Fermi à 2-D. (Voir également Owers-Bradley et al. 1978, Havens-Sacco et Widom, 1980, et Siddon et Schick, 1974).

Pour des taux de couverture $0.9 < x < 1$ (au voisinage d'une monocouche) et pour $0.35 < T < 4.21$ K, ils observent un comportement de solide 2-D, avec des fréquences d'échange comprises entre 10^4 et 10^7 Hz, de l'ordre de celles de l' ^3He massif pour le même paramètre de réseau. La largeur de raie ($\sim 30 \mu\text{T}$) est alors nettement inférieure à la valeur calculée pour un réseau rigide (~ 1.6 G). Ces résultats, ainsi que les nôtres, contredisent ceux de Rollefson (1972), souvent cités pour démontrer la fusion de la première couche de l' ^3He .

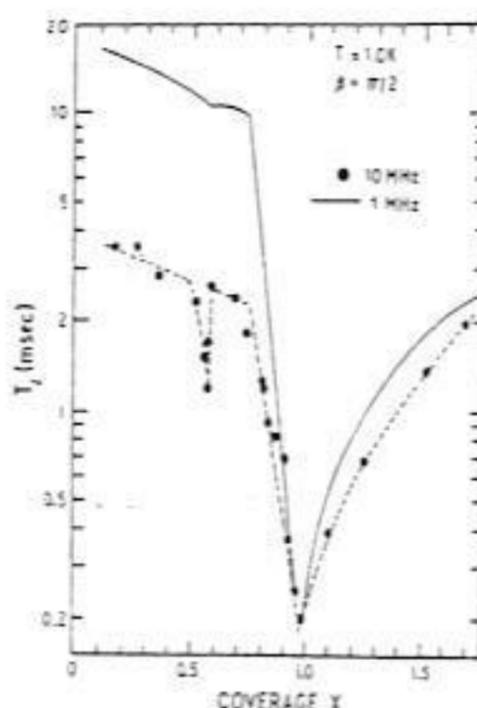
La fusion de la monocouche est graduelle, contrairement à celle de l' ^3He à 3-D

(Sato et Sugawara, 1978).

Pour des taux de couverture $0.55 < x < 0.80$, et $0.35 < T < 4.21\text{K}$, la susceptibilité ne montre pas de déviations par rapport à la loi de Curie. Ceci n'est pas surprenant à hautes températures ($T \gg 1\text{K}$), où les effets quantiques sont négligeables. Les mesures à plus basses températures seraient en accord avec l'hypothèse de Dash (1980) de coexistence de phases solides et registrées, plutôt que solide-fluide.

Des mesures de RMN pulsée très précises ont été effectuées sur du grafoil par Cowan et al. (1977), Owers-Bradley et al. (1978) ; des articles de revue à ce sujet ont été publiés par Richards (1978, 1980).

Fig. V-7 :
1^e couche de
³He / graphite
mesure de T_2



La figure V-7 représente leurs résultats de T_2 en fonction du taux de couverture. On remarque la réduction de T_2 (donc l'augmentation de la largeur de raie) aussi bien pour $x = 1$ que pour $x \approx 0.6$ (monocouche et phase registrée). L'effet est moins important dans ce dernier cas, ce qui explique qu'il n'ait pas été aperçu par Hedge et Daunt.

Ces mesures, effectuées dans une large gamme en x et T , confirment les mesures de capacité calorifique citées précédemment.

La situation expérimentale devient beaucoup moins claire lorsque le taux de couverture dépasse une monocouche. Pour un nombre d'atomes en deuxième couche faible, certaines mesures impliquent un échange important entre la première et la deuxième couche, caractérisé par le paramètre J_{12} . La remontée de T_2 pour $x > 1$ (voir figure V-7) illustre ce comportement. Mullin et Landesman (1980) ont analysé ces résultats en tenant compte du ralentissement de l'échange dû au mouvement de translation des atomes en 2^e couche. Cet effet similaire à un rétrécissement par échange, fournit une constante

d'échange effective $\tilde{J}_{12} \approx J_{12}^2 / \pi \omega^2$, où $\pi \omega^2 \approx 1 \text{ K}$, est une énergie caractéristique de translation, de sorte que $\tilde{J}_{12} \ll J_{12}$.

En fait, il semblerait (Richards, communication privée, Sato et Sugawara, non publié) que le signal de RMN pulsée présente une décroissance non exponentielle, séparable en une réponse rapide, caractéristique de la première couche solide, et d'une réponse lente, attribuée au liquide. Dans ce cas, les couches seraient découplées, contredisant les modèles d'échange inter-couches.

Ces faits expérimentaux exigent une vérification ; à hautes températures, des effets de désorption peuvent altérer les résultats (Sato et Sugawara, non publié). D'autre part, la partie du signal à court T_2 est difficile à observer en RMN pulsée, à cause du temps de recouvrement des amplificateurs après l'impulsion RF. Ce sujet sera discuté en détail ultérieurement.

Lorsque l'on atteint un taux de couverture de plus de 2 couches, même la structure de la deuxième couche est mal connue (cf. V-B-b).

Les mesures de capacité calorifique de Van Sciver et Vilches (1978) suggèrent qu'elle serait solide, mais ceci est en contradiction avec nos résultats de RMN sur du grafoil plongé dans l' ^3He liquide, et les mesures aux neutrons avec $x \gtrsim 2$ couches.

Il n'existe pas encore de mesures RMN à très basses températures ($T \ll 300 \text{ mK}$) pour $x \approx 2$. En fait la plupart des mesures pour $x \sim 1$ que nous avons décrites précédemment ont été effectuées après les nôtres, datant de 1977, et la situation théorique et expérimentale était alors beaucoup plus confuse qu'aujourd'hui.

b) RMN de l' ^3He lorsque le substrat est plongé dans l' ^3He liquide.

De nombreuses expériences ont mis en évidence l'effet des parois sur la relaxation magnétique (T_1) de l' ^3He liquide en milieux confinés, sur différents substrats : zéolite (Monod et Cowan, 1967), particules de carbone de 90 \AA (Kelly et Richardson, 1974, Ahonen et al. 1977) Vycor (Creswell et al. 1972), Mylar (Ahonen et al. 1976), etc.

Dans l' ^3He liquide massif, T_1 est dû à la modulation de l'interaction dipolaire par le mouvement de diffusion des atomes, et dépend par conséquent du coefficient de diffusion D_0 . Le coefficient de diffusion de spin D est en pratique égal à D_0 : Garwin et Reich (1959) ont montré que les interactions spin - spin ne contribuent que de l'ordre de $3 \times 10^{-12} \text{ cm}^2/\text{s}$ à la diffusion de spin totale, $D \gtrsim 6 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$.

D'après la théorie de Bloembergen, Purcell et Pound (BPP, 1948) le temps de relaxation T_1 est relié à D par la formule :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{2\pi}{5} \frac{n \gamma^4 \hbar^2}{d D}$$

n étant le nombre de spins par unité de volume, γ le rapport gyromagnétique de l' ^3He , et d la distance minimum d'approche (diamètre atomique).

Expérimentalement cette formule reste approximativement valable même au-dessous de la température de Fermi du liquide (Schumacher et al. 1979, Godfrin et al. 1980) : le T_1 intrinsèque varie alors de la même façon que D , en T^{-2} , et dépasse 10^3 s au-dessous de 100 mK. (Ipatova et Eliashberg, 1962)

Dans le cas d'une géométrie confinée, les parois fournissent une source de relaxation supplémentaire. Low et Rorschach (1960) ont analysé leurs mesures de T_1^{-1} sous la forme d'une somme d'une relaxation intrinsèque $T_{1b}^{-1} = C_1 \rho / D$, et d'une relaxation en surface, $T_{1w}^{-1} = C_2 D$, c-à-d $T_1^{-1} = C_1 \rho / D + C_2 D$ (ρ étant la densité du liquide).

Dans ce modèle, on suppose que les centres de relaxation (par exemple des impuretés paramagnétiques électroniques) sont localisés sur les parois ; les spins doivent diffuser vers les parois, où ils sont immédiatement relaxés. Pour une sphère de rayon R , le temps de diffusion est donné par l'expression $\tau_D = R^2 / \pi^2 D$; ainsi $C_2 = (\pi / R)^2$. Pour $R \sim 1$ mm, et $D \sim 10^{-4}$ cm² s⁻¹, $\tau_D \sim 10$ s, et domine par conséquent la relaxation : $T_1 \sim \tau_D$.

La figure V-8 montre clairement les effets de la relaxation de surface sur les T_1 mesurés, comparés aux T_1 intrinsèques.

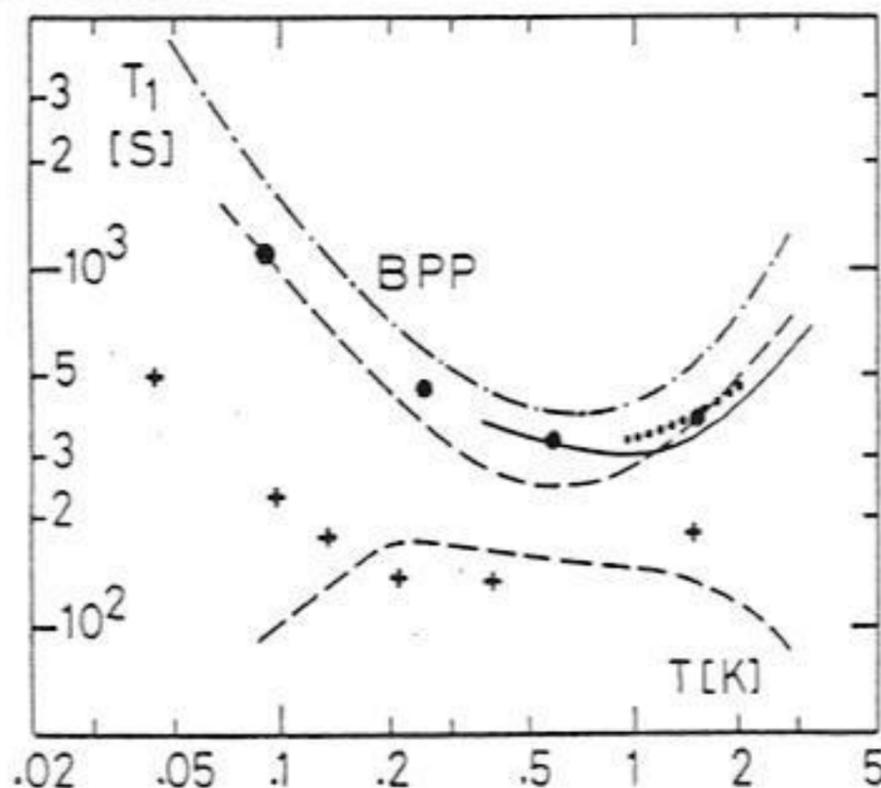


Fig. V-8 : T_1 de l' ^3He liquide : --- théorie BPP ; ... Horwitz (1970) ; --- Béal et Hatton (1965) bas : mesures ; haut : mesures corrigées ; (●) Schumacher et al (1979) et Godfrin et al. (1980) à tension de vapeur saturante, et(+), à $P = 2.2$ MPa.

La séparation des contributions intrinsèque et de surface s'effectue habituellement en portant $(DT_1^{-1})^{-1}$ en fonction de D^{-2} , puisque $(DT_1)^{-1} = C_1 \rho D^{-2} + C_2$.

L'analyse des mesures effectuées à Grenoble dans une cellule remplie de fils de cuivre (dimension caractéristique pour l' ^3He liquide ~ 0.6 mm) montre que l'on obtient les T_1 intrinsèques, bien que le temps de diffusion τ_D soit de l'ordre de quelques secondes (soit $\tau_D \ll T_1$). (Voir Schumacher et al. 1979 ; Godfrin et al. 1980).

D'autres expériences (Careri et al. 1959) ont montré une forte influence des surfaces, pour les mêmes dimensions caractéristiques.

Il est donc clair que le temps de diffusion à la surface n'est pas le seul paramètre important : il faut également tenir compte de la probabilité de relaxation à la surface ; si celle-ci est faible, $T_1 > \tau_D$.

Dans le cas des géométries confinées que nous étudions, les dimensions caractéristiques des pores où se trouve l' ^3He liquide sont dans la gamme $50 \text{ \AA} - 1 \mu$. Les valeurs expérimentales de T_1 varient entre 10^{-3} et 1 s : le temps de diffusion est alors inférieur à T_1 de plusieurs ordres de grandeur.

Ainsi, contrairement à une idée très répandue, T_1 n'est pas limité par la diffusion dans ces expériences. L'effet de quelques couches d' ^4He , adsorbées préférentiellement par le substrat, a été mis en évidence par Kelly et Richardson (1974) : T_1 et T_2 sont fortement augmentés ; les atomes d' ^3He sont écartés de la surface, et la probabilité de relaxation diminue en conséquence.

Les mesures de RMN permettent également de mesurer la susceptibilité de l' ^3He confiné. Ahonen et al. (1976 et 1977) ont observé récemment que celle-ci est fortement augmentée par rapport à la valeur constante du liquide de Fermi lorsque celui-ci est en contact avec des feuilles de mylar ou de particules de carbone de 90 \AA . L'excès de susceptibilité, qui n'apparaît qu'à des températures de l'ordre de quelques millikelvins, peut être décrit par une loi de Curie-Weiss, et est attribué aux couches en surface. Ainsi, $\chi = \frac{A}{T - \theta} + B$, θ étant positif dans le mylar ($\theta \sim 0.5 \text{ mK}$) et dans les particules de carbone ($\theta \sim 0.8 \text{ mK}$).

Le nombre de "couches" (c-à-d d'atomes) impliqués par le terme en Curie-Weiss est un point particulièrement important. Les mesures citées précédemment indiquent que celui-ci serait de l'ordre de 5 couches sur le mylar, et de 1 à 2 couches sur les particules de carbone (1 couche à $P \sim 0.6 \text{ MPa}$, et 2 lorsque $P \sim 2.8 \text{ MPa}$).

D'après notre discussion sur la structure des couches adsorbées, il est clair que le nombre de couches solides est au maximum de l'ordre de 2 ; les résultats sur le

mylar, au moins, tendent à prouver qu'en plus de la contribution des couches solides, dont on attend une contribution de Curie-Weiss, il existe un fort magnétisme dans le liquide.

Les mesures sur le carbone montrent en outre que τ_2^H (c-à-d la largeur de raie) varie avec la température, et ce fait est attribué à la présence d'une composante courte, qui serait due au solide, et d'une composante longue, due au liquide, celles-ci dépendant fortement du champ magnétique appliqué (28 mT).

Les mesures sur le mylar, réanalysées après ces constatations, conduisent à un nombre encore plus important de couches responsables du comportement Curie-Weiss.

Nous avons effectué des mesures similaires, sur un substrat homogène : le grafoil, bien caractérisé du point de vue de la physique des surfaces (voir § V-B). Nous avons également effectué des mesures sur l' ^3He liquide confiné dans de la poudre d'alumine de 400 \AA , et de platine de l'ordre de 8μ . Les échantillons sont situés dans des bobines de RMN (128 spires sur une longueur de 5 mm, bobinées sur un mandrin plastique, diamètre intérieur 4 mm, extérieur 5 mm). Le grafoil a un poids de 60.6 mg, et une surface de 1.1 m^2 (d'après les mesures de BET effectuées à Grenoble, la surface spécifique de notre échantillon est de $18 \pm 1 \text{ m}^2/\text{g}$, proche de la valeur $20 \text{ m}^2/\text{g}$ utilisée habituellement).

L'alumine a un poids de 39.3 mg, et une surface de 4.1 m^2 (surface spécifique, $103.5 \text{ m}^2/\text{g}$, obtenue à Grenoble par BET).

La poudre de platine, utilisée principalement pour la thermométrie, a une surface très faible à cause de la taille relativement importante des particules. On n'observe pas dans celle-ci la contribution de surface à la susceptibilité, négligeable devant celle du liquide 3-D.

Les bobines sont situées dans une cellule en Araldite, destinée à contenir l' ^3He . Un échangeur en poudre d'argent frittée de 400 \AA permet de thermaliser la cellule à la température du réfrigérateur à dilution ; la cellule est plongée dans la boîte à mélange du réfrigérateur (cf. § II-B). La surface de l'argent fritté à l'intérieur de la cellule est de l'ordre de 2.5 m^2 . Des échangeurs thermiques en poudre d'argent frittée situés sur le capillaire d'arrivée d' ^3He à la cellule ont une surface totale inférieure à 0.2 m^2 .

Les mesures de susceptibilité ont été effectuées en RMN continue au moyen du Q - mètre "Q-1" (cf. § III-C), à 757 et 923.2 kHz, correspondant à des champs magnétiques de 23.3 et 28.5 mT. La susceptibilité est obtenue en unités arbitraires par intégration graphique (à l'aide d'un planimètre) du signal d'absorption. Les amplitudes de signal sont normalisées à une fraction de la porteuse RF grâce à un étalon d'absorption (cf. § III-C). La largeur du signal est exprimée en unités de tension du générateur pilo-

tant le balayage du champ magnétique, et peut être étalonné en unités de champ (T) en observant la résonance de diverses espèces chimiques situées dans les bobines (^3He , Pt, Cu, etc...).

Les mesures de T_1 sont effectuées à 250 KHz (7.7 mT), à l'aide d'un système de RMN pulsé commercial (IT Bridge) destiné en principe à la thermométrie par RMN du platine (cf. § III-C).

La température est fournie par la loi de Curie du platine mesurée par RMN pulsée et continue. La constante de Curie est déterminée par étalonnage avec une inductance mutuelle de CMN au dessus de 10 mK. (Voir chapitre III, "Thermométrie"). Le domaine de températures utilisé s'étend de 2.6 mK à 300 mK.

La cellule est remplie, à $T = 1$ K, d' ^3He pur (< 100 ppm d' ^4He) à la tension de vapeur saturante ($P \sim 0$ en pratique). Nous avons ajouté dans la deuxième série d'expériences, ~ 0.3 % d' ^4He (la cellule étant à très basses températures). Cette quantité correspond à 2.75 couches d' ^4He supposées uniformément réparties sur toutes les surfaces dans la cellule, en considérant une densité superficielle de 10^{19} atomes / m² par monocouche (Daunt, 1973).

MESURES de SUSCEPTIBILITE

Nos mesures de susceptibilité sont très bien décrites par la loi $\chi = \frac{A}{T - \theta} + B$, aux deux valeurs de champ magnétique, et pour tous les substrats employés. Dans le Grafoil et l'Alumine, le terme $A / (T - \theta)$ devient important devant B au-dessous de 10 mK ; dans le platine, même à 2.6 mK, la contribution Curie-Weiss est négligeable.

Les figures 9 et 10 représentent nos résultats de ^3He / Grafoil à 757 KHz, et ^3He / Al_2O_3 à 923.2 KHz. L'addition d' ^4He réduit dramatiquement le terme de Curie-Weiss : celui-ci disparaît pratiquement sur le grafoil, où il est réduit de 98 % : cette valeur est de ~ 70 % pour ^3He / Al_2O_3 quelques heures après avoir ajouté l' ^4He , et évolue vers une valeur "stable" de 80 % après une heure. Un effet similaire a été observé sur le grafoil. Nous n'avons pas effectué de recuit des couches adsorbées à hautes températures ($T > 4$ K).

Afin de déterminer les coefficients A, B, et θ , nous avons porté le produit χT en fonction de T (figures V-11 et V-12).

Un dépouillement par moindres carrés à l'ordinateur fournit les valeurs suivantes :

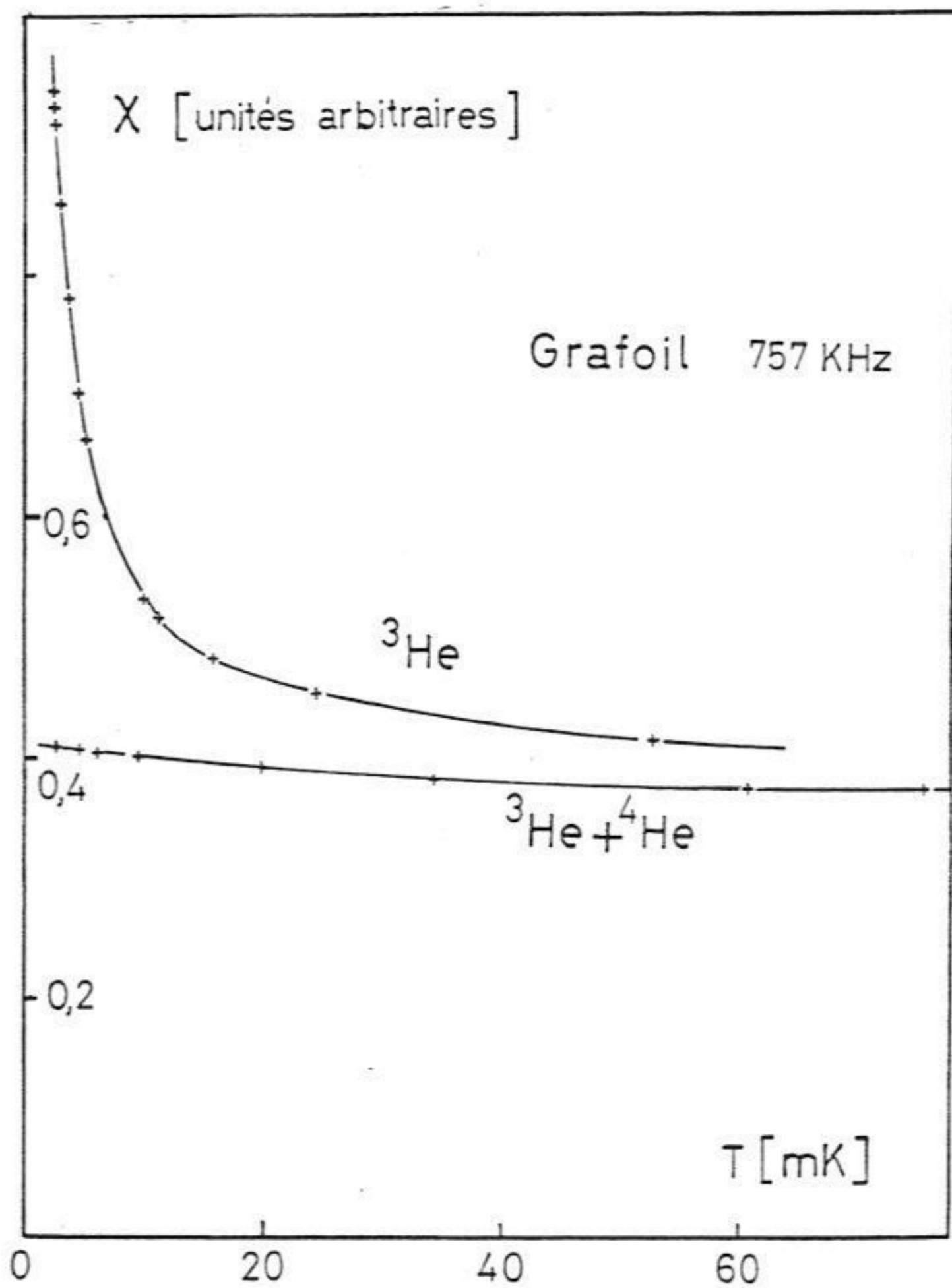


Fig. V-9 : Susceptibilité de l' ^3He adsorbée sur le grafoil.

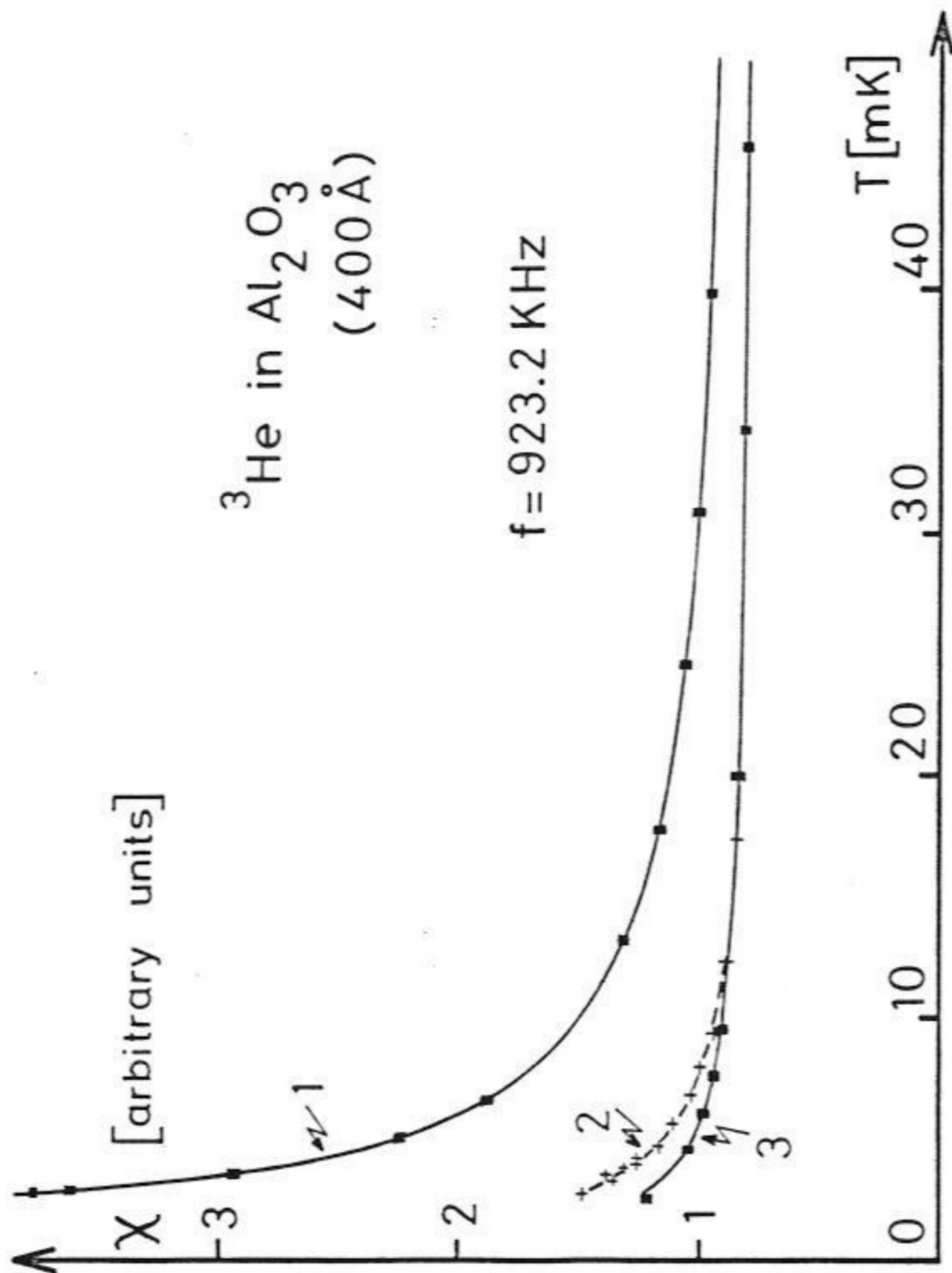


Fig. V-10 : Susceptibilité de ${}^3\text{He}$ adsorbé sur l'alumine.

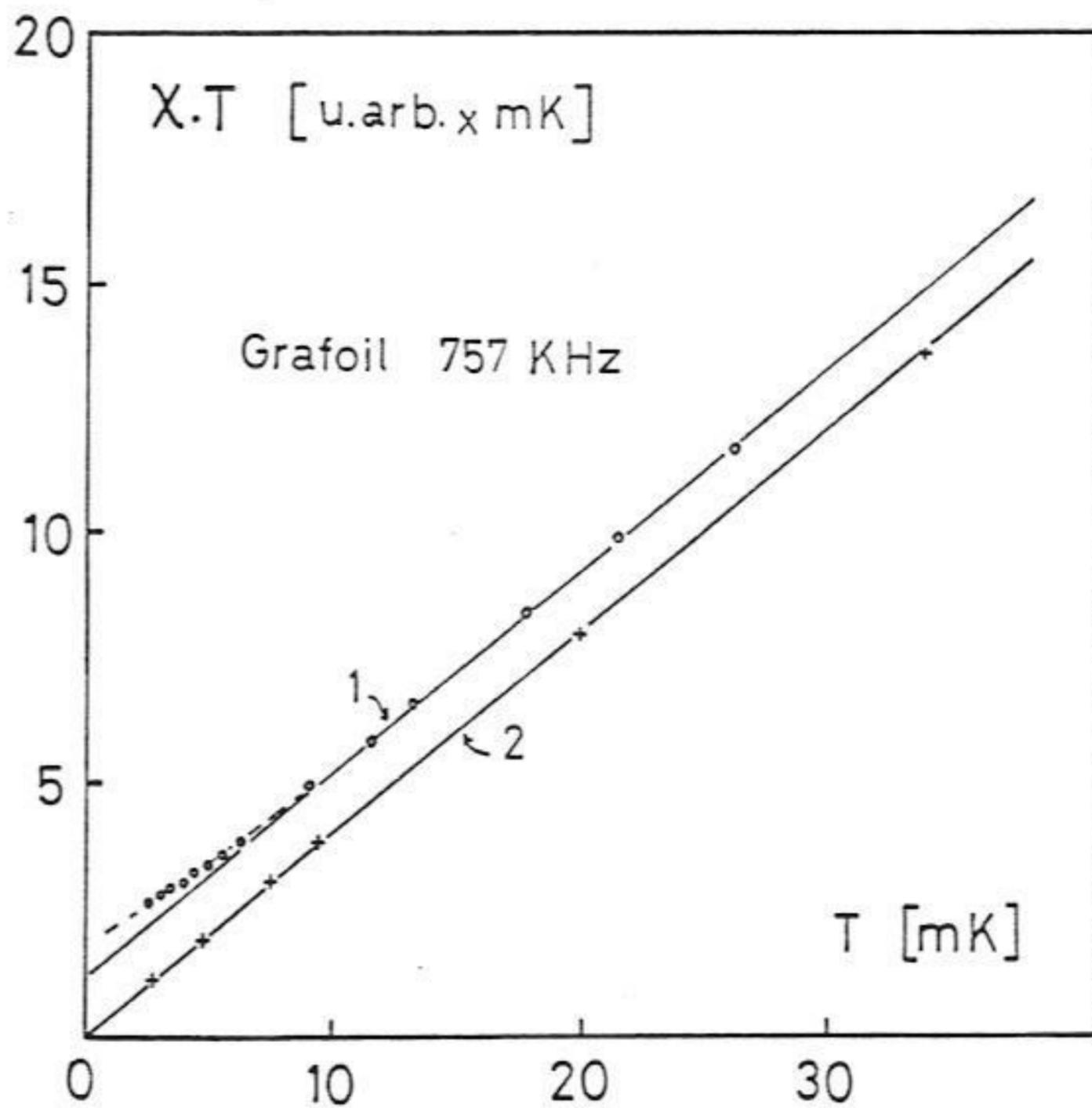


Fig. V-11 : Analyse de la susceptibilité de ^3He / grafoil.

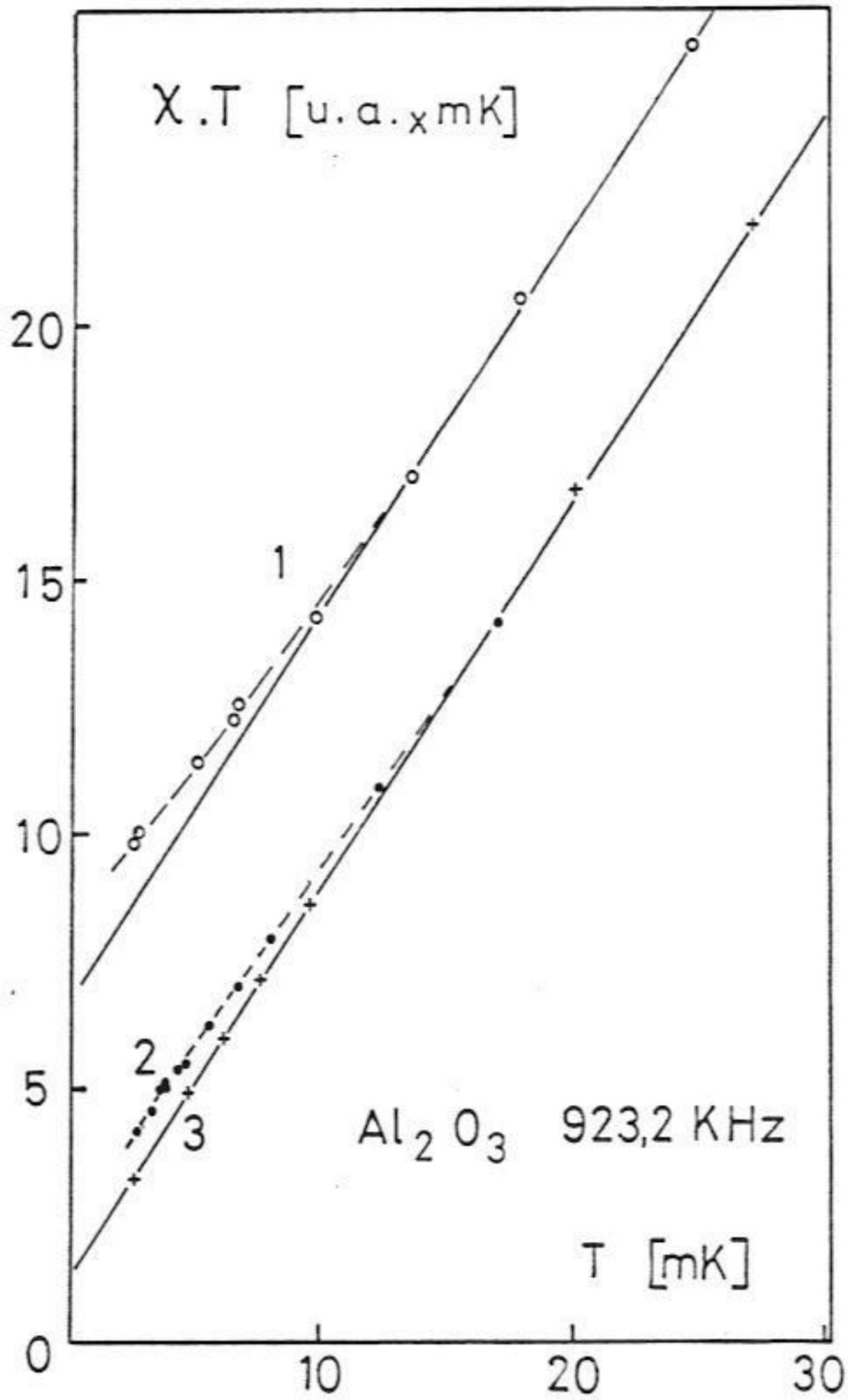


Fig. V-12 : Analyse de la susceptibilité de l' 3He / Al_2O_3 .

- ^3He / Grafoil ($f = 757 \text{ KHz}$) :

$$\chi = \frac{(1.22 \pm 0.02)}{T - (0.47 \pm 0.12) \text{ mK}} + (0.398 \pm 0.005)$$

- ($^3\text{He} + ^4\text{He}$) / Grafoil ($f = 757 \text{ KHz}$) :

$$\chi = \frac{(2.2 \pm 0.5) \times 10^{-2}}{T (\text{mK})} + (0.398 \pm 0.005)$$

- ^3He / Grafoil ($f = 923 \text{ KHz}$) :

$$\chi = \frac{(1.67 \pm 0.02)}{T - (0.58 \pm 0.14) \text{ mK}} + (0.575 \pm 0.003)$$

- ($^3\text{He} + ^4\text{He}$) / Grafoil ($f = 923.2 \text{ KHz}$) :

$$\chi = \frac{(5.0 \pm 1) \times 10^{-2}}{T (\text{mK})} + (0.575 \pm 0.003)$$

- ^3He / Al_2O_3 ($f = 757 \text{ KHz}$) :

$$\chi = \frac{(4.79 \pm 0.05)}{T - (0.33 \pm 0.10) \text{ mK}} + (0.520 \pm 0.005)$$

- ($^3\text{He} + ^4\text{He}$) / Al_2O_3 ($f = 757 \text{ KHz}$) :

$$\chi = \frac{(1.0 \pm 0.1)}{T (\text{mK})} + (0.520 \pm 0.005)$$

- ^3He / Al_2O_3 ($f = 923.2 \text{ KHz}$) :

$$\chi = \frac{(7.04 \pm 0.04)}{T - (0.29 \pm 0.05) \text{ mK}} + (0.767 \pm 0.005)$$

- ($^3\text{He} + ^4\text{He}$) / Al_2O_3 ($f = 923.2 \text{ KHz}$) :

$$\chi = \frac{(1.31 \pm 0.12)}{T (\text{mK})} + (0.767 \pm 0.005)$$

Pour le grafoil, on obtient $\frac{A_1}{B_1} = 3.06$ à 757 KHz ,

et $\frac{A_1'}{B_1'} = 2.90$ à 923.2 KHz .

Pour l'alumine, $\frac{A_2}{B_2} = 9.21$ à 757 Hz , et $\frac{A_2'}{B_2'} = 9.18$ à 923.2 KHz .

(A_1 et B_1 correspondent au grafoil et A_2 et B_2 à l'alumine à 757 KHz ; on note par A'_1 et B'_1 les valeurs à 932.2 KHz) : la sensibilité du Q-mètre dépend de la fréquence ; ainsi les rapports entre les paramètres A ou B mesurés à ces deux fréquences sont :

Alumine :	Grafoil :
$A'_2 / A_2 = 1.47$	$A'_1 / A_1 = 1.37$
$B'_2 / B_2 = 1.48$	$B'_1 / B_1 = 1.44$

avec une incertitude $\sim 2\%$. L'amplification entre 757 KHz et 923.2 KHz est de 1.46 ± 0.02 ; la valeur de A'_1 / A_1 est légèrement trop faible.

En tenant compte de la valeur de A'_1 / B'_1 , plus faible que A_1 / B_1 , on peut attribuer cet écart soit à une légère réduction du terme Curie-Weiss (A) lorsque le champ augmente, soit à une erreur systématique dans les mesures d'origine inconnue. Nous avons en particulier vérifié l'absence de saturation des signaux RMN, et la proportionnalité de nos échelles de température du platine aux deux fréquences et du CMN. (Cf. § III-C).

Ces différences sont toutefois petites, bien que hors des marges d'erreur. Dans le cas de l'alumine, les valeurs de A / B aux deux fréquences sont en parfait accord.

Les valeurs de θ , d'après les expressions précédentes sont :

$$\begin{aligned} \text{sur le grafoil} \quad \theta &= (0.53 \pm 0.1) \text{ mK} \\ \text{et sur l'alumine} \quad \theta &= (0.30 \pm 0.04) \text{ mK} \end{aligned}$$

Le nombre d'atomes participant au terme de Curie-Weiss est obtenu en calculant le nombre d'atomes de liquide massif (contribuant au terme B de X) et le rapport des aimantations par atome du liquide de Fermi, et du "solide" de Curie-Weiss. A 10 mK, l'aimantation du solide est 35.9 fois supérieure à celle du liquide (voir table II-1, constante de Curie à pression nulle).

Il faut également tenir compte de la distribution du liquide et du solide dans la bobine (en particulier, du liquide proche de la bobine, et hors du substrat), et de la carte de champ RF.

En employant cette méthode, suggérée par Ahonen et al. (1977), nous obtenons :

- dans le cas du grifoil, ~ 0.9 couches sont responsables du comportement de Curie-Weiss.

- Pour l'alumine, cette valeur est de 1 monocouche.

La première couche adsorbée est solide (cf. § V-B) ; sa susceptibilité suit par conséquent, au premier ordre, une loi de Curie.

Etant donné que cette loi n'est obéie que par une couche dans nos expériences, celles-ci démontrent que la deuxième couche de ^3He sur le grafoil est liquide. Il en est de même pour ^3He sur l'alumine.

Ces résultats sont en contradiction avec ceux de Van Sciver et Vilches (1978) ; d'après ces auteurs, la deuxième couche de ^3He / grafoil serait solide dès que la 3^e couche commence à se former. Il n'existe pas de mesures pour un taux de couverture plus important.

Des mesures effectuées par le groupe de Brewer à Sussex sur du verre Vycor (pores de 70 Å) peuvent être interprétées en supposant que seule la première couche est solide ; d'après leurs travaux les plus récents, la deuxième couche, liquide, aurait une densité supérieure à celle du solide sur la courbe de fusion (Mitchell et al. 1980).

Les expériences sur le grafoil sont les seules à avoir été effectuées sur un substrat homogène, et sont de ce fait particulièrement significatives. Nos résultats sur ce substrat ont été confirmés par des mesures de Bozler et al. (1978) sur ^3He / grafoil, présentées simultanément avec les nôtres à la 15^e Conférence Internationale sur les Très Basses Températures (LT 15) ; à des pressions de 0 ; 0.623 ; 2.60 MPa, le nombre de couches calculé est 0.86 ; 0.95 et 1.19 respectivement. Leur valeur de θ est de (0.42 ± 0.05) mK, également en accord avec nos mesures.

Par contre, les résultats du groupe de Helsinki, publiés également à LT 15 (Ahonen et al. 1978) sur ^3He / poudre de carbone de 90 Å indiqueraient un comportement tout à fait différent : leur signal de RMN pulsée montre deux constantes de temps τ_2^{H} , la première $\sim 40 \mu\text{s}$, et la deuxième $\sim 400 \mu\text{s}$. La première contribution, correspondant à ~ 1.2 monocouches, a une susceptibilité de Curie-Weiss, mais θ est négatif : $\theta = -0.09$ mK. La deuxième contribution est analysée sous la forme standard : $\chi = \frac{A}{T - \theta} + B$; le terme Curie-Weiss correspond à environ 5 couches, et θ est positif, variant de 0.35 à 0.50 mK en fonction de la pression.

Il semble difficile qu'un nombre aussi important de couches soit solide, bien que le caractère inhomogène et la faible taille des particules rendent incertaine toute prédiction. D'autre part, ces résultats sont en contradiction avec ceux qui avaient été obtenues en 1977 sur le même substrat, dans le même laboratoire.

Une partie, au moins, des problèmes provient du fait que les groupes de USC (Bozler et al. 1978) et de Helsinki (Ahonen et al. 1978) mesurent la susceptibilité en RMN pulsée. Ainsi le signal court ($\tau_2^{\text{H}} \sim 40 \mu\text{s}$) mesuré à Helsinki est observé dans de mauvaises conditions : à des temps courts, l'oscillation amortie du circuit résonant et le temps de recouvrement des amplificateurs empêchent toute mesure (cf. § III-C). De plus, la variation de la largeur de raie avec la température exige, pour mesurer χ en RMN pulsée, d'extrapoler le signal de précession libre à temps = 0 (moment de l'impulsion).

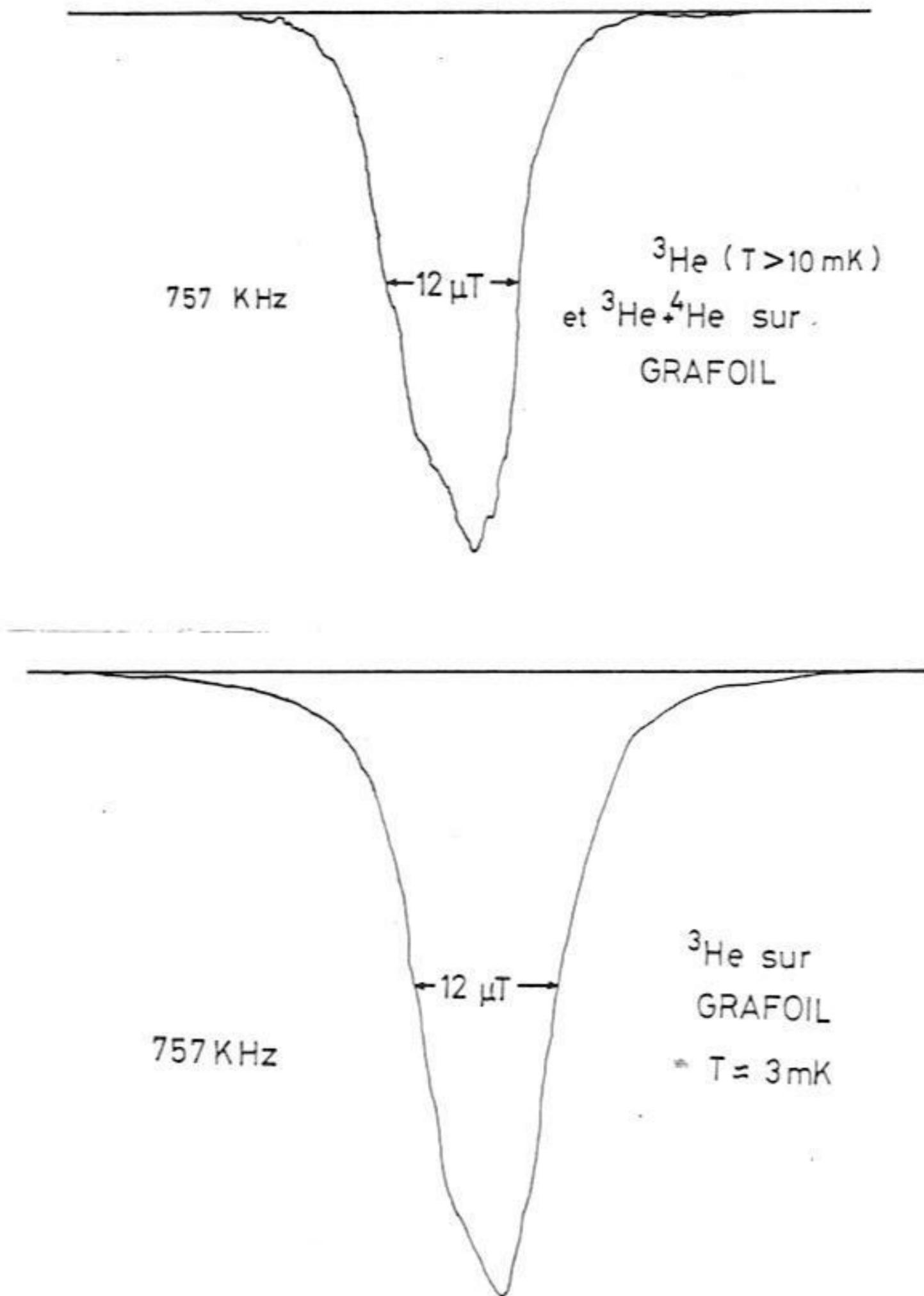


Fig. V-13 : Raies de Resonance de l' ${}^3\text{He}$ / grafoil à 757 KHz.

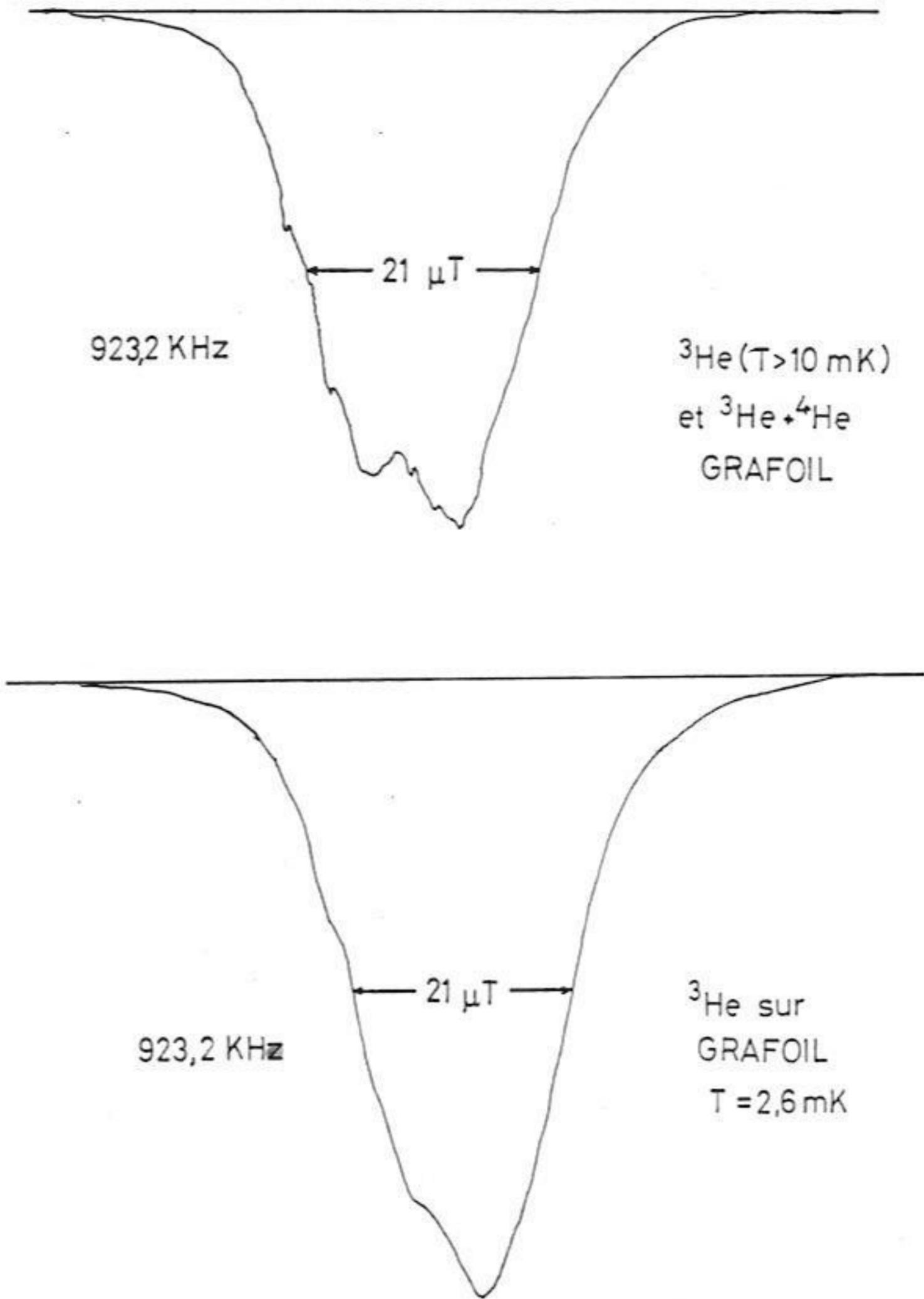


Fig. V-14 : Raies de RMN de l' ^3He / grafoil à 923,2 KHz.

Cette opération est effectuée en supposant une décroissance exponentielle du signal, c-à-d une forme de raie Lorentzienne.

Or nos mesures montrent clairement que les formes de raies ne peuvent pas être décrites par une expression simple (Lorentzienne ou Gaussienne). La figure V-13 montre les formes de raies que nous observons.

Nous pouvons effectuer plusieurs remarques. En premier lieu, les raies présentent une structure, et aussi une largeur (ΔB_0) importante ($\sim 20 \mu T$), environ un ordre de grandeur supérieure à l'inhomogénéité du champ magnétique appliqué B_0 . Ceci implique des gradients de champ locaux importants. Ce fait a également été confirmé par Hedge et Daunt (1978).

Le champ démagnétisant dû au substrat n'est pas assez important, dans ces mesures à bas champ, pour expliquer la largeur de raie.

L'origine de ces champs locaux n'a pas encore été éclaircie.

Dans le cas de ^3He / Grafoil à 757 KHz	$\Delta B_0 = 12 \mu T$
à 923.2 KHz	$\Delta B_0 = 21 \mu T$
et pour ^3He / Al_2O_3 à 757 KHz	$\Delta B_0 = 30 \mu T$
à 923.2 KHz	$\Delta B_0 = 35 \mu T$.

(largeurs de raie à mi-hauteur du signal RMN).

En utilisant l'expression $T_2^* = 2 / \gamma \Delta B_0$ (cf. § III-C-b), nous obtenons pour :

$$\begin{array}{ll} \Delta B_0 \sim 12 \mu T & T_2^* \sim 780 \mu s \\ \text{et } \Delta B_0 \sim 35 \mu T & T_2^* \sim 270 \mu s \end{array}$$

La valeur correspondant à un solide sans échange (réseau rigide) est $\Delta B_0 \sim 170 \mu T$, soit $T_2^* \sim 55 \mu s$, d'où le souhait des groupes de recherche travaillant en RMN pulsée d'étendre leurs mesures à des temps courts, malgré les problèmes expérimentaux graves.

Nos mesures, effectuées en RMN continue, auraient été très sensibles à un signal de cette largeur, s'il avait été présent avec une intensité correspondant à ~ 1 monocouche.

Nous observons un élargissement de la raie de RMN à très basses températures, lorsque le signal Curie-Weiss devient prépondérant par rapport à la susceptibilité constante du liquide de Fermi : la raie devient lisse, ses ailes plus importantes (voir figure V-13). Nous en déduisons que la largeur de raie de la couche solide adsorbée est de l'ordre de la largeur totale de la raie, $\sim 10 \mu T$, bien inférieure à la raie de réseau rigide. Les expériences de Hedge et Daunt (1978) sur des monocouches confirment nos résultats, et contredisent également ceux de Rollefson (1972), qui aurait observé

des largeurs homogènes de 160 mT,

La forme de raie que nous observons dans toute la gamme de températures avec ($^3\text{He} + ^4\text{He}$) / grafoil et alumine est exactement la même que dans le cas de ^3He pur sur ces substrats au-dessus de 10 mK, où la contribution de Curie-Weiss est négligeable (figure V-13).

Ceci confirme que l'on observe bien dans les deux cas ^3He liquide massif, le reste du signal devant être attribué aux couches de surface pour $T < 10$ mK.

Nous avons effectué une série de mesures très importantes (plus de 1000 raies de RMN), et une partie de ces résultats seulement a été employée au cours des analyses précédentes. La raison principale est liée à un effet surprenant qui reste actuellement inexplicé : après une première série de points nous avons observé un élargissement des raies de RMN sur tous les substrats, ainsi qu'un changement de forme de raie (celle-ci présentant toujours l'aspect accidenté des courbes montrées précédemment).

Cette forme s'est maintenue pendant plusieurs jours ; soudainement, sans que la température ait été élevée au-dessus de 300 mK, les raies ont repris leur forme initiale, de façon très précise, celle-ci étant ensuite restée stable pendant plus d'un mois. (Ce sont ces derniers points que nous avons analysés). Ce phénomène n'est pas dû à l'appareillage expérimental (électronique, champ magnétique appliqué) ; son origine est liée à celle des champs locaux, et probablement au magnétisme des couches adsorbées, un effet similaire ayant eu lieu simultanément sur tous les substrats.

L'ensemble des mesures, effectuées dans plusieurs laboratoires, est par conséquent relativement contradictoire. Bien que toutes les expériences montrent un comportement de Curie-Weiss pour les couches adsorbées, (avec $\theta \sim 0.5$ mK sur le graphite), il existe un désaccord fondamental sur le nombre de couches concernées : une monocouche (USC et Grenoble, sur grafoil, et Sussex, sur Vycor), 2 couches (Van Soiver et Vilches (1978), sur grafoil), et plus de 4 couches (Helsinki, particules de carbone de 90 Å, mylar).

MESURES de T_1

Nous avons mesuré le T_1 de ^3He confiné dans les mêmes substrats ainsi que dans la poudre de Platine, à 250 KHz, à l'aide d'un spectromètre pulsé commercial, au moyen d'impulsions à 90° (cf. § III-C). La relaxation de l'aimantation n'est pas exponentielle ; dans certains cas il semblerait que le signal puisse se séparer en deux contributions exponentielles, mais cette observation n'est pas systématique. La composante "courte" (dont la constante de temps sera désignée par " T_1 " par la suite), suit la même variation en température que la composante "longue", la relaxation dans ce dernier cas étant environ 3 fois plus lente.

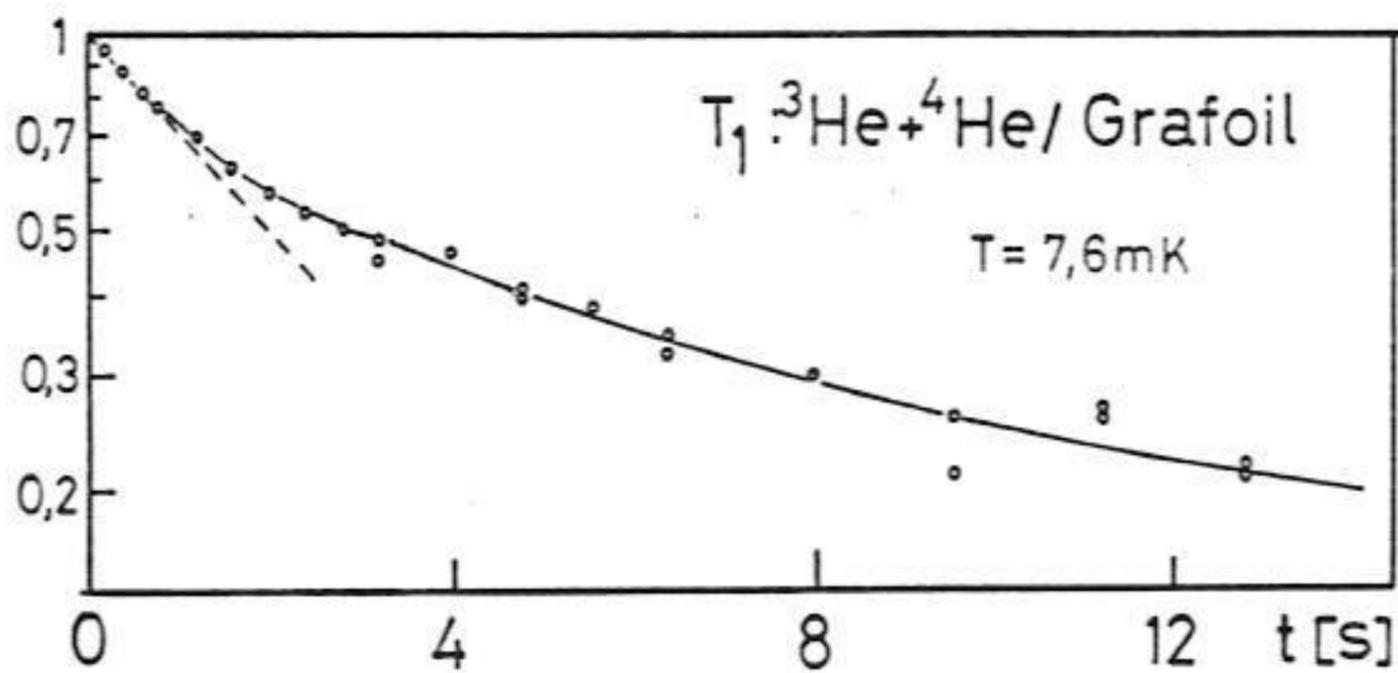


Fig. V-15 a : mesure de T_1 de ^3He / grafoil + 2.7 couches d' ^4He .

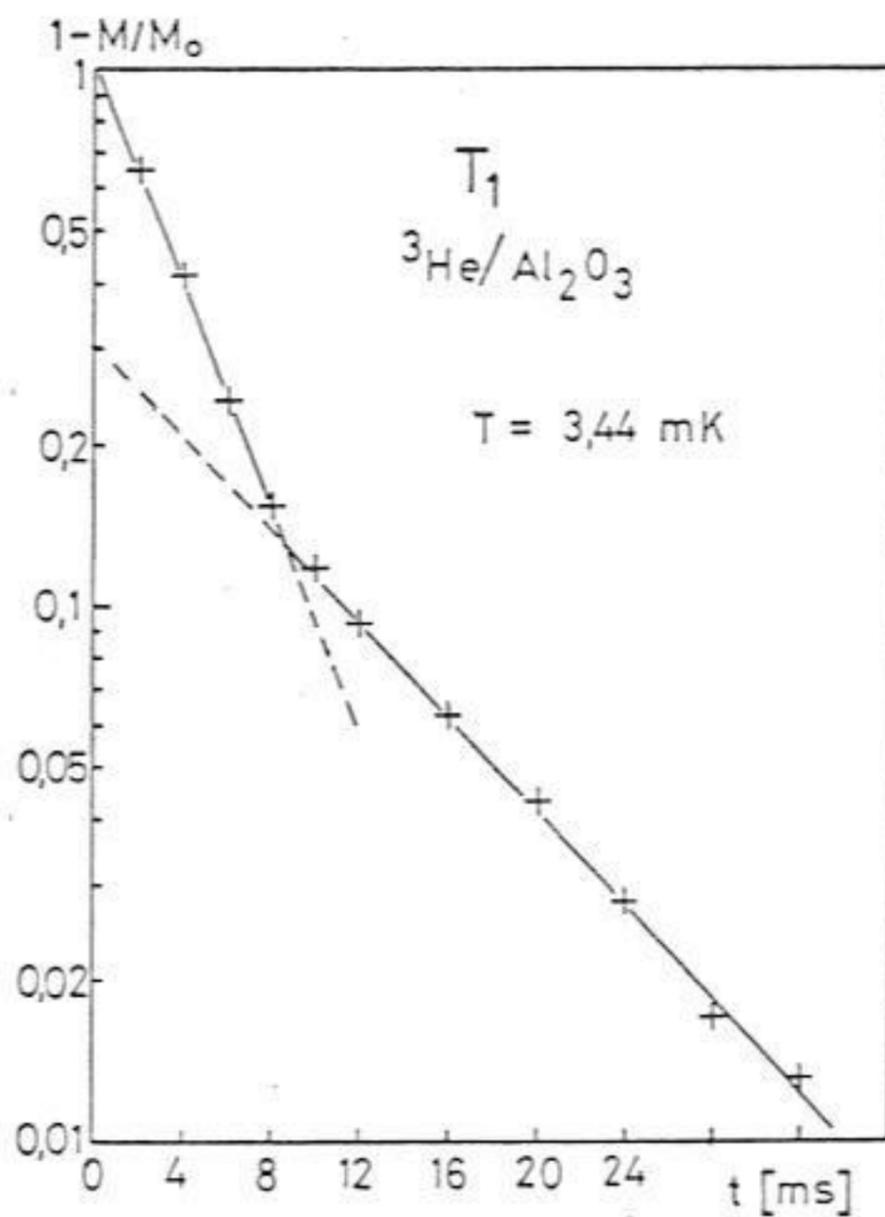


Fig. V-15 b : T_1 de ^3He / Al_2O_3 à 3.44mK : la relaxation est très rapide.

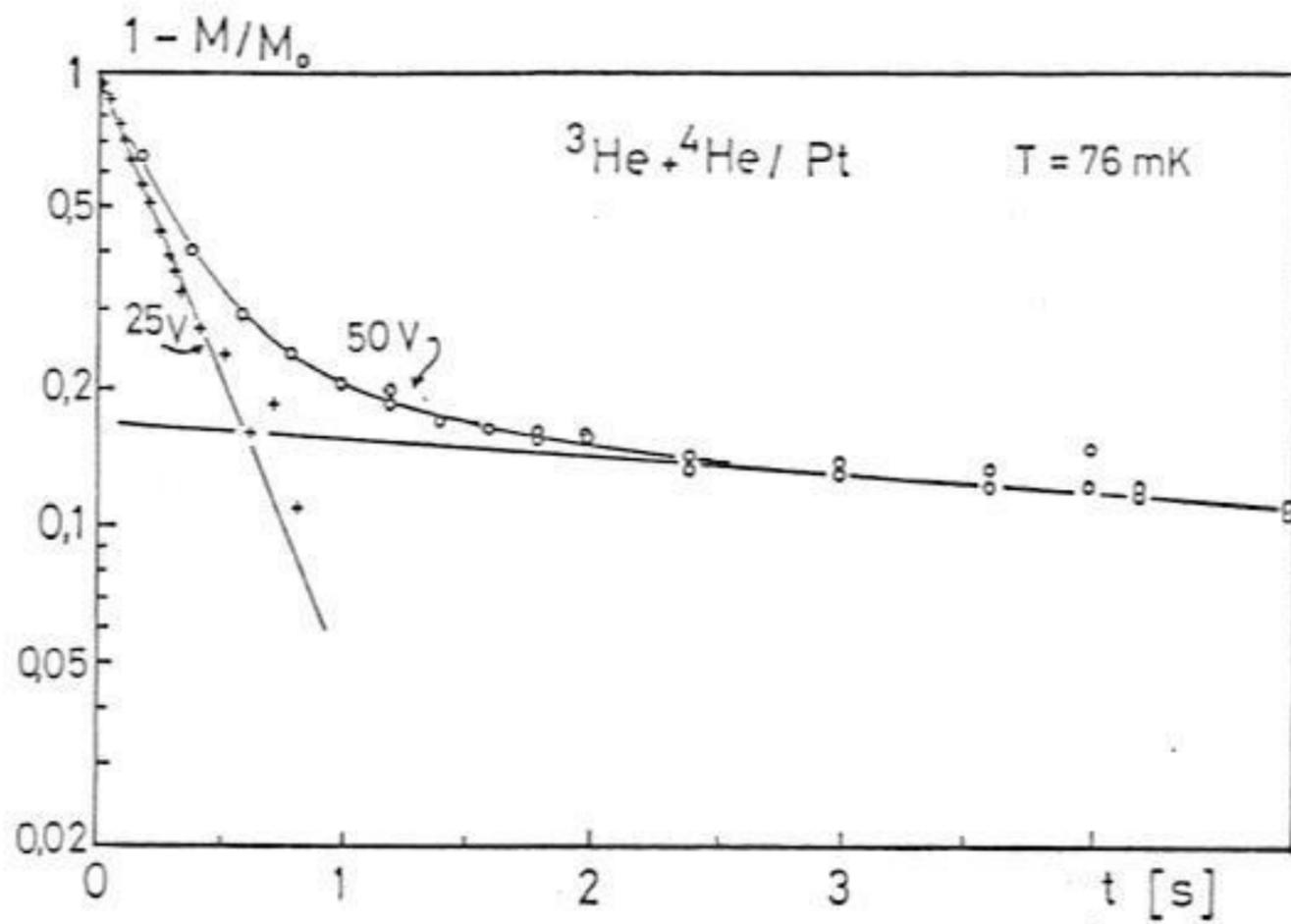


Fig. V-15 c : T_1 de $^3\text{He} / \text{Pt}$: effet de l'intensité de l'impulsion RF.

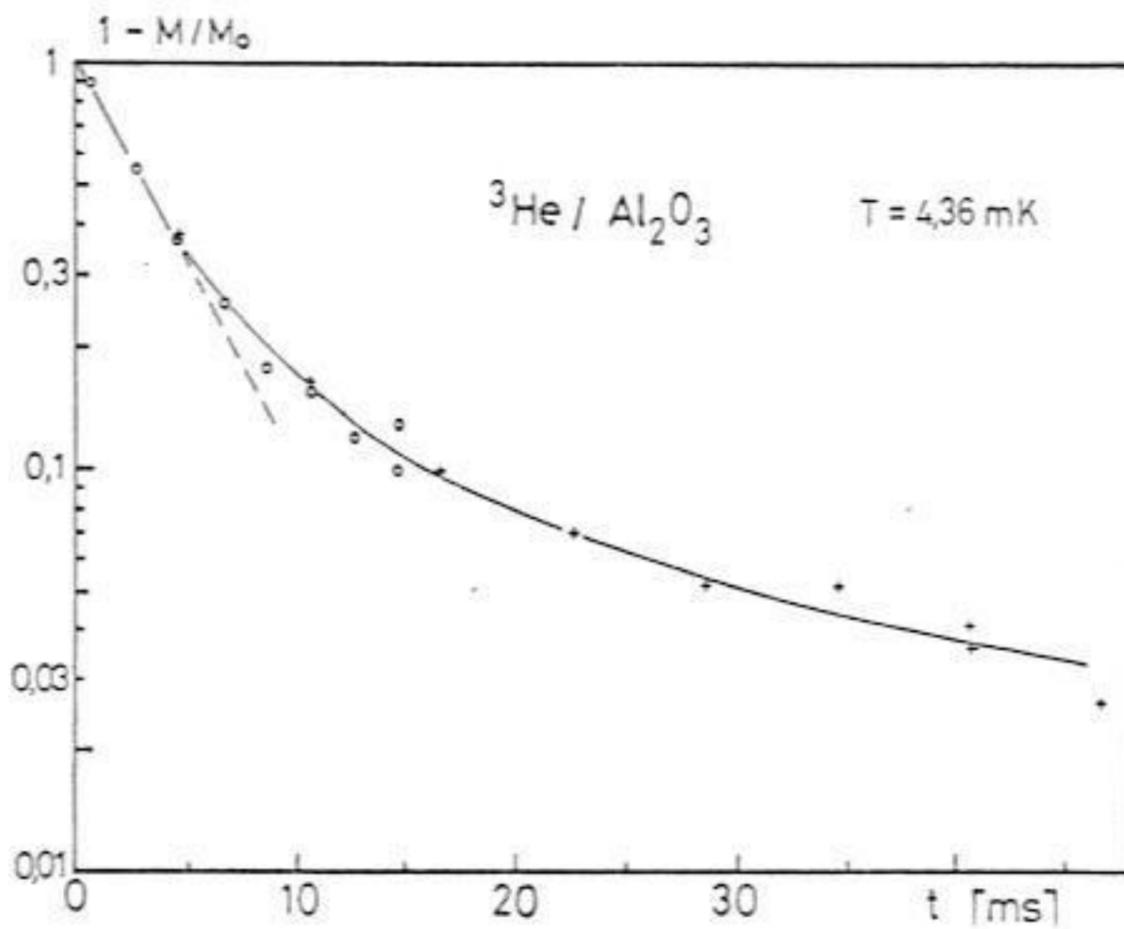


Fig. V-15 d : T_1 de $^3\text{He} / \text{Al}_2\text{O}_3$.

Dans le cas des mesures de ^3He / Platine, la relaxation devient plus lente lorsque la tension du pulse RF est augmentée ; elle n'est pas affectée aux temps courts (début de la relaxation). Il est donc probable que des problèmes de saturation du substrat par absorption non résonnante de RF apparaissent aux temps longs.

Ce comportement est observable même au-dessus de 10 mK, ce qui écarte la possibilité d'une relaxation indépendante de l' ^3He liquide et des couches solides.

Les valeurs de T_1 que nous avons obtenues sont données par la figure V-16.

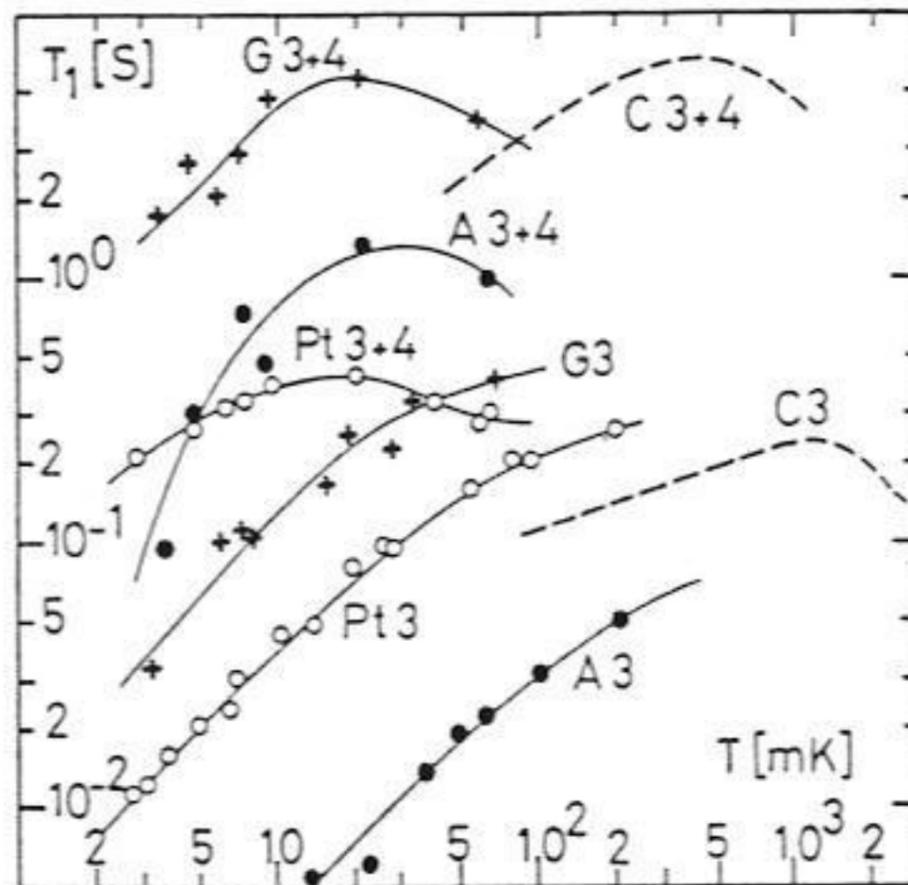


Fig. V-16 : Mesures de T_1 de l' ^3He dans le grafoil (G), l'alumine (A) et la Platine (P_t) ; avec de l' ^3He pur (3) et 2.7 couches d' ^4He (3+4).

→ Kelly Mesures de Kelly et Richardson (1974) dans du carbon black : C3 et C3+4

Avec de l' ^3He pur, T_1 est relativement linéaire au-dessous de 100 mK : les valeurs se recordent qualitativement à celles de Kelly (thèse, 1974) obtenues sur ^3He / carbone, 90 Å à hautes températures, qui présentent un maximum vers $T \sim 1$ K.

L'addition de 2.7 couches d' ^4He augmente T_1 d'environ deux ordres de grandeur ; dans ce cas, T_1 atteint un maximum à $T \sim 20$ mK dans les 3 échantillons. Les mesures de Kelly montrent un effet similaire, mais le maximum est moins déplacé (vers 0.5 K, voir figure V-16) ; dans ce cas, cependant, nous avons calculé qu'il existe une quantité d' ^4He plus importante en surface (~ 6.5 couches). Dans tous les cas, $T_1 \ll T_2$.

(intrinsèque, $\gtrsim 10^3$ s.)

Nous avons montré précédemment que dans des géométries aussi restreintes T_1 n'est pas limité par la diffusion, mais par la faible probabilité de relaxation à la surface. L'effet de l' ^4He prouve que celle-ci a bien lieu à la surface.

Soit ϵ la probabilité de relaxation par collision avec la surface ; d'après Garwin et Reich (1959), T_1 est alors donné par l'expression :

$$T_1 \sim \frac{4V}{\epsilon v S}$$

V étant le volume de l' ^3He , S la surface des parois, v la vitesse moyenne des particules ($v \sim v_F$ au dessous de 1 K). Soit :

$$T_1 \sim \frac{a}{\epsilon v_F}$$

a étant la dimension caractéristique de la cellule.

Nos valeurs de T_1 impliquent par conséquent que la probabilité de relaxation est inversement proportionnelle à la température ; pour l'alumine et le grafoil $\epsilon \sim 10^{-8}$, et pour le platine $\epsilon \sim 10^{-6}$.

Ces valeurs sont réduites d'environ deux ordres de grandeur lorsque les surfaces sont recouvertes d' ^4He .

Des résultats similaires sont obtenus lors des mesures de T_1 dans de l' ^3He gazeux ; nous avons obtenu des valeurs d' ϵ du même ordre en appliquant notre méthode (V. Lefèvre, communication privée).

Les mécanismes caractérisant la probabilité de relaxation par collision ne sont pas connus actuellement. Ils pourraient être reliés soit à la probabilité d'adsorption dans la phase solide 2 D, soit aux processus magnétiques à l'interface solide-liquide, ces deux phénomènes pouvant être reliés.

Plusieurs modèles seront discutés par la suite.

Ces mesures de T_1 présentent également un intérêt plus technique ; elles permettent de calculer les conditions expérimentales (taille de cellules, matériaux) nécessaires aux expériences d' ^3He polarisé, où l'on veut éviter la relaxation aux parois avec des dimensions caractéristiques minimales imposées par l'échage thermique (voir Godfrin et al. 1980).

La relation entre ces mesures de T_1 et la résistance de Kapitza dans la gamme du millikelvin est traitée dans l'appendice I.

c) Modèles Théoriques - Magnétisme nucléaire à 2 D.

De nombreux modèles théoriques ont été proposés afin d'expliquer la susceptibilité de Curie - Weiss ferromagnétique et les temps de relaxation décrits précédemment.

Expérimentalement, il n'est pas encore possible de déterminer si le magnétisme superposé à la loi de Curie provient de la (des ?) couche(s) solide(s), du liquide adjacent, ou d'une propriété d'interface (adsorption, échange liquide solide).

Il existe ainsi un certain nombre de modèles directement issus des études de ^3He solide massif (cf. Chapitre IV), du liquide (cf. Chapitre II), appliqués au cas bidimensionnel, ainsi que des modèles spécifiques à l'interface solide-liquide.

Modèles de Ferromagnétisme lacunaire.

- Sokoloff et Widom (1975, 1976) ont proposé un modèle de ferromagnétisme dû à la présence d'un nombre important de lacunes ($\sim 10^{-4}$) dans le cas de ^3He solide massif (voir § IV-C-d).

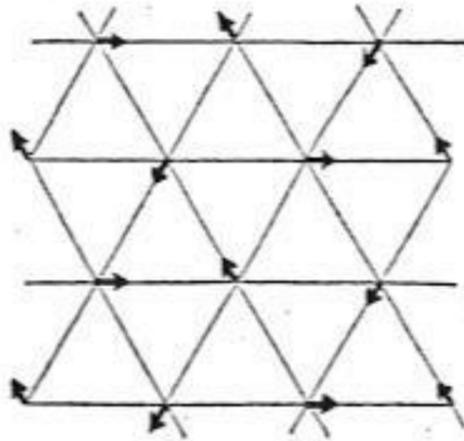
Dans un article plus récent (1977), ces auteurs proposent un modèle différent, discuté plus loin, mais suggèrent que le ferromagnétisme nucléaire lacunaire à 2-D peut expliquer également les résultats expérimentaux. Dans ce cas, la transition serait du premier ordre, vers un état ferromagnétique.

Cependant, il est peu probable qu'il existe un grand nombre de lacunes dans la première couche solide, de densité très élevée. Ce modèle pourrait s'appliquer à une deuxième couche si elle était solide et de faible densité, mais les résultats de USC et Grenoble infirment cette hypothèse, du moins pour ^3He / Grafoil et Al_2O_3 .

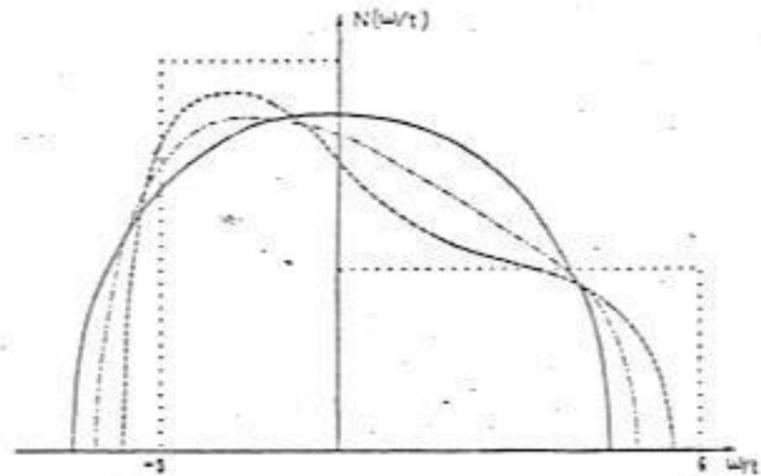
- Guyer (1977) propose également d'appliquer le modèle de Sokoloff et Widom aux systèmes confinés, mais il s'intéresse surtout à la phase enregistrée sur le grafoil. Ce cas est particulièrement intéressant, car une déviation du taux de couverture par rapport à celui de la phase enregistrée fait apparaître soit des interstitiels soit des lacunes. Le diagramme de phases résultant, très spéculatif, comporte des zones ferro- et antiferromagnétiques en fonction du taux de couverture, à des températures de l'ordre du mk. Il n'existe aucune mesure expérimentale à ce sujet.

- Héritier et Lederer (1977, 1978, 1979) ont appliqué la théorie des polarons de spin de ^3He solide au cas des couches à 2-D. (Cf. § IV-C-d) : une lacune crée un polaron de spin ferromagnétique dans un réseau alterné (par exemple, carré) ; ce polaron a une taille de l'ordre de 3 distances interatomiques à température non nulle.

Dans un réseau non-alterné (triangulaire, par exemple), l'énergie n'est pas minimisée par un alignement ferromagnétique, mais plutôt par un réseau de vortex dû à la frustration :



V_1 spin configuration.



Schematic of the vacancy density of states, in a triangular lattice, for various spin configurations: ferromagnetic (dotted line), R (heavy dashed line), and V_1 (dash-dotted line). The solid line corresponds to the self-retrocing-path approximation.

Le théorème de Nagaoka (cf. § IV-C-d) ne s'applique qu'aux réseaux alternés : les lacunes n'impliquent donc pas le ferromagnétisme dans le réseau triangulaire de la première couche de ^3He / graphite.

De plus, le nombre de lacunes en première couche est probablement très faible ; ce modèle n'explique donc pas le ferromagnétisme, si celui-ci provient du solide en première couche.

Par contre la deuxième couche, si elle était solide et de structure carrée, pourrait avoir un état fondamental ferromagnétique.

Cette possibilité est contraire à nos observations au sujet du nombre de couches solides et de leur magnétisme ; de plus, il serait difficile d'expliquer l'absence de nucléation de $1'^3\text{He}$ cubique corps centré sur le graphite discutée au début de ce chapitre.

- Iordanskii (1980) analyse en détail l'état fondamental d'un réseau triangulaire (c-à-d non alterné), et contredit les conclusions de Héritier et Lederer : l'état fondamental serait "ferromagnétique", avec une aimantation égale à $1/3$ de l'aimantation à saturation. Dans ce cas il faudrait que la deuxième couche soit solide à réseau triangulaire, ce qui est évidemment contraire à nos résultats, mais plus vraisemblable qu'un réseau carré.

Modèles d'Echange Multiple dans le solide 2-D.

- Delrieu, Roger et Hetherington (1980) ont suggéré que l'échange multiple, qui décrit bien le comportement magnétique de $1'^3\text{He}$ à 3-D, devrait également être domi-

nant dans les couches solides à 2-D (cf, § IV-C-e), Dans ce cas, le réseau triangulaire favorise l'échange cyclique de 3 spins, ferromagnétique. Le liquide n'est pas supposé influencer ce mécanisme.

La théorie de l'échange à n-spins a été décrite en détail au chapitre IV ; il est clair qu'aux densités très élevées de la première couche, les constantes de Curie-Weiss seront de l'ordre de quelques μK . La situation serait évidemment favorable dans le cas où la deuxième couche serait solide et triangulaire ; en particulier, les constantes d'échange seraient d'un ordre de grandeur raisonnable pour obtenir $\theta \approx 0.5 \text{ mK}$.

L'introduction de lacunes dans un réseau triangulaire modifie la parité des permutations de spins. Ainsi, les lacunes donneraient un état fondamental antiferromagnétique, en principe. (Un état frustré du type Héritier et Lederer du Iordanokii.)

Modèles d'Echange solide-liquide.

- Sokoloff et Widom (1977) ^{Mills et Béal-Monod (communication privée) et Maki (com. privée)} ont proposé un mécanisme d'échange indirect de deux atomes du solide 2-D, via le liquide, analogue à l'interaction RKKY du magnétisme électronique des terres rares.

Cette interaction est de longue portée, et favorise le ferromagnétisme ; la température critique devrait être inférieure d'un facteur ~ 3 à celle du solide 3-D.

Le "crossover" entre 2 et 3 D permet d'obtenir un ferromagnétique bidimensionnel, en principe interdit dans le cas d'un système réellement 2-D, invariant par rotation des spins (Mermin et Wagner, 1966).

Ce modèle n'est contredit par aucune des expériences réalisées jusqu'à présent. L'idée physique est séduisante ; cependant, les résultats sont encore beaucoup trop qualitatifs pour conclure à la réalité de ce processus.

- Mullin et Landesman (1980) ont montré que l'échange du type précédent est réduit par la translation des atomes du liquide ; ils obtiennent une constante d'échange effective \tilde{J}_{SL} entre le solide et le liquide reliée à l'opérateur d'échange J_{SL} par la formule $\tilde{J}_{12} \sim J_{12}^2 / \epsilon_2$, ϵ_2 étant une énergie translationnelle caractéristique du liquide, $\sim 1 \text{ K}$. Si \tilde{J}_{12} est important, la première couche aura un magnétisme renforcé. Dans le cas contraire, le solide 2-D et le liquide 3-D sont découplés, et relaxeraient indépendamment. Cela semble être le cas dans les expériences de Helsinki, mais nos mesures des formes de raies en RMN continu infirment leur procédure expérimentale d'obtention de plusieurs contributions, et en particulier de celle qui correspondrait à la couche de solide antiferromagnétique à 2-D.

De plus nos mesures de T_1 ne présentent pas de discontinuités lorsque T devient inférieur à 10 mK, où la susceptibilité mesurée (et par conséquent T_1) est surtout celle du solide 2-D ; solide et liquide semblent donc relaxer avec le même T_1 , ce qui implique un fort couplage \tilde{J}_{SL} entre le solide et le liquide.

- Héritier (1979) a proposé un couplage indirect de deux atomes du solide : un atome quitte le solide vers le liquide, créant une lacune ; celle-ci se propage, puis est détruite par un atome venant du liquide. Ce couplage est de courte portée, et antiferromagnétique ($\sim 40 \mu K$).

Le modèle tend à expliquer le signal antiferromagnétique de Ahonen et al. (1978), mais cet effet n'est pas confirmé par les résultats de USC et Grenoble.

Modèles de magnétisme renforcé dans le liquide.

- Béal-Monod, Doniach, Mills, Spanjaard ont analysé le renforcement de la susceptibilité du liquide au voisinage d'un substrat et le temps de relaxation T_1 associé, dans le cadre de la théorie des paramagnons (Doniach et Engelsberg, 1966 ; Berk et Schrieffer, 1966).

L'hamiltonien s'écrit sous la forme :

$$\hat{H} = \frac{p^2}{2m} + V \equiv T + V$$

où m est la masse nue de l'atome d' ^3He . Le terme d'énergie potentielle décrit une interaction à portée nulle (interaction de contact) : $V = \int d^3x f(\vec{r}, t)$, agissant uniquement entre spins de sens opposés. Plus précisément $V = \int d^3x n_{\uparrow}(\vec{x}) n_{\downarrow}(\vec{x}') \delta(\vec{x} - \vec{x}')$, où $n_{\uparrow}(\vec{x}) = \psi_{\uparrow}^{\dagger}(\vec{x}) \psi_{\uparrow}(\vec{x})$. Le paramètre $\bar{I} = I N(E_F)$, (où $N(E_F)$ est la densité d'états au niveau de Fermi), caractérise le comportement magnétique du système : celui-ci devient ferromagnétique lorsque $\bar{I} = 1$.

Pour $\bar{I} < 1$, à très basse température, la susceptibilité s'écrit sous la forme :

$\chi_B = \chi_F / (1 - \bar{I})$, où χ_F est la susceptibilité du gaz de Fermi sans interactions. On obtient ainsi un liquide de Fermi à susceptibilité renforcée ; on retrouve par ce modèle microscopique les résultats de Landau (cf. chapitre II).

Pour $\bar{I} > 1$, la susceptibilité suit une loi de Curie-Weiss (ferromagnétique itinérant) :

$$\chi \propto \frac{1}{T - \theta}, \quad \text{où} \quad \theta \sim T_F (1 - \bar{I}^{-1})^{1/2}$$

Dans le cas de ^3He liquide 3-D, la susceptibilité est fortement renforcée, sans atteindre toutefois l'instabilité ferromagnétique : de fortes fluctuations de spin, ou "paramagnons" sont responsables de cet effet, ainsi que de l'augmentation de la masse effective des atomes d' ^3He : $m^* > m$. ; leur température caractéristique est $T_{SF} = T_F (1 - \bar{I})$, relativement faible par rapport à T_F dans ^3He 3-D.

La théorie des paramagnons a également permis de décrire avec succès, et sans paramètres ajustables, les déviations de la susceptibilité par rapport à la valeur constante en fonction de la température (cf. chapitre II), malgré la simplicité de l'hamiltonien. (Béal-Monod, Ma et Fredkin (1968)).

Il est donc naturel d'étendre son application au cas de ^3He en géométries confinées. *La perturbation apportée par la présence* Le potentiel attractif du substrat induit des oscillations de Friedel de la susceptibilité au voisinage de la surface ; dans ce modèle, elle *se comporte* ~~est décrite par une~~ *comme* expression de la forme $\chi = \chi_F / [1 - \bar{I} f(k_F Z)]$, où $f(k_F Z)$ est une fonction oscillante de la distance Z à la surface. Pour des couches proches du substrat, $\langle \bar{I} f(k_F Z) \rangle$ peut devenir supérieur à \bar{I} ; le magnétisme de surface est ainsi renforcé, et peut même atteindre l'instabilité ferromagnétique, pour une valeur critique \bar{I}_c inférieure à celle du liquide massif. Dans ce cas la susceptibilité suit une loi de Curie-Weiss à hautes températures ; elle demeure finie à $T = \theta$, et diverge à $T = 0$ *à cause du caractère bidimensionnel.*

Ce modèle, proposé par Béal-Monod et Doniach (1977) pour expliquer les résultats de ^3He / mylar du groupe de Helsinki, a été développé par Spanjaard, Mills et Béal-Monod (1978, 1979) et Béal-Monod et Theumann (1980), en tenant compte de la partie attractive du potentiel de surface, au moyen d'un puits carré de profondeur V_0 . La figure V-17 représente le résultat de leurs calculs de \bar{I}_c en fonction de V_0 ; il est clair que la partie attractive du potentiel favorise le magnétisme de surface.

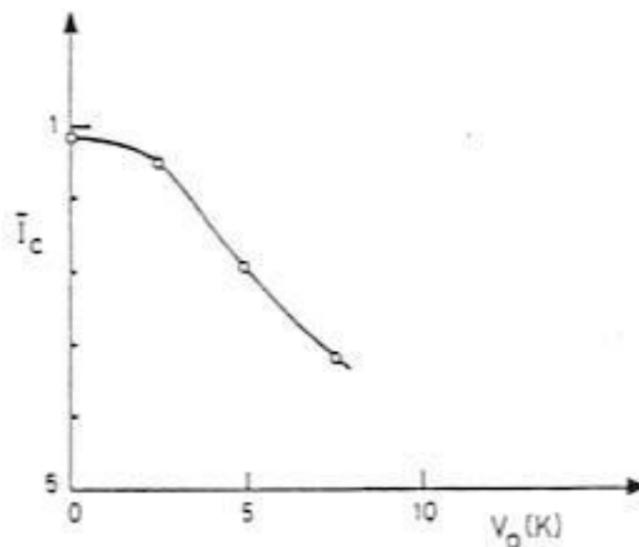


Fig. V-17 :

Fig. 4. Plot of the critical value of \bar{I} above which the surface region becomes ferromagnetic vs. the depth of the attractive well V_0 .

En particulier, la deuxième couche de ^3He / grafoil, liquide d'après nos résultats, est un excellent candidat pour le ferromagnétisme itinérant décrit par ce modèle, et il semblerait naturel de lui attribuer la contribution de Curie-Weiss mesurée expérimentalement.

Cependant, il faut tenir compte de la forte aimantation (au-moins de type Curie) attendue dans la première couche solide. Les expériences à USC et à Grenoble, où la contribution de Curie-Weiss observée se limite à une couche, ne semblent pas, par conséquent, montrer une aimantation assez importante pour que le liquide soit concerné, à moins que le signal de la première couche, plus large ($T_2^* < 50 \mu\text{s}$?) ne soit pas visible dans ces mesures. *D'autre part, le moment magnétique effectif des atomes d' ^3He du liquide 2-D peut être réduit par rapport au moment "nu" (Morata et Doniach, 1972)*
 Dans le cas des résultats de Helsinki, le fort nombre de couches "magnétiques" concernées (> 5) favorise ce modèle, puisqu'il est peu probable qu'un nombre aussi important de couches soit solide sur ces substrats (mylar et carbone).

Signalons également que 2.7 couches de ^4He n'ont pas totalement annulé la contribution de Curie-Weiss dans nos expériences ; ce fait favorise un modèle de magnétisme dans le liquide. Cependant, il est possible que des atomes d' ^3He soient restés piégés (localisés) dans des défauts de la surface, de façon métastable.

La dépendance de la susceptibilité en champ magnétique à très basses températures mesurée par Bozler et al. (1978) est également bien décrite par cette théorie (références citées précédemment).

Celle-ci permet également de calculer le temps de relaxation au voisinage de la surface : Béal-Monod et Mills (1978 a et b, et ^{à paraître} non-publié), Albers et Wilkins (1979). Les couches adsorbées sont caractérisées par des fréquences caractéristiques de fluctuation de spin γ_i (qui augmentent lorsque l'on s'éloigne de la surface : de l'ordre du mK, c-à-d la température d'ordre, dans la couche solide, et de $T_F \sim 500 \text{ mK}$ dans le liquide 3-D, les valeurs intermédiaires caractérisant les couches successives de liquide 2-D), ainsi que par leur susceptibilité χ_i . Le substrat est décrit par les quantités analogues, γ et χ , mais d'origine électronique (impuretés, liaisons brisées, etc...). Il est alors possible de calculer les probabilités de relaxation des atomes d' ^3He de chaque couche lors de leurs collisions avec des spins de la même couche, d'autres couches et du substrat.

Ceci a été effectué aussi bien dans l'hypothèse d'interactions dipolaires magnétiques que dans celle d'un couplage isotrope à courte portée.

La forme générale de la fréquence de relaxation est :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{A}{2T} \int_{-\infty}^{+\infty} n(1+n) \frac{J_{\omega}^2}{I_{\omega}} \chi_1\left(\frac{\omega}{T}\right) \frac{J_{\omega}^2}{I_{\omega}} \chi_2\left(\frac{\omega}{T}\right) d\omega$$

où $n(\omega/T) = [\exp(\omega/T) - 1]^{-1}$, $\chi_1(\omega)$ et $\chi_2(\omega)$ les susceptibilités dynamiques des spins des milieux 1 et 2., et Im indique la partie imaginaire.

~~Les résultats ne sont pas sensibles à la forme de la densité spectrale en ce qui concerne le calcul de T_1 .~~

La variation de T_1 , pratiquement linéaire en T , observée par Kelly et Richardson (1974) et nous mêmes jusqu'à des températures de l'ordre du millikelvin, est alors obtenue en supposant un substrat (milieu 1) à susceptibilité électronique $\chi_1 \propto T^{-1}$, sur lequel relaxent les spins de la première couche liquide, $\chi_2 \propto (T - \theta)^{-1}$.

Des résultats similaires peuvent être obtenus en considérant la relaxation de ^3He au voisinage de la surface due au couplage avec les couches solides et liquides directement en contact avec le substrat.

En effet, il n'est pas établi que les impuretés paramagnétiques électroniques soient responsables de la relaxation ; en particulier, Kelly et Richardson (1974) ont mis en évidence une variation linéaire de T_1 en fonction du champ, dans une gamme de températures importante : la saturation de l'aimantation électronique n'a donc pas d'effet remarquable sur T_1 .

Essentiellement, cette théorie a le mérite d'expliquer les caractéristiques principales du comportement de T_1 en fonction de la température ; le résultat de BPP pour le liquide massif est retrouvé lorsque la relaxation de surface est négligeable, et la dépendance en T , dans le cas contraire. Une discussion plus détaillée exige une meilleure connaissance expérimentale de la structure des couches adsorbées, de leur magnétisme, et surtout, du niveau où se situe le couplage déterminant T_1 : substrat - He, ou entre les différentes couches adsorbées.

Il est également possible de calculer, de façon similaire, la résistance de Kapitza entre ^3He liquide et le substrat. Les résultats dépendent alors de la densité spectrale supposée dans chacun des milieux ; l'analyse est alors plus compliquée, et les résultats expérimentaux sont insuffisants devant le nombre important de paramètres.

Cependant, il est clair que la résistance de Kapitza à très basses températures est directement reliée au temps de relaxation en surface.

V - D - ETUDE AUX NEUTRONS DE LA 2^e COUCHE DE ³HE / GRAPHITE.

Le caractère (liquide au solide ?) de la 2^e couche de ³He / grafoil est par conséquent un problème fondamental pour la compréhension du magnétisme de ce système. Des expériences aux neutrons ont été proposées par M.T. Béal-Monod dès 1978. Une deuxième couche solide a été observée pour ⁴He / Grafoil, probablement commensurable avec la première (Carneiro et al. 1980 ; Lauter, communication privée).

Dans le cas de l'³He, l'expérience est plus difficile : la forte section efficace ³He - neutron provoque un chauffage de l'échantillon très important, dans la gamme de températures $T < 1$ K où l'on recherche le signal d'une deuxième couche solide.

Ceci a motivé notre collaboration avec Lauter, Tiby et Wiechert à l'Institut Laue-Langevin (Grenoble).

Nous avons employé un échantillon constitué par un empilement de feuilles de graphite exfolié, ZYX-UCAR, dont les plans ont un meilleur parallélisme que dans le grafoil (voir § V-B). Le faisceau de neutrons incident est dans le plan, afin de détecter la périodicité du réseau à 2-D. L'ensemble est situé dans une cellule étanche et refroidi au moyen d'un réfrigérateur à dilution dont la température minimale est de l'ordre de 50 mK.

Nous avons mis au point une méthode de thermalisation particulièrement efficace. Après des essais concluants sur du grafoil, nous avons déposé par pulvérisation au magnétron une couche de cuivre d'une épaisseur de 100 μ sur la tranche des feuilles de ZYX (cette orientation est rendue nécessaire par la conductivité anisotrope de l'échantillon). La couche présente une adhérence, et une rigidité mécanique excellentes ; il a donc été possible de souder sur celle-ci des fils de cuivre reliés au réfrigérateur à dilution (contacts thermiques). La température peut ainsi être maintenue aux environs de 150 mK sous irradiation de neutrons.

Les mesures ont été réalisées sur le diffractomètre D1B de l'ILL.

Les spectres ont été effectués à 3 températures différentes : 12 K ; 1.2 K et 0.15 K, avec un taux de couverture de 0.19 atomes / Å^2 , soit la première couche complète ($n_1 = 0.112$ at / Å^2) ainsi que la deuxième ($n_2 = 0.075$ et / Å^2), et une fraction seulement de la troisième couche ($n_3 = 0.016$ et / Å^2).

La figure V-18 montre le spectre obtenu par soustraction des résultats à $T = 12$ K de ceux obtenus à $T = 0.15$ K.

A 12 K, même la première couche est liquide ; on obtient donc une soustraction du signal de fond ("background"), et le signal de la raie (10) de la première couche solide apparaît clairement. La forme asymétrique est caractéristique d'un solide bidimensionnel.

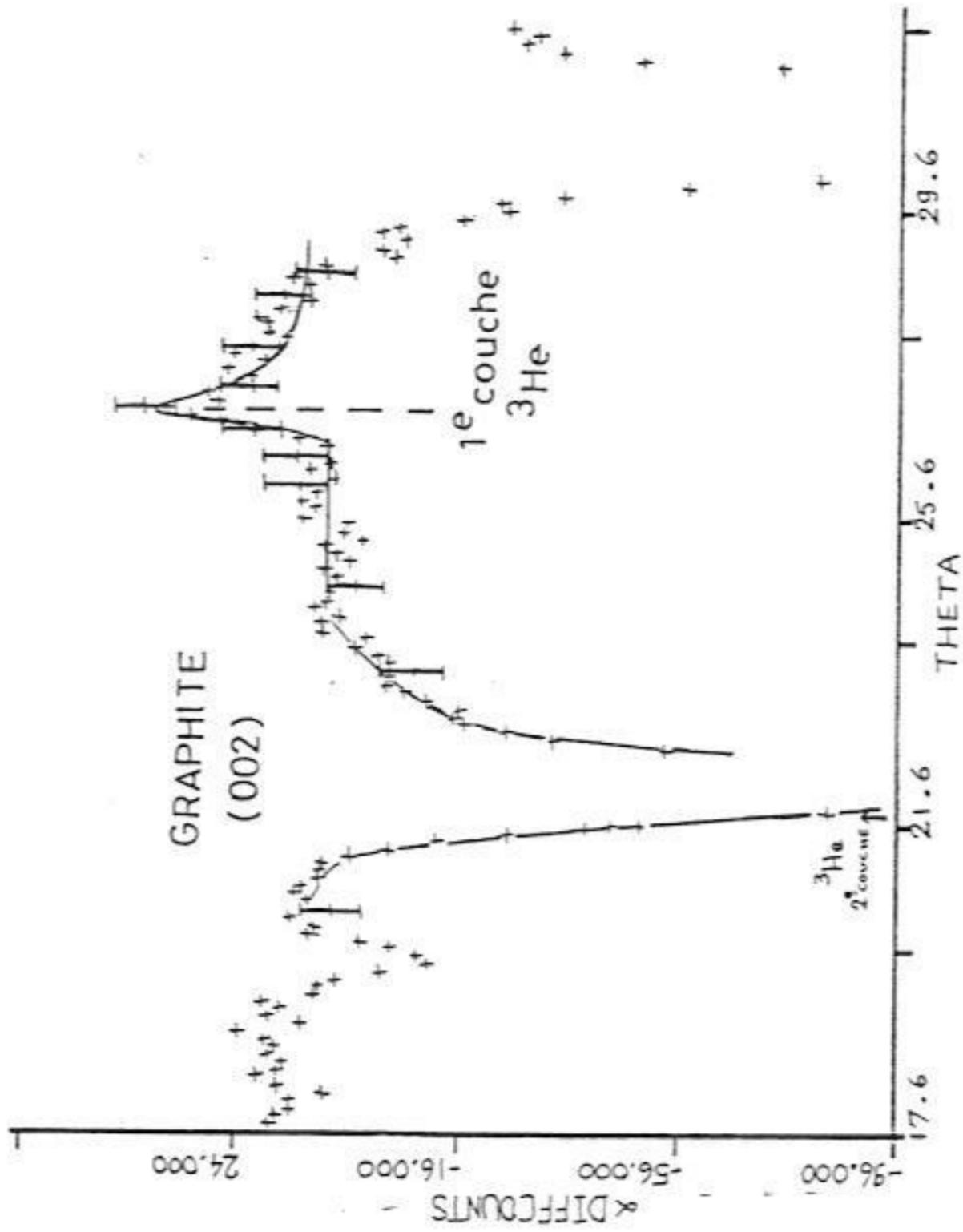
$I(T=0.15\text{K}) - I(T=12\text{K})$


Fig. V-18 : Raie de diffraction de neutrons de la 1^{ère} couche de ³He / ZWX.

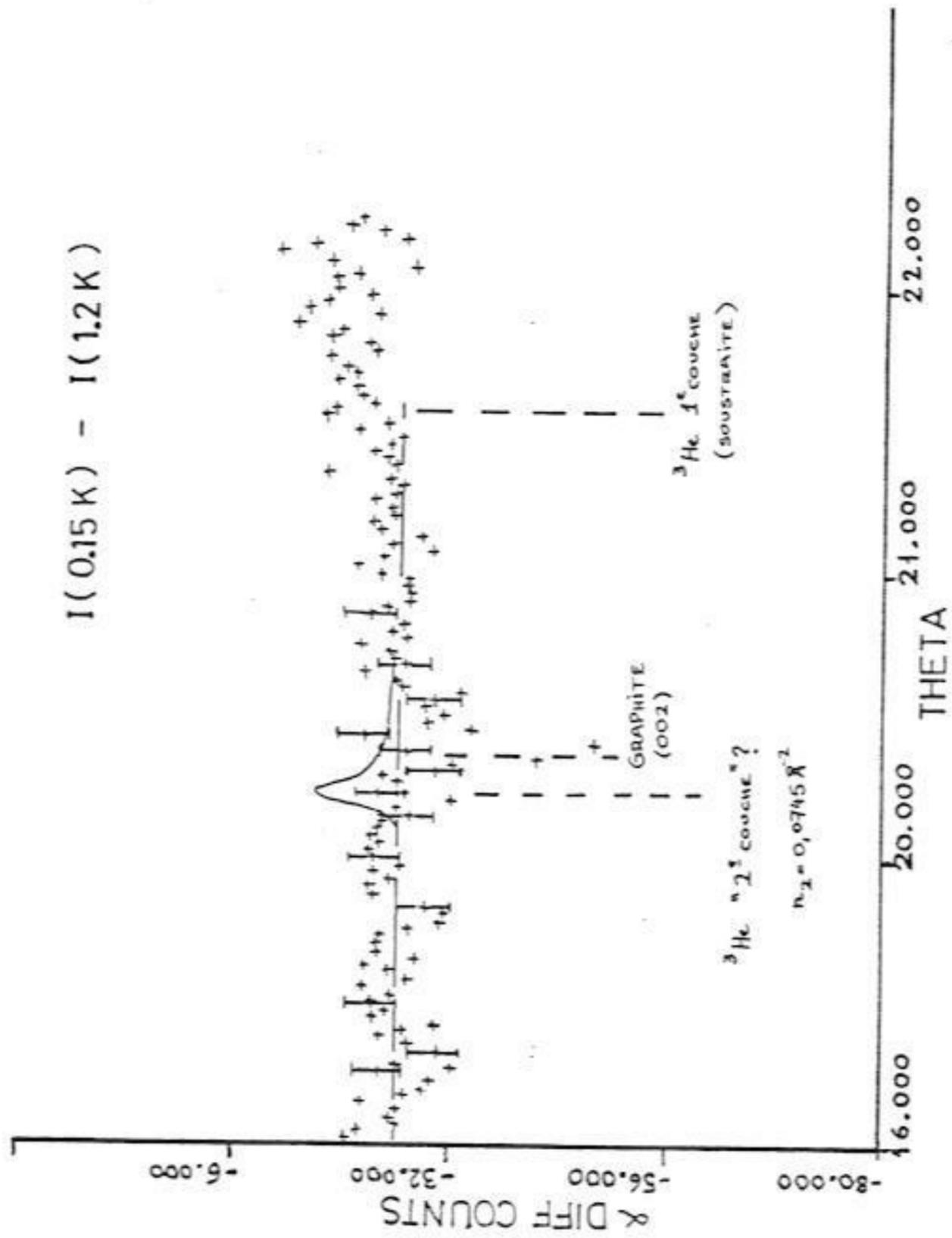


Fig. V-19 : La raie de diffraction de neutrons attendue de la 2^e couche solide (représentée par un trait continu), comparée a nos mesures (Lauter et al. 1981).

La deuxième couche, par contre, ne serait pas observable sur ce spectre, à cause d'un signal provenant de la raie (002) du graphite.

Cet effet peut être minimisé en retranchant du spectre à 0.15 K un spectre obtenu à une température plus basse. Nous avons choisi 1.2 K, afin de rester au-dessus de la température présumée de liquéfaction de la 2^e couche (Van Sciver et Vilches, 1978).

Dans ce cas, nous obtenons le spectre représenté sur la figure V-19.

Le pic de la deuxième couche, présent aussi bien à 0.15 K qu'à 1.2 K, est ainsi éliminé par soustraction.

L'effet du pic (002) du graphite est également réduit.

La raie superposée à la figure V-19 représente le signal attendu par comparaison avec celui de la 2^e couche, solide, de l'⁴He ; bien que les barres d'erreur soient importantes, il ne semble pas qu'une telle contribution ne soit présente dans le cas de l'³He/graphite : la deuxième couche serait donc liquide, en accord avec nos mesures de RMN, et en contradiction avec celles de capacité calorifique (Van Sciver et Vilches).

Les limitations de temps de mesure rendent difficile une meilleure précision aux neutrons. Par contre, les techniques de thermalisation développées pour cette expérience ouvrent d'excellentes possibilités de mesures de RMN au millikelvin sur de l'³He / grafoil à faible taux de couverture. Nous travaillons actuellement sur ce projet (en particulier, le système de RMN couplé à un ordinateur, cf. III-C).

V - E - CONCLUSION

Sur un substrat homogène (le grafoil), nous avons retrouvé les résultats obtenus par différentes équipes sur des substrats inhomogènes (poudre de carbone, d'aluminium, Vycor, mylar, etc...) : la susceptibilité est augmentée à la surface (loi de Curie-Weiss), les temps de relaxation sont très courts, en linéaires en température au dessous de $T \sim 0.3$ K.

Nous avons de plus déterminé que le nombre d'atomes concerné correspond à une couche ; ce résultat est confirmé par les mesures de Bozler et al. (USC) sur le même substrat, mais contredit ceux du groupe de Helsinki, où plus de cinq couches contribuent au magnétisme de surface. Dans ce cas, il faut considérer d'une part que le substrat est inhomogène, et d'autre part que l'analyse des formes de raie conduisant à ces résultats (somme de deux Lorentziennes) est infirmée par notre observation directe de raies de forme compliquée, élargies par des gradients de champ locaux.

De nombreux modèles ont été proposés afin d'expliquer le ferromagnétisme de surface. Il semble difficile que l'échange ou le nombre de lacunes dans la première couche solide, très compacte, soient assez importants pour expliquer les résultats. La situation serait plus favorable dans une deuxième couche solide, mais celle-ci est liquide, du moins pour $^3\text{He} / \text{grafoil}$ et $^3\text{He} / \text{Al}_2\text{O}_3$, d'après nos mesures.

Les modèles d'échange via le liquide peuvent expliquer les résultats, mais restent sur un plan très qualitatif.

Le ferromagnétisme itinérant du liquide peut expliquer à la fois la susceptibilité et les temps de relaxation, mais plus d'une couche devrait être alors impliquée dans le comportement de Curie-Weiss, la première couche étant nécessairement solide et magnétique. Les résultats de Helsinki favorisent nettement cette théorie. Dans ce cas, il est nécessaire de supposer que les résultats de USC et Grenoble sous-estiment la contribution de Curie-Weiss, soit dans la détermination du nombre d'atomes du solide, soit par incapacité de détecter le signal RMN de la première couche.

La situation expérimentale et théorique est par conséquent particulièrement complexe, et reflète la richesse de la physique sous-jacente, par rapport à l'étude de l' ^3He solide 3-D.

Nous avons discuté principalement les résultats de $^3\text{He} / \text{grafoil}$; il est probable que la structure des couches solides soit différente sur d'autres substrats homogènes, tel MgO ; ceci fournirait une gamme de systèmes mettant à l'épreuve les théories de magnétisme à 2-D.

CHAPITRE VI

CONCLUSION

Nous résumons dans cette section les conclusions détaillées des chapitres IV et V.

Nous avons montré au chapitre IV que la description par la théorie d'échange multiple à 3 et 4 spins est la seule à pouvoir rendre compte de nos résultats concernant l'aimantation, l'entropie et le diagramme de phases de l' ^3He solide. Nos mesures ont d'ailleurs fortement contribué à imposer ce modèle.

Il est probablement excessif de prétendre que le problème est définitivement résolu ; l'expérience du modèle d'Heisenberg devrait suffire à nous en convaincre ; pourtant, il est satisfaisant de disposer d'un Hamiltonien de premiers principes qui décrit un vaste ensemble de résultats expérimentaux uniquement à l'aide de deux paramètres ajustables.

Les mesures sur l' ^3He liquide en géométries confinées font intervenir les couches solides adsorbées, des couches liquides de forte densité, et du liquide massif. Il n'existe que très peu d'expériences, ce sujet de recherche étant très récent. Nos mesures de susceptibilité sur un substrat homogène (le grafoil) montrent qu'une seule couche d' ^3He adsorbé suit une loi de Curie-Weiss. Le temps de relaxation magnétique du liquide sur les parois est rapide, et linéaire dans une large gamme de températures.

L'addition de 2.7 couches d' ^4He supprime la contribution de Curie-Weiss, et T_1 augmente de deux ordres de grandeur.

Des résultats similaires sont obtenus sur l'alumine (χ , T_1) et le platine (T_1).

Plusieurs modèles théoriques ont été proposés pour expliquer la tendance au ferromagnétisme observée en géométries confinées : d'une part ceux qui l'attribuent au solide 2-D (échange multiple, ou indirect, lacunes), et d'autre part la théorie

des paramagnons de l' ^3He liquide.

Les expériences actuelles, très préliminaires, ne permettent pas de trancher ; en particulier, il existe un désaccord fondamental au sujet du nombre de couches impliquées dans le magnétisme de surface (une pour USC et Grenoble, substrats homogènes et hétérogènes, et plus de cinq pour Helsinki, sur des substrats hétérogènes).

En tenant compte des problèmes expérimentaux pouvant affecter raisonnablement les mesures existant jusqu'à présent, nous pensons que les modèles d'échange indirect par le liquide de Sokoloff et Widom et celui de ferromagnétisme du liquide de Béal-Monod, Doniach, Mills, Spanjaard sont les plus vraisemblables.

Ces mesures préliminaires ouvrent un nouveau domaine de recherches, directement relié à la physique des phases solide et liquide de l' ^3He , du transfert thermique à très basses températures (Kapitza magnétique), et de la relaxation magnétique sur les parois (mesures sur l' ^3He solide à fort champ, dans des cellules Pomeranchuk, ^3He liquide polarisé).

A P P E N D I C E I

RESISTANCE THERMIQUE DE KAPITZA

Des poudres d'argent frittées (taille des particules $\leq 1 \mu$) sont utilisées dans notre laboratoire afin d'obtenir un bon contact thermique avec l'hélium liquide à très basses températures.

Les échangeurs en argent des réfrigérateurs à dilution nous ont permis d'atteindre 2 mK en opération continue (Frossati et al. 1978) ; une cellule contenant de l'hélium a été refroidie par désaimantation nucléaire du cuivre au dessous de 0.4 mK avec de l' ^3He pur, et 1.6 mK avec un mélange $^3\text{He} + ^4\text{He}$ ($x_3 = 6.4 \%$) ; finalement, des cellules similaires (voir chapitre V) ont été placées dans la boîte à mélange du réfrigérateur à dilution, et refroidies jusqu'à leur température minimale.

Au cours de ces expériences, nous avons mesuré la résistance thermique (ou de Kapitza) entre l' ^3He ou les mélanges et l'argent fritté, le cuivre-nickel, et d'autres matériaux utilisés en cryogénie.

Le saut de température à l'interface est donné par l'expression suivante, $\Delta T = R_K \dot{Q}$ qui définit la résistance de Kapitza R_K ; \dot{Q} est le flux de chaleur à travers l'interface.

R_K étant inversement proportionnel à la surface de contact σ , on définit une résistivité ρ_K et une conductivité de Kapitza ρ_K^{-1} :

$$\rho_K = R_K \sigma$$

(unités : $\text{K m}^2 / \text{W}$)

Entre 10 et 100 mK, le flux de chaleur est dû aux phonons et la dépendance en température de ρ_K est proche de T^{-3} , en accord semi-quantitatif avec la théorie de Khalatnikov. Au dessous de 10 mK, un mécanisme parallèle semble améliorer le transfert thermique, probablement par couplage entre les spins de l' ^3He et ceux du solide.

La résistance thermique devient très importante à basses températures ; pour des valeurs typiques de ρ_K , de l'ordre de $10^6 \text{ K m}^2 / \text{W}$ à 1 mK, même avec 10 m^2 de surface d'échange on obtient un saut de température de 0.1 mK par nanowatt.

Un article de revue à ce sujet a été publié récemment par Harrison (1979) ; des détails plus techniques sont donnés par Lounasmaa (1975).

La figure A1-1 résume l'ensemble des résultats.

On observe que les poudres présentent une résistivité plus élevée lorsqu'on diminue la taille des particules (comparer Ag 1μ - mélange et Ag 400 \AA - mélange) ; la surface spécifique est évidemment plus importante. Il n'existe pas de mesures systématiques permettant de déterminer la taille de grains optimale.

Au dessous de 10 mK, on observe une variation de $\rho_K \propto T^{-1}$ pour les métaux en contact avec 1^3He pur. Nous avons mesuré une variation de $\rho_K \propto T^{-2}$ dans les mélanges : ceci est confirmé par une mesure très récente d'Osheroff (communication privée). Nous avons observé une déviation en T^{-1} par rapport à la loi en T^{-2} au-dessous de 2.5 mK ; les mesures d'Osheroff ne montrent pas de déviation ; notre expérience a été réalisée en introduisant d'abord 1^3He pur dans le fritté, puis 1^4He , à froid : il est possible que de 1^3He soit resté piégé dans le fritté (points de forte adsorption), améliorant le contact thermique.

Nous obtenons ainsi :

1) $10 \text{ mK} < T < 100 \text{ mK}$

- Ag 1μ - mélange : $\rho_K = \frac{4 \times 10^{-2}}{T^3} \frac{\text{K}^4 \text{ m}^2}{\text{W}}$ soit $\alpha = \frac{1}{\rho_K T^3} = 25 \left(\frac{\text{K}^4 \text{ m}^2}{\text{W}} \right)^{-1}$

- Ag 1μ - ^3He pur (Andres et Sprenger, 1975), pratiquement les valeurs précédentes (ligne brisée figure A1-1).

- Ag 700 \AA - mélange $\rho_K = \frac{0.24}{T^3} \text{ K}^4 \text{ m}^2 / \text{W}$ soit $\alpha = 4.2 \left(\frac{\text{K}^4 \text{ m}^2}{\text{W}} \right)^{-1}$

- Cu-Ni - mélange $\rho_K = \frac{6 \times 10^{-3}}{T^3} \text{ K}^4 \text{ m}^2 / \text{W}$ soit $\alpha = 170 \left(\frac{\text{K}^4 \text{ m}^2}{\text{W}} \right)^{-1}$

- Epibond 100 \AA - ^3He (Anderson et al. 1961) $\rho_K = \frac{3 \times 10^{-3}}{T^3} \text{ K}^4 \text{ m}^2 / \text{W}$

- Kapton - mélange (Hébral, thèse 1978) $\rho_K = \frac{1.8 \times 10^{-3}}{T^3} \text{ K m}^2 / \text{W}$

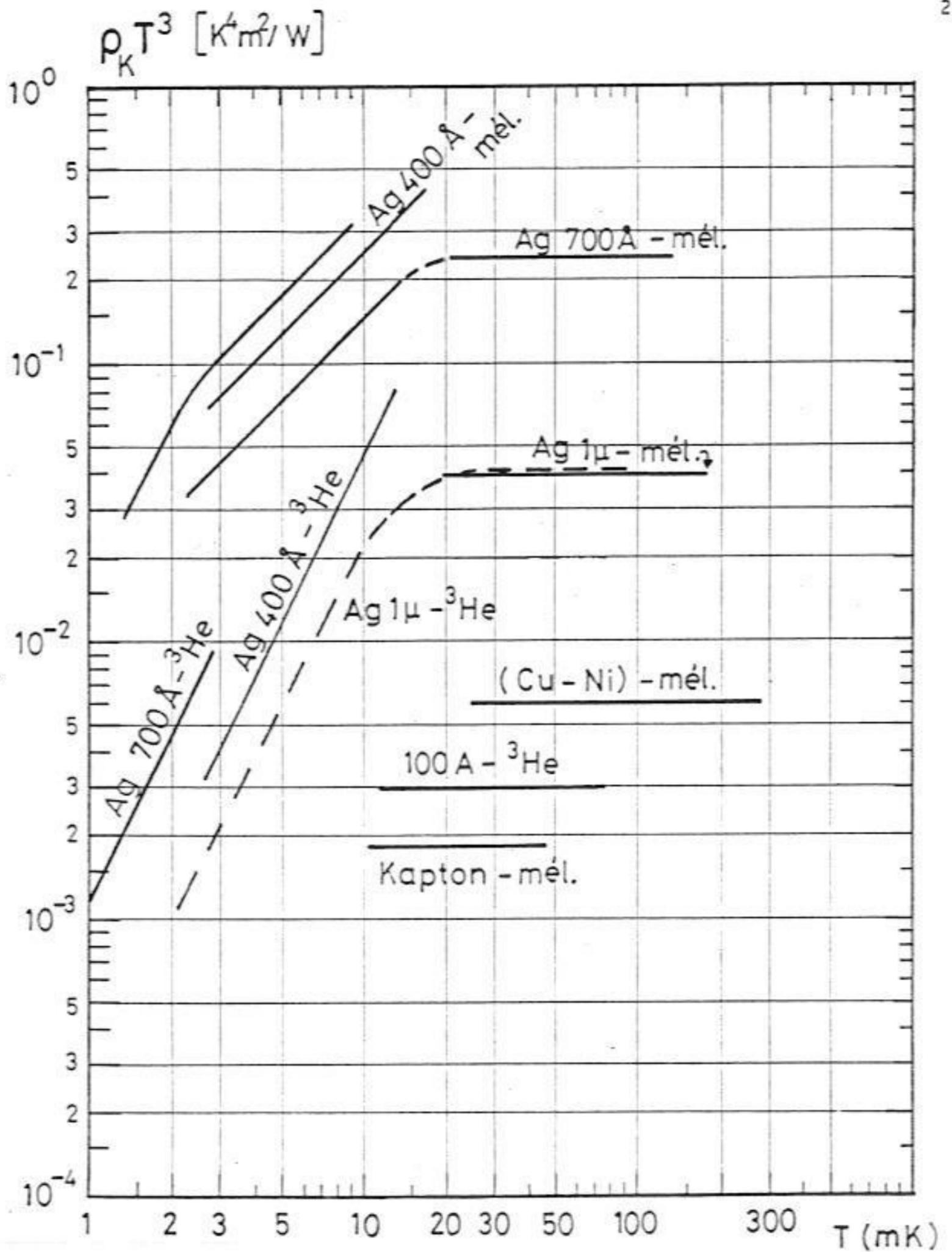


Fig. A-1 : Résistance de Kapitza.

2) T < 10 mK

$$- \text{Ag } 700 \text{ \AA} - {}^3\text{He} \quad \rho_K = \frac{1100}{T} \text{ K}^2 \text{ m}^2 / \text{W}$$

nos résultats sont en accord avec ceux de Ahonen, Lounasmaa et Veuro (1978).

$$- \text{Ag } 400 \text{ \AA} - {}^3\text{He} \quad \rho_K = \frac{470}{T} \text{ K}^2 \text{ m}^2 / \text{W}$$

$$- \text{Ag } 700 \text{ \AA} - \text{mélange} \quad \rho_K = \frac{14}{T^2} \text{ K}^2 \text{ m}^2 / \text{W}$$

$$\text{soit } \alpha' = \frac{1}{\rho_K T^2} = 7.1 \times 10^{-2} \text{ W} / \text{K}^2 \text{ m}^2$$

$$- \text{Ag } 400 \text{ \AA} \text{ mélange} \quad \rho_K = \frac{35}{T^2} \text{ K}^2 \text{ m}^2 / \text{W}$$

remarquons que cette valeur est supérieure à celle que l'on mesure pour la poudre de 700 Å, malgré que l'on obtienne une valeur inférieure avec de l'³He pur (ce dernier effet étant probablement relié à l'incertitude sur les surfaces estimées).

Nous pensons que l'³He peut être exclu du fritté par l'⁴He (voir chapitre V), ce qui diminuerait la conductance de Kapitza et la conductivité thermique du liquide confiné.

La deuxième courbe "Ag 400 Å - mélange" (pour 3 < T < 10 mK) correspond en fait à la cellule utilisée au chapitre V : 2.7 couches d'⁴He recouvrent les surfaces, ce qui suffit à retrouver la valeur de ρ_K des mélanges.

Nous avons utilisé des plaquettes de poudre d'argent frittée d'une épaisseur inférieure à 2 mm, afin d'éviter des gradients de température dans le fritté. Cet effet a été étudié dans le cuivre par Krusius, Paulson et Wheatley (1978).

Une étude plus systématique de la variation de la résistance thermique totale en fonction de la taille des particules et de l'épaisseur du fritté serait utile pour améliorer les techniques cryogéniques à très basses températures, et en particulier les réfrigérateurs à dilution.

APPENDICE II

UNITES

Nous avons utilisé le système international d'unités (S.I.) ; le tableau suivant (Bleaney, B.I. et Bleaney, B., Electricity and Magnetism Oxford 1965) fournit les équivalences avec les valeurs en unités cgs.

Quantity	Unit in m.k.s. system	Unit in c.g.s. system	Factor by which quantity in m.k.s. system must be multiplied to convert to c.g.s. system
Length	Metre	Centimetre	10^2
Mass	Kilogramme	Gramme	10^3
Time	Second	Second	1
Density	kg/metre ³	g/cm ³	10^{-3}
Force	Newton or kg-metre-sec ⁻²	Dyne	10^5
Couple	Newton-metre	Dyne-cm	10^7
Work	Joule or newton-metre	Erg	10^7
Power	Watt, joule-sec ⁻¹ or volt-ampere	Erg-second ⁻¹	10^7
Charge q	Coulomb	e.m.u.	$\frac{1}{3}$
Current i	Ampere	e.m.u.	$\frac{1}{3}$
Potential V	Volt	e.m.u.	10^8
Electric displacement D	Coulomb-metre ⁻²	e.s.u.	$12\pi \times 10^4$
Electric intensity E	Volt-metre ⁻¹ or newton-coulomb ⁻¹	e.s.u.	$\frac{1}{3} \times 10^{-4}$
Electric polarization P	Coulomb-metre ⁻²	e.s.u.	3×10^4
Inductance L	Henry	e.m.u.	10^9
Resistance R	Ohm	e.m.u.	10^9
Capacitance C	Farad	e.s.u.	9×10^{11}
Magnetic field B	Weber-metre ⁻²	e.m.u.	10^4
Magnetic field H	Ampere-metre ⁻¹	e.m.u.	$4\pi \times 10^{-3}$
Magnetomotive force	Ampere	e.m.u.	$4\pi/10$
Magnetic flux N	Weber	e.m.u.	10^8
Intensity of magnetization M	Ampere-metre ⁻¹	e.m.u.	10^{-3}
Magnetic moment m	Ampere-metre ²	e.m.u.	10^3
Volume susceptibility χ	m.k.s./metre ³	e.m.u./cm ³	$1/4\pi$
Mass susceptibility	m.k.s./kg	e.m.u./g	$10^3/4\pi$
Gramme-molar susceptibility	m.k.s./g-mole	e.m.u./g-mole	$10^4/4\pi$

Where a factor 3 appears in the table, it involves the approximation $c = 3 \times 10^{10}$ cm/sec. To the same approximation, since by definition

$$\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ henry metre}^{-1},$$

we have

$$\epsilon_0 = \frac{1}{36\pi} \cdot 10^{-9} \text{ farad metre}^{-1},$$

$$Z_0 (\text{free space}) = 120\pi \text{ ohm.}$$

Autres conversions d'unités utiles :

- Induction magnétique (B) : 1 T (Tesla) = 1 Wbm⁻²
= 1 Vsm⁻²
= 10⁴ Gauss
- Pression 1 Pa = 1 N/m² = 10⁻⁵ bars
= 9,869 x 10⁻⁶ atm
= 7,501 x 10⁻³ mm Hg (torr)
= 1,450 x 10⁻⁴ lb/in²

$$\begin{aligned} 1 \text{ mm Hg (torr)} &= 133,3 \text{ Pa} \\ 1 \text{ atm} &= 101,3 \text{ kPa} \\ 1 \text{ bar} &= 0,1 \text{ MPa} \end{aligned}$$

Aimantation, Susceptibilité

Système cgs

$$\begin{aligned} \vec{B} &= \vec{H} + 4\pi\vec{M} \\ \chi &= \frac{M}{H} \approx \frac{M}{B} \end{aligned}$$

Susceptibilité par gramme : $\chi_g = \chi / \text{densité} [\text{cm}^3/\text{g}]$

$$B = \mu H \quad \mu = 1 + 4\pi\chi$$

Système international (S.I)

$$\begin{aligned} B &= \mu_0 (\vec{H} + \vec{M}) \\ [\text{T}] \quad & [\text{Am}^{-1}] \\ \chi &= \frac{M}{H} \approx \mu_0 \frac{M}{B} \end{aligned}$$

$$\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$$

$$B = \mu H \quad \mu = \mu_r \mu_0 \quad \mu = \mu_0 (1 + \chi) \quad \mu_r = 1 + \chi$$

Energie emmagasinée dans le champ

$$U = \frac{1}{2} \int \vec{H} \cdot \vec{B} \, dV \text{ (SI)}, \quad U = \frac{1}{8\pi} \int \vec{H} \cdot \vec{B} \, dV \text{ (cgs)}$$

R E F E R E N C E S

- Aalto, M.I. ; Berglund, P.M. ; Collan, H.K. ; Ehnholm, G.J. ; Gylling, R.G. ; Krusius, M. ; Pickett, G.R. : *Cryogenics* 12, 184 (1972).

- Aalto, M.I. ; Collan, H.K. ; Gylling, R.G. ; Nores, K.O. : *Rev. Sci. Instr.* 44, 1075 (1973).

- Abel, W.R. ; Anderson, A.C. ; Wheatley, J.C. : *Rev. Sci. Instr.* 35, 444 (1964).

- Abragam, A. : *The principles of nuclear magnetism*. Clarendon Press, Oxford (1961). (Les pages indiquées dans ce texte correspondent à l'édition française, Bibliothèque des Sciences et des Techniques Nucléaires (1961)).

- Abragam, A. : *C.R. Acad. Sci. (Paris)* 284, 255 (1977).

- Abraham, B.M. ; Brandt, O. ; Eckstein, Y. ; Ketterson, J.B. ; Kuchnir, M. ; Roach, P. : *Phys. Rev.* 187, 273 (1969).

- Adams, E.D. : *Proc. ULT Hakoné Symp.* (1977) ed. T. Sugawara, S. Nakajima, T. Ohtuska, T. Usui. : *Phys. Soc. of Japan* (1978). Progress toward understanding magnetic ordering in solid ³He.

- Adams, E.D. ; Delrieu, K.M. ; Landesman, A. : *J. Phys. (Paris) Lett.* 39, L 190 (1978).

- Adams, E.D. ; Schuberth, E.A. ; Hass, G.E. ; Bakalyar, D.M. : *Phys. Rev. Lett.* 44, 789 (1980).

- Ahonen, A.I. ; Berglund, P.M. ; Haikala, M.T. ; Krusius, M. ; Lounasmaa, O.V. ; Paalanen, M.A. : *Cryogenics*, p. 521, Sept. 1976.

- Ahonen, A.I. ; Alvesalo, T.A. ; Haavasoja, T. ; Veuro, M.C. : *J. Phys. (Paris)* 39, C6-285 (1978).

- Ahonen, A.I. ; Alvesalo, T.A. ; Haavasoja, T. ; Veuro, M.C. : *Phys. Rev. Lett.* 41, 495 (1978).

- Ahonen, A.I. ; Kokko, J. ; Lounasmaa, O.V. ; Paalanen, M.A. ; Richardson, R.C. ; Schoepe, W. ; Takano, Y. : in *Quantum Fluid and Solids*, ed. S.B. Trickey, E.D. Edwards, and J.W. Dufty. Plenum Press, N.Y. p. 171 (1977).

- Ahonen, A.I. ; Kodama, T. ; Krusius, M. ; Paalanen, M.A. ; Richardson, R.C ; Schoepe, W. ; Takano, Y. : J. Phys. C : Solid State Phys. 9, 1665 (1976).
- Ahonen, A.I. ; Lounasmaa, O.V. ; Veuro, M.C. : J. Phys. (Paris) 39, C6-265 (1978).
- Albers, R.C. ; Wilkins, J.W. : J. Low Temp. Phys. 34, 105 (1979).
- Alloul, H. ; Froideveaux, C. : Phys. Rev. 163, 324 (1974).
- Alvesalo, T.A. ; Collan, H.K. ; Lojonen, M.T. ; Lounasmaa, O.V. ; Veuro, M.C. ; : J. Low Temp. Phys. (1975).
- Anderson, A.C. : Temperature : Its Measurement and Control in Science and Industry, 4, 773 (1973).
- Anderson, A.C. ; Edwards, D.O. ; Roach, W.R. ; Sarwinski, R.E. ; Wheatley, J.C Phys. Rev. Lett. 17, 367 (1966).
- Anderson, A.C. ; Salinger, G.L. ; Steyert, W.A. ; Wheatley, J.C. : Phys. Rev. Lett. 6, 331 (1961).
- Anderson, A.C. ; Roach, W.R. ; Sarwinski, R.E. ; Wheatley, J.C. : Phys. Rev. Lett. 16, 263 (1966).
- Andreev, A.F. ; Lifshitz, I.M. : Sov. Phys. JETP 29, 1107 (1969)
- Andreev, A.F. ; Marchenko, V.I. ; Meierovich, A.E. : Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. 26, 40 (1977), (JETP Lett. 26, 36 (1977)).
- Andreev, A.F. ; Lifshitz, I.M. : Zh. Eksp. Teor. Fiz. 29, 1107 (1969)
- Andres, K. ; Sprenger, W.O. : Proc. 14th Int. Conf. Low Temp. Phys., Ottaniemi, Finland (1975).
- Armitage, J.G.M. ; Farquhar, I.E. : The Helium Liquids, Academic Press (1975).
- Atkins, K.R. : Can. J. Phys. 32, 347 (1954).
- Avenel, O. ; Piéjus, P. ; Varoquaux, E.J. : IEEE Trans. Instr. Meas, 19, 408 (1970).
- Bakalyar, D.M. ; Britton, C.V. ; Adams, E.D. ; Hwang, Y.C. : Phys. Lett. A 64, 208 (1977).
- Baker, J.A. ; Gilbert, H.E. ; Eve, J. ; Rushbrooke, G.S. : Phys. Rev. 164, 800 (1976).
- Balibar, S. ; Castaing, B. : J. Phys. (Paris) Lett. 41, L329 (1980).

- Bardeen, J. ; Baym, G. ; Pines, D. : Phys. Rev. 156, 207 (1967).
- Béal-Monod, M.T. ; Mills, D.L. ; J. Low Temp. Phys 213, 433 (1981).
- Béal-Monod, M.T. : Commun. Phys. 2, 199 (1977).
- Béal-Monod, M.T. ; Ma, S.K. ; Fredkin, D.R. : Phys. Rev. Lett. 20, 929 (1968).
- Béal-Monod, M.T. ; Theumann, A. : Proc. Conf. Lake Geneva, Wisconsin, May 1980.
- Béal-Monod, M.T. ; Mills, D.L. : J. Phys. (Paris) 39, C6-290 (1979).
- Bean, C.P. ; Rodbell, D.S. : Phys. Rev. 126, 104 (1962).
- Berk, N.F. ; Schrieffer, J.R. : Phys. Rev. Lett. 17, 433 (1966).
- Bernardes, N. ; Primakoff, H. : Phys. Rev. 119, 968 (1960).
- Bernardes, N. ; Primakoff, H. : Phys. Rev. Lett. 119, 968 (1960).
- Bernat, T.P. ; Cohen, H.D. : Phys. Rev. A 1, 1709 (1973).
- Bernier, M. ; Delrieu, J.M. : Phys. Lett. 60A, 156 (1977),
- Bertmann, B. ; Kitchens, T.A. : Cryogenics, Février 1968.
- Betts, D.S. : Refrigeration and Thermometry below 1 K. Sussex University Press (1976).
- Bienfait, M. ; Dash, J.G. ; Stoltenberg, J. : Phys. Rev. B 21, 2765 (1980).
- Black, M.A. ; Hall, H.E. ; Thompson, K. : J. Phys. C4, 129 (1971).
- Black, W.C. ; Roach, W.R. ; Wheatley, J.C. : Rev. Sci. Instr. 35, 587 (1964).
- Black, W.C. ; Hirschkopff, E.C. ; Mota, A.C. ; Wheatley, J.C. : Rev. Sci. Instrum. 40, 6 (1969).
- Bloembergen, N. ; Purcell, E.M. ; Pound, R.V. : Phys. Rev. 73, 679 (1948).
- Bloyet, D. ; Ghozlan, A.C. ; Piéjus, P. ; Varoquaux, E.J. : Proc. 13th Int. Conf. on Low Temp. Phys., Plenum Press, N.Y. (1973) b.
- Bloyet, D. ; Piéjus, P. ; Varoquaux, E.J. ; Avenel, O. : Rev. Sci. Instr. 44, 383 (1973) a.
- Bozler, H.M. ; Bartolac, T. ; Luey, K. ; Thomson, A.L. : J. Phys.(Paris) 39, C6-283 (1978).
- X - Bozler, H. ; Bartolac, T. ; Luey, K. ; Thomson, A.L. : Phys. Rev. Lett. 41, 490 (1978).

- Bretz, M. ; Dash, J.G. ; Hickernell, D.C. ; Mc Lean, E.O. ; Vilches, O.E. :
Phys. Rev. A8, 1589 (1973).
- Brewer, D.F. : J. Low Temp. Phys. 3, 205 (1970).
- Brewer, D.F. : (éd.). Quantum Fluids, North Holland, Amsterdam (1966).
- Brinkman, W.F. ; Rice, T.M. : Phys. Rev. B2, 1324 (1970).
- Buchal, C. ; Hanssen, J. ; Mueller, R.M. ; Pobell, F. : Rev. Sci. Instr.,
49, 1360 (1978).
- Butterworth, G.J. ; Finn, C.B.P. ; Kiymac, K. : J. Low. Temp. Phys. :
15, 537 (1974).
- Canning, F.X. ; Guyer, R.A. : J. Low Temp. Phys; 39, 63 (1980).
- Canning, F.X. ; Guyer, R.A. : J. Low Temp. Phys. 39, 63 (1980).
- Careri, G. ; Modena, I. ; Santini, M. : Nuovo Cim. 13, 207 (1959).
- Carneiro, K. ; Ellenson, W. ; Passell, L. ; Mc Tague, J.P. ; Taub, H. :
Phys. Rev. Lett. 37, 1695 (1976).
- Castaing, B. ; Nozières, P. : J. Phys. (Paris) 40, 257 (1979).
- Castles, S.H. ; Adams, E.D. : Phys. Rev. Lett. 30, 1125 (1973)
- Castles, S.H. ; Adams, E.D. : J. Low Temp. Phys. 19, 397 (1975).
- Chapellier, M. ; Frossati, G. ; Rasmussen, F.B. : Phys. Rev. Lett. 42, 904
(1979).
- Cooke, A.H. : Prog. in Low. Temp. Phys. (ed. C.J. Gorter), North Holland
Pub. Co., Vol I, p. 237 (1955).
- Creswell, D.J. ; Brewer, D.F. ; Thomson, A.L. : Phys. Rev. Lett. 29, 1114
(1972).
- Corrucini, L. ; Osheroff, D.D. : Phys. Rev. B 17, 126 (1978). Pulsed NMR
experiments in superfluid ³He.
- Cowan, B.P. ; Richards, M.G. ; Thomson, A.L. ; Mullin, W.J. : Phys. Rev.
Lett. 38, 165 (1977).
- Das, P. ; de Bruyn Outbater, R. ; Taconis, K.W. : Proc. 9th Int. Conf. on
Low Temp. Phys., Plenum Press, London, p. 1253 (1965).

- Dash, J.G. : Phys. Rep. C38, 179 (1978).
- Dash, J.G. : Liquid Helium Films, in Quantum Liquids, ed. J. Ruvalds and T. Regge, North Holland Publ. Co. (1978).
- Dash, J.G. : Films on solid surfaces, Academic Press, N.Y. (1975).
- Daunt, J.G. : in Monolayer and Submonolayer helium films, ed. by J.C. Daunt and E. Lerner, Plenum Press, N.Y. (1973).
- Dawber, P.G. ; Finn, C.B.P. ; Kiymac, K. : J. Low Temp. Phys. 35, 153 (1979).
- De Long, L.E. ; Symko, O.G. ; Wheatley, J.C. : Rev. Sci. Instrum. 42, 147 (1971).
- Delrieu, J.M. ; Roger, M. ; Hetherington, J.H. : J. Phys. (Paris) 41, C7-231 (1980).
- Delrieu, J.M. ; Roger, M. : J. Phys. (Paris) 39, C6-123 (1978).
- Delrieu J.M. ; Roger, M. ; Hetherington, J.H. : J. Low Temp. Phys. 40, 71 (1980)
- Deville, G. ; Bernier, M. ; Delrieu, J.M. : Phys. Rev. B 19, 5666 (1979)
- Dirac, P.A.M. : The principles of Quantum Mechanics, Clarendon Press, Oxford (1947).
- Dirac, P.A.M. : Proc. Roy. Soc. (London) A 123, 714 (1929)
- Doniach, S. ; Engelsberg, S. : Phys. Rev. Lett. 17, 750 (1966).
- Dundon, J.M. ; Goodkind, J.M. : J. Low Temp. Phys. 18, 315 (1975).
- Dundon, J.M. ; Goodkind, J.M. : Phys. Rev. Lett. 32, 1343 (1974).
- Ebner, C. ; Edwards, D.O. : Phys. Rep. 2C, 77 (1971).
- Eckstein, Y. ; Landau, J. ; Lipson, S.G. ; Olami, Z. : Phys. Rev. Lett. 45, 1805 (1980).
- Edwards, D.O. ; Brewer, D.F. ; Seligman, P. ; Skertic, M. ; Yaqub, M. : Phys. Rev. Lett. 15, 367 (1966).
- Fisher, R.A. ; Hornung, E.W. ; Brodale, G.E. ; Giauque, W.F. : Journ. Phys. 58, 5584 (1973).
- Fisk, D.J. ; Hall, J.E. : Proc. 13th Int. Conf. on Low Temp. Phys, Boulder (1972).

- Franchetti, S. : Nuovo Cimento 4, 1504 (1956).
- Frippiat, J. ; Chaussidon, J. ; Jelli, A. : Chimie - Physique des Phénomènes de Surface, ed. Masson et Cie. (1971).
- Frossati, G. ; le G. Gilchrist, J. ; Godfrin, H. ; Thoulouze, D. : Proc. ULT Hakoné Symp., T. Sugawara, S. Nakajima, T. Ohtsuka and T. Usui eds., Physical Society of Japan, Tokyo, p. 312 (1978).
- Frossati, G. ; Godfrin, H. ; Hébral, B. ; Schumacher, G. ; Thoulouze, D. Proc. ULT Hakoné Symposium, Physical Society of Japan (1978).
- Frossati, G. ; le G. Gilchrist, J. ; Lasjaunias, J.C. Meyer, W. : J. Phys. C., 10, L 515 (1977 c).
- Frossati, G. ; le G. Gilchrist, J. : J. Phys. C., 10, L 509 (1977 b).
- Frossati, G. ; Maynard, R. ; Rammal, R. ; Thoulouze, D. : J. Phys. (Paris) Lett. 38, L 153 (1977 a).
- Frossati, G. : Thèse, Université de Grenoble (1978).
- Frossati, G. ; Schumacher, G. ; Thoulouze, D. : Proc. 14th Int. Conf. Low Temp. Phys., North Holland Publ. Comp., Amsterdam (1975).
- Frossati, G. : Proc. 15th Int. Conf. on Low Temp. Phys., Grenoble. J. de Phys. (Paris) 39, CG-1578 (1978).
- Fujii, G. ; Oda, Y. ; Kosuge, K. ; Nagano, H. : Proc. ULT-Hakoné Symposium, T. Sugawara, S. Nakajima, T. Ohtsuka and T. Usui eds. (Physical Society of Japan, Tokyo), p. 315 (1978).
- Garwin, R.L. ; Reich, H.A. : Phys. Rev. 115; 1478 (1959).
- Ghozlan, A. ; Varoquaux, E.J. : Comptes Rend. Acad. Sci. (Paris) B280, 189 (1975)
- Giauque, W.F. ; Fishcer, R.A. ; Hornung, E.W. ; Brodale, G.E. : Journ. Chem. Phys. 58, 2621 (1973).
- Giffard, R.P. ; Webb, R.A. ; Wheatley, J.C. : J. Low Temp. Phys. 6, 533 (1972).
- Godfrin, H. ; Frossati, G. ; Greenberg, A.S. ; Hébral, B. ; Thoulouze, D. : Phys. Rev. Lett. 44, 1695 (1980) a.
- Godfrin, H. : Trabajo Especial de Licenciatura. Bariloche (Argentine) (1973).
- Godfrin, H. ; Frossati, G. ; Thoulouze, D. ; Chapellier, M. ; Clark, W.G. : J. Phys. (Paris) 39, C6-287 (1978).

- Godfrin, H. ; Frossati, G. ; Hébral, B. ; Thoulouze, D. : J. Phys. (Paris) 41, C7-275 (1980).
- Godfrin, H. ; Frossati, G. ; Greenberg, A.S. ; Hébral, B. ; Thoulouze, D. : J. Phys. (Paris) 41, C7-125 (1980).
- Goldberg, H.A. ; Guyer, R.A. : J. Low Temp. Phys. 28, 449 (1977).
- Greywall, D.S. : Phys. Rev. Lett. 37, 105 (1976).
- Greywall, D.S. : Phys. Rev. B 15, 2604 (1977).
- Greywall, D.S. : Phys. Rev. B 15, 2604 (1977).
- Greywall, D.S. : Phys. Rev. B 18, 2127 (1978).
- Grilly, E.R. : J. Low Temp. Phys. 4, 615 (1971).
- Grivet, P. ; Legros, R. : Physique des Circuits, Masson (1960).
- Grover, F.W. : Inductance Calculations, Dover Publ. (1964).
- Gully, W.J. ; Osheroff, D.D. ; Lawson, D.T. ; Richardson, R.C. ; Lee, D.M. : Phys. Rev. A8, 1633 (1973).
- Guyer, R.A. ; Zane, L.I. : Phys. Rev. 188, 445 (1969).
- Guyer, R.A. : Phys. Rev. Lett. 39, 1091 (1977).
- Guyer, R.A. : J. Low Temp. Phys. 30, 1 (1978).
- Guyer, R.A. ; Kumar, D. : Preprint 1980).
- Guyer, R.A. : Phys. Rev. A 9, 1452 (1974).
- Guyer, R.A. ; Richardson, R.C. ; Zane, L.I. : Rev. Mod. Phys. 43; 532 (1971).
- Halperin, W.P. ; Archie, C.N. ; Rasmussen, R.B. ; Alvesalo, T.A. ; Richardson, R.C. : Phys. Rev. B 13, 2124 (1976).
- Halperin, W.P. ; Rasmussen F.B. ; Archie, C.N. ; Richardson, R.C. : J. Low Temp. Phys. 31, 617 (1978).
- Halperin, W.P. ; Archie, C.N. ; Rasmussen F.B. ; Buhrman, R.A. ; Richardson, R.C. : Phys. Rev. Lett. 32, 927 (1974).
- Hansen, J.P. : J. Phys. (Paris) 31, C3-67 (1970).
- Harrison, J.P. : J. Low Temp Phys 37, 467 (1979)

- Havens-Sacco, S.M. ; Widom, A. : J. Low Temp. Phys. 40; 357 (1980).
- Heald, S.M. : Thesis, University of Illinois (1976).
- Hébral, B. ; Frossati, G. ; Godfrin, H. ; Schumacher, G. ; Thoulouze, D. : J. Phys. (Paris) Lett. 40, L41 (1979).
- Hébral, B. ; Frossati, G. ; Godfrin, H. ; Thoulouze, D. ; Greenberg, A.S. : Phonon Scattering in Condensed Matter, ed. H.J. Maris, Plenum Publishing Corporation (1980).
- Hébral, B. : Thèse, Université de Grenoble (1978).
- Hedge, S.G. ; Daunt, J.G. : J. Low Temp. Phys. 32, 765 (1978) and J. Low Temp. Phys. 34, 233 (1978).
- Hensel, P. ; Smith, D.T. : Cryogenics, p. 121, March 1974.
- Héritier, M. ; Lederer, P. : Phys. Rev. Lett. 42, 1068 (1979).
- Héritier, M. ; Lederer, P. : J. Phys. (Paris) 39, C6-130 (1978).
- Héritier, M. ; Lederer, P. : J. Phys. (Paris) Lett. 38, L209 (1977).
- Héritier, M. : J. Phys. (Paris) Lett. 40, L451 (1979).
- Herring, C. : Magnetism, vol. II, et Rado & Suhl, Academic Press, N.Y. (1968).
- Herring, C. : Rev. Mod. Phys. 34 631 (1962).
- Hetherington, J.H. : J. Low Temp. Phys. 32, 173 (1978).
- Hetherington, J.H. : Phys. Rev. 176, 231 (1968).
- Hetherington, J.H. ; Willard, F.D.C. : Phys. Rev. Lett. 35, 1442 (1975).
- Hill, H.D.W. ; Richards, R.E. : J. Sci. Instr. (J. Phys. E) 1, 977 (1968).
- Hudson, R.P. : J. Low Temp. Phys. 36, 511 (1979).
- Hudson, R.P. and Pfeiffer, E.R. : Temperature, ed. H.H. Plumb, Instrument Society of America, Pittsburgh, Pa. Vol. 4, part 2, p. 1279 (1972).
- Hudson, R.P. ; Marshak, H. ; Soule, R.J. ; Utton, D.B. : Journ. Low Temp. Phys. 20, 1 (1975).
- Hull, J.R. et R.A. : J. Chem. Phys. 9, 465 (1941).

-
- Iordanskii, S.V. : J. Low Temp. Phys. 40, 401 (1980).
 - Jpatova, I.P. ; Eliashberg, G.M. : Zh. Eksp. Teor. Fiz. 43, 1795 (1962)
 - Isnard, R. ; Frossati, G. ; Gilchrist, J. ; Godfrin, H. : à paraître.
 - Isnard, R. ; Frossati, G. ; Gilchrist, J. ; Godfrin, H. : J. Chem. Phys. 52, 97 (1980).
 - Johnson, R.T. ; Wheatley, J.C. : Phys. Rev. A 1, 1836 (1970).
 - Johnson, R.T. ; Rapp, R.E. ; Wheatley, J.C. : J. Low Temp. Phys. 6, 445 (1972).
 - Keller, W.E. : Helium Three and Helium four. Plenum Press, N.Y. (1969).
 - Kelly, J.F. : Ph D. Thesis, Cornell University (1974).
 - Kelly, J.F. ; Richardson, R.C. : Proc. 13th Int. Conf. Low Temp. Phys. ed. K.D. Timmerhaus, W.J. O'Sullivan and E.F. Hammel : Plenum Press, N.Y. p.176 (1974).
 - Kirk, W.P. ; Adams, E.D. : Proc. 13th Int. Conf. on Low Temp. Physics ed. K.D. Timmerhaus, W.J. O'Sullivan and E.F. Hammel, Plenum N.Y., p. 149 (1974).
 - Kirk, W.P. ; Adams, E.D. : Phys. Rev. Lett. 27 392 (1971).
 - Kirk, W.P. ; Osgood, E.B. ; Garber, M. : Phys. Rev. Lett. 23, 833 (1969).
 - Kittel, C.: Introduction to Solid State Physics, John Wiley & Sons, Inc, N.Y. (1971).
 - Kolač, M. ; Švec, K. ; Safrata, R.S. ; Matas, J. ; Těthal, T. : J. Low Temp. Phys. 11, 297 (1973).
 - Konter, J.A. ; Hunik, R. ; Huiskampf, W.J. : Cryogenics, Mars 1977.
 - Korringa, J. : Physica 16, 601 (1950).
 - Kosterlitz, J.M. ; Thouless, D.J. : J. Phys. C 5, 124 (1975).
 - Krusius, M. ; Paulson, D.N. ; Wheatley, J.C. : Cryogenics, p. 649, Dec. 1978.
 - Kummer, R.B. ; Adams, E.D. ; Kirk, W.P. ; Greenberg, A.S. ; Mueller, R.M. ; Britton, C.V. ; Lee, D.M. : Phys. Rev. Lett. 34, 517 (1975).
 - Kummer, R.B. ; Mueller, R.M. ; Adams, E.D. : J. Low Temp. Phys. 27, 319 (1977).
 - Kummer, R.B. ; Adams, E.D. ; Kirk, W.P. ; Greenberg, A.S. ; Mueller, R.M. ; Britton, C.V. ; Lee, D.M. : Phys. Rev. Lett. 34, 517 (1975).
 - Laheurte, J.P. ; Keyston, J.R.G. : Cryogenics, 11, 485 (1971).
 - Landau, L.D. : Zh. Eksp. Teor. Fiz. 30, 1058 (1957). Traduction anglaise : Sov. Physics J.E.T.P. 3, 920 (1957).

[Sov Phys JETP 16, 1058 (1957)]

X

- Landau, L.D. ; Lifshitz, E. : Electrodynamique des milieux continus. Editions MIR, Moscou (1967).
- Landau, L.D. , Lifshitz, E. : Mécanique Quantique. Editions MIR, Moscou (1976).
- Landau, J. ; Lipson, S.G. ; Määttänen, L.M. ; Balfour, L.S. ; Edwards, D.O. : Phys. Rev. Lett. 45, 31 (1980).
- Landesman, A. : Proc. 15th Int. Conf. on Low Temp. Phys., J. Phys. (Paris) 39, C6-1305 (1978).
- Landesman, A. : Ann. Phys. (Paris) 9, 69 (1975).
- Landesman, A. : Ann. Phys. (Paris) 8, 53 (1973-74).
- Landesman, A. : J. Phys. (Paris) 31, C3-55 (1970).
- Laumond, Y. : Thèse, Université de Grenoble (1972).
- Lauter, H.J. ; Wiechert, H. ; Feile, R. : Proc. Int. Conf. on Ordering in 2-Dimensions, p. 291, ed. S.K. SINHA. Lake Geneva, Wisconsin, North Holland (1980).
- Lawless, W.N. : Rev. Sci. Instr. 42, 571 (1971).
- Lawless, W.N. ; Radebaugh, R. ; Soulen, R.J. : Rev. Sci. Instr. 42, 567 (1971).
- Lhuillier, C. ; Laloë, F. : J. Phys. (Paris) 40, 239 (1979).
- London, H. : Proc. Int. Conf. on Low Temp. Phys., Oxford, p. 157 (1951).
- London, H. ; Clarke, G.R. ; Mendoza, E. : Phys. Rev. 128, 1992 (1962).
- London, F. : Superfluids, Wiley (1954).
- Lounasmaa, O.V. : Experimental principles and methods below 1 K. Academic Press Inc. (London) (1974).
- Lounasmaa, O.V. : J. Phys. E. - Sci. Instrum. 12, 668 (1979).
- Low, F.J. ; Rorschach, H.E. : Phys. Rev. 120, 1111 (1960).
- Mc Mahan, A.K. ; Wilkins, J.W. : Phys. Rev. Lett. 35, 376 (1975).
- Mc Mahan, A.K. ; Guyer, R.A. : Phys. Rev. A 7, 1105 (1973).
- Mc Mahan, A.K. : J. Low Temp. Phys. 8, 115 et 159 (1972).
- Marata, K.K. ; Doniach, S. ; Phys Rev Lett 29, 285 (1972)
- Martin, M.L. ; Martin, G.L. ; Delpuech, J.J. : Practical NMR Spectroscopy, Heyden & Son ltd. London (1980).

X

- Meijer, H.C. ; Beduz, C. : Physica, 70, 581 (1973).
 - Mermin, N.D. ; Wagner, H. : Phys. Rev. Lett. 17, 11333 (1966).
 - Mess, K.W. ; Lubbers, J. ; Niesen, L. and Huiskamp, W.J. : Physica 41, 260 (1969)
-
- Mitchell, H.B. ; Brewer, D.F. ; Swithenby, S.J. ; Truscott, W.S. : J. Low Temp. Phys. 38, 475 (1980).
-
- Monod, P. ; Cowen, J.A. : Technical Report, CEN Saclay (1967).
 - Montambaux, G. ; Lederer, P. ; Héritier, M. : J. Phys. (Paris) Lett. 40, L-499 (1979).
 - Morii, Y. ; Ichikawa, K. ; Hata, T. ; Kanamori, C. ; Okamoto, H. ; Kodama, T. ; Shigi, T. : Proc. ULT Hakoné Symposium, Phys. Soc. of Japan (1978).
 - Mota, A.C. : Rev. Sci. Instrum. 42, 1541 (1971).
 - Mueller, R.M. ; Buchal, C. ; Folle, H.R. ; Kubota, M. ; Pobell, F. : Cryogenics, Août 1980.
 - *Mullin Landruccini 1980*
- Nagaoka, Y. : Phys. Rev. 147, 392 (1966).
 - Neganov, B.S. : Vestn. Akad. Nauk. SSSR n° 12, 49 (1968).
 - Osheroff, D.F. ; Richardson, R.C. ; Lee, D.M. : Phys. Rev. Lett. 29, 885 (1972).
 - Osheroff, D.D. ; Anderson, R.W. : Phys. Rev. Lett. 33, 686 (1974).
 - Osheroff, D.D. ; Cross, M.C. ; Fisher, D.S. : Phys. Rev. Lett. 44, 792 (1980).
 - Osheroff, D.D. ; Yu, C. : Preprint.
 - Owers-Bradley, Cowan, B.P. ; Richards, M.G. ; Thompson, A.L. : Phys. Lett. 65A, 424 (1978).
 - Owers-Bradley, J.R. ; Cowan, B.P. ; Richards, M.G. : J. Phys. (Paris) 39, C6-298 (1978).
 - Paalanen, M.A. : Cryogenics, p. 521; Septembre 1976;
 - Pake, G. : Nuclear Magnetic Resonance, Solid State Physics, R. Seitz and D. Turnbull eds. Academic Press Inc, N.Y. (1956).
 - Panzyck, M.F. ; Scribner, R.A. ; Straty, G.C. ; Adams, E.D. : Phys. Rev. Lett. 19, 1102 (1967).
 - Panzyck, M.F. ; Adams, E.D. : Phys. Rev. 187, 321 (1969).
 - Papoular, M. : J. Low Temp. Phys. 31, 595 (1978).

- Papoular, M. : Solid State Comm. 28, 417 (1978).
- Papoular, M. : Solid State Comm. 24, 113 (1977).
- Paulson, D.N. ; Krusius, M. ; Wheatley, J.C. ; Safrata, R.S. ; Kolač, M. ; Téthal, T. ; Svec, K. ; Matas, J. : J. Low Temp. Phys. 34, 63 (1979).
- Pennings, N.H. ; de Bruyn Outbater, R. ; Taconis, K.W. : Physica B 84, 249 (1976)
- Peverley, J.R. and Meijer, P.H. : Phys. Status Solidii, 23, 353 (1967).
- Pines, D. ; Nozières, P. : The theory of Quantum Liquids, W.A. Benjamin Inc. (1966).
- Pipes, P.B. ; Fairbank, W.M. : Phys. Rev. Lett. 23, 520 (1969).
- Pratt Jr. W.P. : Rev. Sci. Instrum. 41, 11 (1975).
- Prewitt, T.C. ; Goodkind, J. M. : Phys. Rev. Lett. 39, 1283 (1977).
- Prewitt, T.C. ; Goodkind, J.M. : Phys. Rev. Lett. 44, 1699 (1980).
- Radebaugh, R. : NBS Techn. Note (U.S.) n° 362 (1967).
- Radebaugh, R. ; Siegwarth, J.D. ; Naval Research Laboratory Report 7133, Washington (1970).
- Radebaugh, R. ; Siegwarth, J.D. : Cryogenics 11, 368 (1971).
- Reif, F. : Fundamentals of Statistical and Thermal Physics. McGraw-Hill Book Co. (1965).
- Reif, F. : Statistical Physics, McGraw Hill Book Comp., N.Y. (1967).
- Richardson, R.C. : J. Phys. (Paris) 31, C3-79 (1970).
- Richardson, R.C. : Physica 90B, 47 (1977).
- Richards, M.G. : J. Phys. (Paris) 39, C6-1342 (1978).
- Richards, M.G. : in "Phase transitions in surface films", ed. by J.G. Dash and Ruvalds, Plenum Pub. Corp. (1980).
- Roger, M. ; Delrieu, J.M. : Phys. Lett. 63A, 309 (1977).
- Roger, M. ; Delrieu, J.M. ; Landesman, A. : Phys. Lett. 62A, 449 (1977).
- Roger, M. Thèse, Université de Paris - Sud (1980).
- Roger, M. ; Delrieu, J.M. ; Hetherington J.H. : Phys. Rev. Lett. 45, 137 (1980).
- Roger, M. ; Delrieu, J.M. ; Hetherington, J.H. : J. Phys. (Paris) 41, C7-241 (1980).

- Rollefson, R.J. : Phys. Rev. Lett. 29, 410 (1972).
- Ron, A. : Theory of Fermi Liquids in the Helium Liquids, Academic Press (1975).
- Rubin, L.G. : Cryogenics 10, 14 (1970).
- Saito, S. ; Sato, T. : Proc; 14th Int. Conf. on Low Temp. Phys., ed. M. Krusius and Vuorio, North Holland Pub. Corp., Amsterdam, 4, 84 (1975).
- Sample, H.H. ; Neuringer, L.J. ; Rubin, L.G. : Proc. 13th Int. Conf. on Low Temp. Phys., Plenum Press, N.Y. (1973).
- Sanchez, J. ; Benoît, A. ; Flouquet, J. ; Frossati, G. : J. Phys. (Paris), 35, C1-23 (1974).
- Santini, M. ; Girera, M. ; Careri, G. : Phys. Lett. 5, 102 (1963).
- Satoh, K. ; Sugawara, T. : J. Physique (Paris) 39, C6-281 (1978).
- Satoh, K. ; Sugawara, T. : J. Phys. Soc. Jap. Lett. 45, 347 (1978).
- Schuberth, E.A. ; Bakalyar, D.M. ; Adams, E.D. : Phys. Rev. Lett. 42, 101 (1979)
- Schumacher, G. : Thèse, Université de Grenoble (1978).
- Schumacher, G. ; Thoulouze, D. ; Castaing, B. ; Chabre, Y. ; Segransan, P. ; Joffrin, J. : J. Phys. (Paris) Lett. 40, L143 (1979).
- Schumacher, R.T. : Introduction to Magnetic Resonance, W.A. Benjamin Inc., N.Y. (1970).
- Siddon, R.L. ; Schick, M. : Phys. Rev. A9, 907 (1974).
- Sites, J.R. ; Osheroff, D.D. ; Richardson, R.C. ; Lee, D.M. : Phys. Rev. Lett. 23, 826 (1969).
- Slichter, C.P. : Principles of Magnetic Resonance. Harper & Row., N.Y. (1963).
- Sokoloff, G.B. ; Widom, A. : Phys. Rev. Lett. 35, 673 (1975).
- Sokoloff, G.B. ; Widom, A. ; J. Low Temp. Phys. 21, 463 (1975).
- Sokoloff, G.B. ; Widom, A. : Phys. Rev. B 14, 1146 (1976).
- Sokoloff, J.B. ; Widom, A. : Int. Quantum Crystals Conf. Colorado State Univ. Fort Collins, Co. (1977).
- Soulen Jr., R.J. : Cryogenics, p. 250, May 1974.
- Spanjaard, D. ; Mills, D.L. ; Béal-Monod, M.T. : J. Phys. (Paris) 39, C6-293 (1978).

- Spanjaard, D. ; Mills, D.L. ; Béal-Monod, M.T. : J. Low Temp. Phys. 34, 307 (1979).
- Steele, W.A. : The interaction of gases with solid surfaces, Pergamon Press, Oxford (1974).
- Straty, G.C. ; Adams, E.D. : Rev. Sci. Instr. 40, 1393 (1969).
- Symko, O.G. ; J. Low Temp. Phys. 1, 451 (1969).
- Symko, O.G. : Temperature.: Its. measurement and control in Science and Industry, 4, 1239 (1973).
- Thompson, K. : J. Low Temp. Phys. 32, 361 (1978).
- Thouless, D.J. : Proc. Phys. Soc. (London) 86, 893 (1965).
- Thoulouze, D. : Journ. Phys. (Paris) 31, C3-119 (1970).
- Trickey, S.B. ; Kirk, W.P. ; Adams, E.D. : Rev. Mod. Phys. 44, 668 (1972).
- van der Bilt, A. : Thèse, Université de Leiden, Pays-Bas (1978).
- Van Sciver, S.W. : Phys. Rev. B 18, 277 (1978).
- Van Sciver, S.W. ; Vilches, O.E. : Phys. Rev. B 18, 285 (1978).
- Varoquaux, E. : Thèse, Université de Paris - Sud (1971).
- Veuro, M.C. : Acta Poytechnica Scandinavica, Appl. Phys. Series n° 122, Helsinki (1878).
- Walstedt, R.E. ; Hahn, E.L. ; Froideveaux, C. ; Geissler, E. : Proc. Roy. Soc. Ser. A 284, 499 (1965).
- Werthamer, N.R. : Am. J. of Physics 37, 763 (1969).
- Weyhmann, W. : Methods of experimental physics. Solid State Phys., éd. R.V. Coleman, Academic Press (1973).
- Wheatley, J.C. : Am. J. Phys. 36, 181 (1968).
- Wheathley, J.C. ; Vilches, O.E. ; Abel, W.R. : Physics, 4, 1 (1968).
- Wheatley, J.C. : Progr. in Low Temp. Phys., éd. by C.J. Gorter, North Holland (1970).
- Wheatley, J.C. : Prog. Low Temp. Phys. 6, 77 (1970).
- Wheatley, J.C. ; Rapp, R.E. ; Johnson, R.T. : J. Low Temp. Phys. 4, 1 (1971).
- Wheatley, J.C. : Progr. in Low Temp. Phys. VII, éd. D.F. Brewer, North Holland (1980).

- Wilks, J. : The properties of liquid and solid Helium, Clarendon Press, Oxford, (1967).
- Young, R.A. : Sol.State Commun. 29, 841 (1979).
- Yu, C. ; Anderson, P.W. : Phys. Lett. 74A, 236 (1979).
- Yurke, B. ; Polturak, E. ; Sagan, D. ; Lee, D.M. : J. Phys. (Paris) 41, C7-129 (1980).
- Zalkin, A. ; Forrester, J.D. ; Templeton, D.H. : Chem. Phys., 39, 2881 (1963).