



HAL
open science

Spectroscopie Brillouin de l'hélium superfluide métastable

Lionel Djadaojee

► **To cite this version:**

Lionel Djadaojee. Spectroscopie Brillouin de l'hélium superfluide métastable. Matière Condensée [cond-mat]. École Normale Supérieure Paris, 2023. Français. NNT: . tel-04076130

HAL Id: tel-04076130

<https://theses.hal.science/tel-04076130v1>

Submitted on 20 Apr 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 DE DOCTORAT

DE L'UNIVERSITÉ PSL

Préparée à l'École normale supérieure - PSL

**Spectroscopie Brillouin de l'hélium superfluide
métastable**

Soutenue par

Lionel DJADAOJEE

Le 6 avril 2023

Ecole doctorale n° 564

Physique en Île-de-France

Spécialité

Physique

Composition du jury :

Saïda GUELLATI-KHÉLIFA

Professeur, Conservatoire National des Arts et Métiers *Présidente du Jury*

Frédéric CAUPIN

Professeur, Université Claude Bernard Lyon 1 *Rapporteur*

Philippe-Emmanuel ROCHE

Chargé de recherche, Institut Néel *Rapporteur*

Jean-François ALLEMAND

Professeur, École normale supérieure - PSL *Examineur*

Coralie WEIGEL

Maître de conférences, Université Montpellier II *Examinatrice*

Jules GRUCKER

Maître de conférences, Sorbonne Université *Directeur de thèse*

Remerciements

Cette thèse a été une expérience très positive et enrichissante, pendant laquelle mon temps de travail a été partagé à part presque égale entre enseignement à l'École normale supérieure - PSL (ENS-PSL) et recherche au laboratoire Kaslter Brossel (LKB).

Je remercie Antoine Heidmann de m'avoir accueilli au sein du LKB, et de m'avoir permis de bénéficier d'un environnement scientifique d'une telle qualité. Je remercie également l'équipe de direction du laboratoire pour l'organisation des journées prospectives du laboratoire, des séminaires, et de plusieurs autres événements, qui donnent à ce grand laboratoire une ambiance accueillante et chaleureuse. Je les remercie également vivement de leur gestion de la crise sanitaire que nous avons traversé, qui nous a permis de continuer à mener nos recherches en sécurité, sans quoi il aurait été impossible d'aller aussi loin.

Je remercie le chef du groupe « hélium 4 », mon directeur de thèse, Jules Grucker. Ces quatre années ont été très enrichissantes et je suis conscient d'avoir bénéficié d'un encadrement exceptionnel pendant cette thèse. Merci Jules pour tout ce que tu m'as appris, sur le plan professionnel et scientifique, mais pas seulement. Merci pour ta bienveillance et d'avoir été si présent tout au long de ce travail. Merci de m'avoir poussé à partir en conférence et d'avoir permis cela, ces expériences ont été très enrichissantes. Merci chef!

J'aimerais remercier les chercheurs qui ont précédemment dirigé et travaillé dans l'équipe : Philippe Jacquier, que j'ai eu la chance de pouvoir rencontrer pendant mon stage de M2, avant qu'il ne quitte ce monde en janvier 2019, et Jacques Dupont-Roc, parti à la retraite, dont les entrevues pendant cette thèse ont été très riches. Je les remercie tous deux pour la mise en place de cette très belle expérience, et notamment d'avoir conçu et élaboré un cryostat performant dont l'autonomie est de plus de 60h (ce qui permet de ne pas avoir à revenir le week-end pour maintenir le cryostat à froid, c'est un détail qui compte!). Je remercie également mes prédécesseurs, doctorants et post-doctorants : Mathieu Melich, qui a participé à l'élaboration du cryostat, Azer Trimeche, Fabien Souris, qui a travaillé à l'élaboration de l'interféromètre optique pendant sa thèse, et Qu An qui l'a utilisé pour effectuer la très belle mesure de densité de cavitation de l'hélium superfluide.

Je remercie Albane Douillet, avec qui j'ai vraiment eu joie à collaborer pendant mes deux premières années de thèse : les techniques que nous avons développées étaient toutes nouvelles pour l'équipe, et ta maîtrise et tes connaissances en optique nous ont été précieuses. Je te souhaite le meilleur pour le développement de tes futures recherches! Je remercie les étudiants stagiaires qui ont contribué à cette expérience. J'ai été très heureux d'être le maître de stage d'Elisa Radjabou, une jeune étudiante très douée, dynamique et enthousiaste : je crois que les portes de l'équipe te sont grandes ouvertes si tu souhaites y retravailler un jour (peut-être en thèse?). Je remercie également Cédric Parisi qui a effectué son stage de M2 auprès de nous, j'espère que cette expérience dans la recherche t'aura été bénéfique et je te souhaite le meilleur dans ce beau métier d'enseignant que tu as choisi.

Je remercie chaleureusement les membres de mon jury de thèse : Frédéric Caupin et Philippe-Emmanuel Roche, qui sont les rapporteurs de cette thèse, et Jean-François Allemand, Saïda Guellati-Khélifa et Coralie Weigel, qui sont examinateurs de ce travail. Je suis très reconnaissant de pouvoir bénéficier de votre regard sur ces travaux de recherche.

Je remercie Yutaka Sasaki, Makoto Tsubota, pour leur accueil très chaleureux au sein de leur laboratoire, ainsi

que de m'avoir permis de présenter mes travaux de recherche à travers long séminaire, ce qui a été une très belle expérience. Cela pourra j'espère donner naissance à une heureuse collaboration avec l'équipe du Pr Tsubota, experte en simulations dans l'hélium superfluide.

Je tiens à remercier les membres de l'autre axe de l'équipe : l'équipe « hélium 3 ». Merci Pierre-Jean Nacher et Geneviève Tastevin : merci pour vos conseils, toutes vos idées, et aussi pour toutes les choses que vous nous avez prêtées pour faire les expériences. Merci à Ali Dia, Christopher Bidinosti, Zeyuan Zhang, Hadi Loufti, avec qui j'ai eu la joie de partager ces années.

Je remercie mon parrain scientifique Clément Sayrin, et à cette occasion je remercie de nouveau Saïda, qui ont veillé au bon déroulement de ma thèse tout au long de ces quatre années.

Pour reprendre ce que disait si bien un cher collègue dans les remerciements de sa thèse : « bien qu'identifiée comme une réalisation individuelle, une thèse est avant tout une réussite collective » [allys2017]. À ce titre j'aimerais ainsi remercier tous ceux qui ont contribué à ces travaux, et sans qui nous n'aurions pu parvenir aux résultats présentés dans ce manuscrit.

Je remercie très chaleureusement Florent Perrin and Olivier Andrieu, qui travaillent sur la plate-forme de cryogénie de l'ENS, et qui nous ont fourni au cours de ces quatre années la précieuse matière première indispensable à toutes nos expériences : l'hélium liquide.

Un grand merci aux membres atelier électronique, Lionel Perennes, Laurent Bonnet, et Philippe Pace, ainsi qu'à Toufik El Atman, membre du bureau d'étude d'électronique, avec qui j'ai eu plaisir à travailler, notamment pendant les premiers mois de la thèse pour l'alimentation et la régulation en température de notre diode laser, et pour l'ampli RF de l'AOM mis en place par Elisa pendant son stage.

Je souhaite remercier tous les membres de l'équipe de l'atelier de mécanique, pour leur travail et leur implication indispensables à nos avancées expérimentales. Merci à Jean-Michel Isac, directeur technique à l'ENS, et à tous les membres de du bureau d'étude et de l'atelier mécanique pour leur aide précieuse, leur efficacité et la qualité de leurs réalisations. Merci en particulier à Arnaud Leclerc, à Nabil Garroum et à Mathieu Sardin (notamment pour la réalisation de pièces mécaniques pour la cellule expérimentale contenant l'hélium). En écrivant ces lignes j'ai une pensée pour à Saindou Ismael qui nous a également aidé pour la réalisation du support de plusieurs éléments optiques, mais qui nous a brusquement quitté le 8 janvier 2021.

Je remercie les membres de l'atelier de soudure, Georges Cornudet et José Romer (maintenant parti à la retraite), qui nous ont aidé pour la mise en place d'une tête d'alignement au sein de la cellule expérimentale contenant l'hélium, indispensable à la focalisation de nos lasers.

Je remercie les personnels du service informatique qui se sont succédés au laboratoire : Jean-Roch Liebgott et Philippe Malbranc dans un premier temps, et Adil Khalfa aujourd'hui.

Je remercie très chaleureusement tous les membres de l'administration du laboratoire Kaslter Brossel : merci à Thierry Tardieu, Stéphanie Dubois, Valérie Revelut, Lucile Provost, pour votre professionnalisme, votre efficacité, votre disponibilité, et votre chaleureuse compagnie. Je remercie également Marjolaine Ta qui a effectué un stage au tout début de ma thèse et nous a aidé pour passer les commandes d'éléments indispensables pour notre banc optique. Un grand merci à Christelle Rio et Audrey Gohlke, pour les commandes, pour les missions, votre disponibilité, votre patience, votre efficacité, et les moments passés ensemble. J'ai aussi une pensée pour Nora Aissous, qui travaillait au secrétariat du laboratoire et s'est notamment occupée de mon arrivée administrative et de ma rémunération lors de mon stage de M2 dans l'équipe, et qui est partie de ce monde au début de ma thèse.

Je remercie les agents d'entretien pour leur travail de chaque jour qui nous permettent de travailler dans des locaux bien entretenus.

Je remercie mon frère Mathieu Djadaojee, pour ses talents de graphiste qui ont permis de réaliser plusieurs (très belles) images d'illustration de nos expériences. Je remercie également Alexander Franzen, créateur de la librairie SVG "ComponentLibrary", que j'ai utilisée pour réaliser certains schémas de bancs optiques.

Je remercie Laure pour le don de la précieuse "tête d'alignement" des lasers sans laquelle nous n'aurions pu obtenir nos premiers spectres Brillouin dans l'hélium. Je remercie également Lazare pour ses conseils dans le croisement des lasers, et Honoré pour ses encouragements.

Ces années ont également été consacrées à l'enseignement, où j'ai pu travailler avec beaucoup de personnes et être aidés par eux. J'aimerais profiter de ces pages pour les remercier. Je remercie en premier lieu Jean-Marc Berroir, directeur du département de physique de l'ENS, pour son accueil au sein du département, ainsi que le directeur des études Adèle Bilal, les directeurs de la préparation à l'agrégation de physique-chimie : Agnès Maitre côté physique, et Jean-Marc Baudin côté chimie ; mes responsables du côté de la préparation à l'agrégation : François Levrier, Arnaud Raoux, Erwan Allys, Nicolas Levy, Clément Guibert ; et mes responsables du côté ENS : Stéphane Fauve, François Petrelis ; je remercie également toute l'équipe enseignante avec qui j'ai pu travailler pendant ces années, en particulier Jean-François Allemand, Frédéric Chevy, ainsi que mes plus jeunes collègues Gabriel Gouraud, Ludwig Hruza, Alexis Brès, Jules Fillette, Martin Caelen, Léa Lachaud, Léa Chibani, Elric Frigerio, Quentin Redon, Simon Messelot, Adrian Van Kan, Ancèle Larzul, avec qui cela a été un plaisir de travailler. Je souhaite aussi remercier sincèrement André Salou, Marlène Dumeur, Eric Guineveu, Nasser Hamadi et Yvon Poncel pour toute leur aide à la préparation à l'agrégation, pour la qualité de leur travail et leur sympathie, ainsi que Medina Mahrez, Camille Sardin, Laura Baron-Ledez, Christine Poublanc et Sabine Quimbert à l'ENS, pour leur grande efficacité, leur disponibilité et leur professionnalisme.

Merci à tous mes collègues chercheurs et doctorants, que je ne saurais tous citer, auprès de qui et avec qui j'ai pu évolué pendant ce travail. Merci également à tous les étudiants membres du comité de rédaction de la NPR, la revue mensuelle des étudiants de physique de l'ENS, que j'ai eu plaisir à lire pendant ces années.

Je me tourne naturellement vers ma famille : je remercie profondément mes parents, grâce à qui j'ai trouvé ma voie, et sans qui rien de tout cela n'aurait été possible ; en particulier je remercie ma maman qui a tant donné d'elle-même et qui m'a donné l'exemple par sa manière d'être dans son travail et dans la vie ; je remercie mon père pour le savoir-faire pratique qu'il m'a transmis, le sens et la valeur du travail, et le rôle qu'il a eu auprès de moi ; je remercie mes grands parents, qui ont pris soin de moi pendant ces années, et ont suivi de près nos avancées : merci pour votre présence et votre soutien de toujours ; je remercie chaleureusement Mathieu, Emma et Nathaël pour tous les moments passés ensemble.

Merci à toute ma famille d'accueil parisienne (et charentaise) : merci Laurent et Chine pour tout, et pour tout le bien que vous faites à beaucoup de gens. Merci Edmond et Vidal, c'est une joie d'avoir travaillé avec vous et d'avoir pu vous accompagner tout au long de ces années de thèse.

Enfin, je remercie profondément mes plus proches amis, pour toute l'aide et le soutien que j'ai reçus, et en particulier Jean, Philippe, Christophe et Louis, pour leurs conseils, leur relecture et leur aide dans la rédaction.

Enfin, avec du recul, il est manifeste que des vents favorables ont soufflé dans nos voiles, nous conduisant à bon port malgré les confinements successifs, les pannes, la pénurie d'hélium, les périodes d'enseignement parfois intenses... J'ai gratitude que tout cela ait été rendu possible.

*À mes parents,
à mes grands-parents,
à mon frère et mes amis*



Charles-François Daubigny,
Coucher de soleil près de Villerville, vers 1876,
The Mesdag Collection, La Haye.

«Je ne sais ce que je puis paraître au monde, mais à moi-même il me semble que j'ai seulement été comme un petit garçon qui joue sur la plage et qui se divertit à trouver, de temps en temps, un caillou mieux poli ou un plus beau coquillage que de coutume, alors que l'immense océan de la Vérité s'étend devant moi, encore entièrement inexploré...»

Isaac Newton

«La plus belle chose que nous puissions vivre, c'est le mystère. C'est le sentiment fondamental qui est au berceau de l'Art et de la Science véritables. Celui qui ne connaît pas cela et ne peut plus s'émerveiller, il est comme mort et son œil est éteint.»

Albert Einstein

Liste des publications

Ce manuscrit est rédigé sur la base de plusieurs articles publiés pendant cette thèse :

- L. Djadaojee, A. Douillet, and J. Grucker. Stimulated brillouin gain spectroscopy in a confined spatio-temporal domain ($30 \mu\text{m}$, 170 ns). EPJ Appl. Phys., 89(3):30701, 2020
- L. Djadaojee, A. Douillet, and J. Grucker. Stimulated brillouin gain spectroscopy of superfluid helium-4. J. Low Temp. Phys., 203(1):234–243, 2021
- L. Djadaojee and J. Grucker. Optical measurement of the equation of state of bulk liquid helium-4 around 1 K. Phys. Rev. B, 103(14):144513, 2021
- L. Djadaojee and J. Grucker. Brillouin spectroscopy of metastable superfluid helium-4. Phys. Rev. Lett., 129:125301, Sep 2022
- L. Djadaojee, C. Parisi, C. Noûs, and J. Grucker. Measurement of the equation of state of superfluid helium-4 at negative pressure. J. Low Temp. Phys., pages 1–14, 2023

Table des matières

Remerciements	V
Liste des publications	XIII
Notations	XVIII
Introduction	2
1 Contexte	6
1.1 Hélium métastable et cavitation	6
1.1.1 Intérêt de l'étude de la cavitation dans l'hélium liquide	6
1.1.2 Métastabilité, pressions négatives	7
1.1.3 Théorie classique de la Nucléation	10
1.1.4 Limites de la CNT et spinodale	12
1.1.5 Équation d'état (EoS) et ligne de nucléation de l'hélium liquide	13
1.2 Études expérimentales de l'hélium 4 à pression négative	15
1.2.1 Création des états métastables dans l'hélium liquide	15
1.2.2 Estimation des propriétés de l'hélium liquide au seuil de cavitation	17
1.2.3 La piste de la nucléation hétérogène	20
1.3 Objectifs de la thèse	21
2 Principe de la Spectroscopie Brillouin Stimulée	22
2.1 Diffusion Brillouin spontanée	24
2.1.1 Spectres Brillouin	24
2.1.2 Principe de la diffusion Brillouin : approche quantique	25
2.1.3 Principe de la diffusion Brillouin : approche "milieux continus"	25
2.1.4 Expériences de diffusion Brillouin spontanée dans l'hélium liquide et dans les états métastables de l'eau	27
2.2 Diffusion Brillouin stimulée	28
2.2.1 Approche qualitative	29
2.2.2 Couplage lumière-matière électrostrictif	29
2.2.3 Amplification du retour et seuil Brillouin	30
2.2.4 Régime permanent	32
2.2.5 Régime transitoire	33
2.2.6 Expériences de diffusion Brillouin stimulée dans l'hélium	34
2.2.7 Tentatives de diffusion Brillouin stimulée	34
2.3 Spectroscopie Brillouin Stimulée (SBS)	34

2.3.1	Principe de la SBS	35
2.3.2	Avantages	36
2.3.3	Régime transitoire	37
2.3.4	Expériences de Spectroscopie Brillouin Stimulée	39
2.3.5	Spectroscopie Brillouin à faisceaux croisés	41
2.4	Cahier des charges en vue des expériences de SBS dans l'hélium 4	42
2.4.1	Estimation de Ω_B et de Γ_B	42
2.4.2	Estimation du facteur d'amplification Brillouin dans l'hélium	43
2.4.3	Estimations des caractéristiques requises pour les laser pompe et sonde	44
3	SBS dans un domaine spatio-temporel confiné	50
3.1	Mise en place et procédure expérimentale	51
3.1.1	Choix de l'échantillon de test	51
3.1.2	Banc optique	52
3.1.3	Résolution spectrale de l'expérience	53
3.2	Spectroscopie Brillouin stimulée de l'acétone à pression et température ambiantes	54
3.2.1	Tests préliminaires : diffusion Brillouin stimulée en géométrie contrapropagante	54
3.2.2	Spectroscopie Brillouin en géométrie croisée : méthode de superposition	54
3.2.3	Signaux Brillouin bruts à $\theta = 90^\circ$	55
3.2.4	Signal parasite dû à la création d'une lentille thermique	56
3.2.5	Signal parasite dû à la diffusion du laser de pompage	58
3.2.6	Obtention des spectres Brillouin	59
3.2.7	Ordres de grandeur	60
3.2.7.1	Ordre de grandeur du gain	60
3.2.7.2	Ordre de grandeur de l'élévation de température	60
3.2.7.3	Ordre de grandeur de la déviation du faisceau	61
3.3	Résultats expérimentaux et discussion	61
3.3.1	Fréquence Brillouin dans l'acétone	61
3.3.2	Largeur Brillouin dans l'acétone	63
3.3.2.1	Largeur Brillouin obtenue et comparaison avec des expériences précédentes	63
3.3.2.2	Effet lié à la divergence des faisceaux	63
4	Spectroscopie Brillouin de l'hélium superfluide stable	66
4.1	Aspects expérimentaux	67
4.1.1	Cryostat optique	67
4.1.2	Mesure de température et de pression	69
4.1.3	Montage optique pour la spectroscopie Brillouin	69
4.1.4	Croisement des faisceaux et estimation du col des lasers	71
4.2	Spectres Brillouin de l'hélium stable	74
4.2.1	Spectres Brillouin obtenus à $T \sim 1$ K et à $P = P_{\text{sat}}$	74
4.2.2	Mesure de la vitesse du son dans l'hélium	77
4.2.3	Étude de la largeur Brillouin en fonction de la température	77
4.3	Détermination de l'EoS de l'hélium superfluide stable à 1 K	79
4.3.1	Principe de détermination de l'EoS de l'hélium liquide stable	79

4.3.2	Mesure de la fréquence Brillouin de l'hélium stable à 1 K pressurisé	81
4.3.3	Résultats et discussion	82
5	SBS de l'hélium superfluide métastable	88
5.1	Techniques expérimentales	89
5.1.1	Production des états métastables	89
5.1.2	Montage optique pour la Spectroscopie Brillouin Stimulée dans l'hélium métastable	91
5.1.3	Superposition des faisceaux lasers	93
5.2	Acquisition et traitement des données	94
5.2.1	Résultats préliminaires	95
5.2.2	Mise en place d'un protocole pour focaliser les faisceaux laser sur la région métastable	96
5.3	Résultats	96
5.3.1	Mesure de l'évolution de la fréquence Brillouin dans l'hélium métastable	96
5.3.2	Estimation de l'effet du moyennage sur les valeurs des fréquences Brillouin mesurées à $P < 0$	98
5.3.3	Mesure de la probabilité de création de bulles de cavitation	98
5.3.4	Propriétés de l'hélium au seuil de déstabilisation	100
5.3.5	Comparaison de nos résultats avec les mesures effectuées dans l'hélium stable	104
5.3.6	Instant de création des bulles de cavitation	105
5.3.7	Mesures de f_B au-delà du seuil de déstabilisation ($V > V^*$)	108
5.3.8	Estimations des pressions de cavitation dans les oscillations (A) et (C)	110
5.3.9	Interprétation des résultats	110
6	Détermination expérimentale de l'équation d'état de l'hélium 4 superfluide métastable	114
6.1	Principe de la mesure de densité	115
6.1.1	Indice de réfraction et densité de l'hélium liquide	116
6.1.2	Description du banc optique de la mesure de densité	116
6.2	Mesure simultanée de $f_B(t)$ et de $\rho(t)$	122
6.2.1	Description du banc optique	122
6.2.2	Premiers résultats	124
6.2.3	Sélection et traitement des données	126
6.3	Résultats	127
	Conclusion Générale	132
	A Tentatives de diffusion Brillouin stimulée dans l'hélium 4 liquide	I
	B Protocole de focalisation des faisceaux laser Brillouin sur la région métastable	V
	C Effet de retard dans la mesure de $f_B(t)$ en régime transitoire	XI
	Bibliographie	XXII

Notations

Constantes fondamentales

- célérité de la lumière dans le vide : $c = 299\,792\,458 \text{ m.s}^{-1}$
- permittivité diélectrique du vide : $\epsilon_0 \simeq 8,854\,187\,812\,8(13) \times 10^{-12} \text{ F.m}^{-1}$
- constante de Planck réduite : $\hbar = h/2\pi \simeq 1,054\,571\,818 \times 10^{-34} \text{ J.s}$
- constante de Boltzmann : $k_B = 1,380\,649 \times 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$

Constantes liées à l'hélium 4

- point triple gaz/liquide I/liquide II : ($T_\lambda \simeq 2,1768 \text{ K}$; $P \simeq 5,0418 \text{ kPa}$)
- polarisabilité molaire de l'hélium 4 liquide à 1 K, à pression de vapeur saturante et à $\lambda = 1064 \text{ nm}$: $\alpha \simeq 0,1236(3) \text{ cm}^3.\text{mole}^{-1}$ (obtenue à partir des valeurs de la Réf.[[harris1970](#)] à 5 kHz et à $\lambda = 532 \text{ nm}$)
- masse molaire de l'hélium 4 : $M \simeq 4,0026 \text{ g.mole}^{-1}$ [[ncbi2020](#)]
- masse volumique que l'on appellera, par abus de langage, "densité" dans la suite du manuscrit : à $\rho(T = 1 \text{ K}) \simeq 145,1202(3) \text{ kg.m}^{-3}$ [[donnelly1998](#)]
- masse atomique : $m_{\text{He}} \simeq 6,6464790739(3) \times 10^{-27} \text{ kg}$
- $\gamma = c_P/c_V$: rapport entre les capacités thermiques massiques à pression constante et à volume constant de l'hélium, très proche de 1 dans l'hélium superfluide ($(\gamma - 1)/\gamma < 0,1\%$ à vapeur saturante et à $T \sim 1 \text{ K}$ [[brooks1977](#)]).

Lasers

- λ_1, λ_2 : longueur d'onde des laser de pompage et laser sonde
- λ : longueur d'onde des lasers ($\lambda \simeq \lambda_1 \simeq \lambda_2$)
- ω_1, ω_2 : pulsation angulaires des laser de pompage et laser sonde
- ω : pulsation des lasers ($\omega \simeq \omega_1 \simeq \omega_2$)
- $\Omega = \omega_1 - \omega_2$
- \vec{k}_1, \vec{k}_2 : vecteurs d'onde des laser de pompage et laser sonde
- w_1, w_2 : col (ou "waist" en anglais) des laser de pompage et laser sonde

- θ : angle d'intersection des lasers
- τ_{pulse} : durée des impulsions du laser pompe (sauf mention contraire, τ_{pulse} désignera la largeur à mi-hauteur des impulsions du laser pompe)

Variables d'état et propriétés thermodynamiques

- P, V, N, T : pression, volume, nombre d'atomes, température
- n : indice optique
- $v = \sqrt{\left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_S}$: vitesse du son adiabatique du milieu ; vitesse du premier son dans le cas de l'hélium
- $v_T = \sqrt{\left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_T}$: vitesse du son isotherme
- P_{sat} : Pression de vapeur saturante
- $\rho_{\text{cav}}, P_{\text{cav}}$: densité, pression de cavitation
- $\rho_{\text{spin}}, P_{\text{spin}}$: densité et pression à la limite spinodale
- χ_T : compressibilité isotherme

Diffusion Brillouin

- $\gamma_e = \rho \left(\frac{\partial \epsilon_r}{\partial \rho}\right)$: constante électrostrictive
- \vec{q} : vecteur d'onde des phonons
- $\Omega_B = |\vec{q}|v = 2n\omega \frac{v}{c} \sin(\theta/2)$: pulsation Brillouin
- $f_B = \Omega_B/2\pi$: fréquence Brillouin
- $g_\infty = \frac{\gamma_e^2 \omega_1^2}{nvc^3 \rho \Gamma_B}$: facteur d'amplification Brillouin en régime permanent
- $g = g_\infty \frac{(\Gamma_B/2)^2}{(\Omega_B - \Omega)^2 + (\Gamma_B/2)^2}$: facteur d'amplification Brillouin
- $G = gI_1L$: gain d'amplification du faisceau sonde, avec I_1 l'intensité du faisceau pompe, et L la longueur d'interaction.
- Γ_B : largeur de la raie Brillouin (en rad.s^{-1})
- $\tau_{\text{ph}} = 1/\Gamma_B$: temps de vie des phonons
- $\Delta\nu_B = \Gamma_B/2\pi = 1/(2\pi\tau_{\text{ph}})$: largeur de la raie Brillouin en Hz

Acronymes

- SBS : Spectroscopie Brillouin Stimulée
- CNT : Théorie Classique de la Nucléation ("Classical Nucleation Theory")
- EoS : Équation d'état ("Equation of State")
- FWHM : largeur à mi-hauteur ("Full Width at Half Maximum")

Introduction

L'hélium liquide à basse température est une substance modèle pour l'étude de la matière condensée. En plus de ses propriétés superfluides, il peut être obtenu avec une remarquable pureté, ce qui en fait un candidat idéal pour l'étude de la nucléation homogène. L'hélium liquide métastable, et en particulier l'hélium liquide à **pression négative**, suscite un vif intérêt théorique dans les années 1990's, qui voient aussi se développer les premières expériences de **cavitation** (nucléation d'une bulle de gaz par diminution de la pression) dans l'hélium liquide.

Une des motivations de ces études a été la possibilité que la barrière énergétique de nucléation soit franchie par effet tunnel à basse température ($T < 0,2$ K), phénomène remarquable où un nombre macroscopique d'atomes franchit la barrière de nucléation. Cela a effectivement pu être observé au département de physique de l'École normale supérieure - PSL [balibar1995].

Une autre motivation concerne l'étude des propriétés de l'hélium à pression négative. Comme le dit H. Maris de l'Université Brown [maris2002], "there is thus a new world at negative pressure". Un monde qui commence tout juste à être exploré dans l'hélium. Même si ses propriétés à pression positives ont été largement étudiées au cours du siècle dernier, il reste encore beaucoup à découvrir à pression négative, qui est un domaine où il est particulièrement difficile d'effectuer des mesures des propriétés de l'hélium du fait de la fragilité des états métastables. Plusieurs estimations indirectes des propriétés de l'hélium, et notamment de la pression à laquelle la cavitation a lieu (pression de cavitation) ont été effectuées. En 2002, le paysage est assez clair : bien qu'indirectes, ces estimations semblent concorder avec les équations d'état théoriques. La cavitation semble avoir lieu très proche de la limite spinodale dans l'hélium (autour de -9 bar). Dans une revue en 2012, Maris ajoute [maris2012] "The results are in reasonable agreement with theory although the accurate estimation of the negative pressure that is reached in these ultrasonic experiments remains a challenge". C'est le défi que j'ai relevé pendant cette thèse. Je ne suis cependant pas parti de rien puisque le groupe a développé plusieurs techniques, permettant de créer les états métastables, et de mesurer la densité de l'hélium métastable.

Les états métastables de l'hélium-4 liquide sont créés à l'aide d'ondes acoustiques focalisées (1 MHz). Pour des amplitudes sonores suffisantes, une bulle de cavitation apparaît dans le liquide, comme montré sur la Fig.1. En 2015, le groupe développe un interféromètre optique qui permet de mesurer la densité de l'hélium superfluide métastable. Il s'agit de la première mesure directe d'une propriété de l'hélium à pression négative. Combinée avec l'équation d'état théorique admise au sein de la communauté scientifique (voir section 1.1.5) qui relie la pression et la densité, cette mesure conduit à une nouvelle estimation de la pression de cavitation à $T=1$ K. Contre toute attente, le résultat n'est pas compatible avec les mesures indépendantes réalisées précédemment.

C'est dans ce contexte que s'inscrit le travail de recherche effectué pendant cette thèse. L'objectif de ce travail est de compléter la mesure de densité ρ par une mesure de la vitesse du son v dans l'hélium. En effet, les mesures de v et ρ permettent, par intégration, de remonter à l'équation

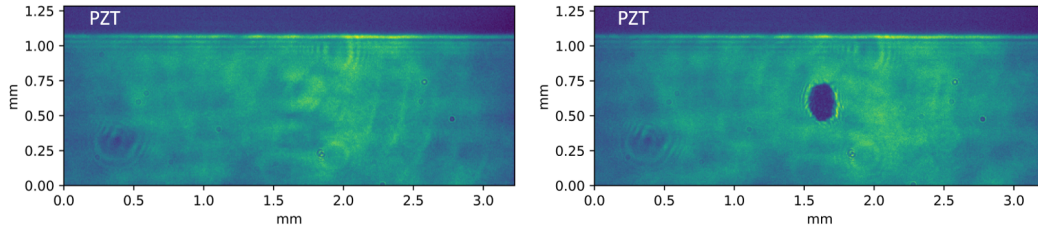


FIG. 1 Photographie prise au sein de l’hélium superfluide à $T \sim 1$ K. Une onde sonore est focalisée au sein de l’hélium (les variations d’indice sont très faibles, et les modulations de densité associées au passage de l’onde sont à peine visibles sur les images). Le rectangle bleu foncé en haut des images est l’ombre de l’émetteur piézoélectrique qui permet de créer les ondes sonores. Pour des amplitudes sonores suffisantes, une bulle de cavitation est créée (tâche bleue au centre de l’image de droite) à une position qui correspond au foyer acoustique de l’onde sonore.

d’état $P(\rho)$ du liquide, et donc à la pression à laquelle la cavitation a lieu.

La mesure de v est effectuée par une technique de Spectroscopie Brillouin Stimulée (SBS). On focalise dans l’hélium liquide en phase métastable un laser intense (dit “de pompage”) et impulsionnel (200 ns) de fréquence fixe et un laser “sonde” accordable en fréquence. Si la différence de fréquence entre laser pompe et sonde est égale à la « fréquence Brillouin » du liquide, une fraction de l’énergie du laser pompe est transférée au laser sonde. Cet effet non-linéaire se produit grâce au couplage électrostrictif entre les photons des lasers et les phonons du milieu. La fréquence Brillouin étant proportionnelle à la vitesse du son, la mesure de la fréquence Brillouin permet de déterminer la vitesse du son au sein de la région métastable.

Ce manuscrit est divisé en six parties :

1. **Chapitre 1 : Contexte** . Dans ce chapitre introductif, nous donnons plus de détails sur le contexte dans lequel s’inscrit ce travail de thèse.
2. **Chapitre 2 : Principe de la Spectroscopie Brillouin Stimulée**. Ce chapitre est une introduction au phénomène de diffusion Brillouin stimulée, et à la technique spectroscopique associée. Nous donnons également le cahier des charges établi pour développer un spectromètre adapté à l’étude de l’hélium métastable.
3. **Chapitre 3 : Spectroscopie Brillouin Stimulée (SBS) dans un domaine spatio-temporel confiné**. Nous présentons le développement du spectromètre Brillouin stimulé, et les premiers résultats de SBS obtenus dans un échantillon test (acétone à température et pression ambiantes), permettant une mesure locale de la vitesse du son ($\sim 40 \mu\text{m}$) sur des échelles de temps courtes (~ 200 ns).
4. **Chapitre 4 : Spectroscopie Brillouin dans l’hélium stable**. Nous présentons les premiers résultats de SBS dans l’hélium liquide **stable** (à pression positive). En particulier, nous mesurons la vitesse du son en fonction de la température, ainsi que l’équation d’état $P(\rho)$ à pression positive, qui permettent de valider notre technique de mesure de la vitesse du son.
5. **Chapitre 5 : Spectroscopie Brillouin Stimulée dans l’hélium métastable**. Nous présentons dans ce chapitre les résultats de SBS au sein de l’hélium liquide **métastable** (pression négative). En particulier, la fréquence Brillouin au seuil de cavitation est mesurée, et une première estimation de la pression de cavitation est donnée.

6. **Chapitre 6 : Détermination expérimentale de l'équation d'état de l'hélium-4 superfluide métastable.** Nous effectuons des premières mesures simultanées de la densité et de la vitesse du son de l'hélium métastable, qui permettent de remonter à l'équation d'état jusqu'à des pressions négatives de -1 bar.

1 – Contexte

Sommaire

1.1 Hélium métastable et cavitation	6
1.1.1 Intérêt de l'étude de la cavitation dans l'hélium liquide .	6
1.1.2 Métastabilité, pressions négatives	7
1.1.3 Théorie classique de la Nucléation	10
1.1.4 Limites de la CNT et spinodale	12
1.1.5 Équation d'état (EoS) et ligne de nucléation de l'hélium liquide	13
1.2 Études expérimentales de l'hélium 4 à pression négative	15
1.2.1 Création des états métastables dans l'hélium liquide . .	15
1.2.2 Estimation des propriétés de l'hélium liquide au seuil de cavitation	17
1.2.3 La piste de la nucléation hétérogène	20
1.3 Objectifs de la thèse	21

Introduction

Nous exposons dans ce chapitre les motivations de l'étude théorique et expérimentale de l'hélium à pression négative, ainsi que le contexte dans lequel s'inscrit notre recherche. Enfin, nous précisons les objectifs de ce travail de thèse.

1.1 Hélium métastable et cavitation

1.1.1 Intérêt de l'étude de la cavitation dans l'hélium liquide

L'hélium est la seule espèce chimique qui reste liquide dans la limite $T \rightarrow 0$ K à sa pression de vapeur saturante (tous les autres éléments ont une température de solidification supérieure à 14 K). Cela résulte d'une contribution énergétique volumique, d'origine quantique, appelée "énergie de point zéro". Cette énergie peut être comprise à l'aide du principe d'indétermination

de Heisenberg : chaque atome, situé dans un puits de potentiel d'interaction avec les autres atomes, possède une énergie d'agitation d'origine quantique. L'énergie de point zéro est particulièrement importante dans l'hélium, en raison de la faible distance interatomique et de la faible masse des atomes. Dans la limite des basses températures, ce terme énergétique domine le terme énergétique de cohésion associées aux interactions de Van der Waals. L'hélium 4 ne peut alors se solidifier. Or le troisième principe stipule que la matière tend vers l'ordre absolu dans la limite $T \rightarrow 0$ K. Pour la plupart des substances, l'évolution vers un état ordonné se manifeste par la transition de phase liquide/solide. Dans le cas de l'hélium, cette évolution se manifeste par une transition de phase d'une autre nature : il s'agit d'une transition liquide/superfluide. La phase liquide "normale" est aussi appelée "liquide I", et la phase superfluide est appelée "liquide II". Cette transition s'effectue, à pression de vapeur saturante, à $T_\lambda \simeq 2,18$ K (voir diagramme de phase Fig.1.1). Dans la phase superfluide, les effets quantiques deviennent prépondérants et interviennent dans la description thermodynamique même du liquide. L'hélium 4 superfluide a une viscosité plus faible que celle de la phase normale, d'un facteur au moins égal à 10^6 . Aussi, les transferts thermiques, au lieu d'être assurés par la diffusion ou la convection, ont lieu beaucoup plus efficacement dans l'hélium superfluide par l'intermédiaire d' "ondes de chaleur" (les fluctuations de température obéissent à une équation d'onde, au lieu d'une équation de type diffusive, voir Chap.2). L'hélium a beaucoup d'autres propriétés étonnantes, telles que le mouillage quasi-parfait de toutes les surfaces, ou des effets thermo-mécaniques (variation de température due à un déplacement de matière, et réciproquement)...

L'opportunité d'obtenir un liquide à très basse température fait aussi de l'hélium une substance particulièrement intéressante pour tester notre compréhension des mécanismes de nucléation dans un liquide. En effet, lorsque la température de l'hélium descend jusqu'à quelques Kelvin, toutes les impuretés, initialement présentes sous forme de gaz dissous ou de liquide, gèlent, et s'attachent aux parois ou sédimentent au fond du contenant. L'hélium liquide peut donc être obtenu très pur. Il demeure des impuretés isotopiques, dues à la présence d'hélium 3, de l'ordre de 0,3 ppm[wilks1967]. D'autre part, l'hélium pouvant être étudié à quelques Kelvin, l'énergie d'agitation thermique est faible, et la probabilité de franchissement de la barrière de nucléation par effet thermique est considérablement réduite par rapport aux fluides à température ambiante. L'hélium 4 offre ainsi la possibilité de créer des états métastables loin de l'équilibre thermodynamique. En particulier, de l'hélium 4 liquide à des pressions négatives, supposées être de plusieurs bars en dessous de 0, a été obtenu [balibar2002, grucker2019]. Un autre intérêt de l'étude de l'hélium métastable à basse température a été la possibilité d'observer un régime de nucléation par effet tunnel, observé expérimentalement dans les années 2000's pour des températures de quelques centaines de mK[balibar2002].

Sur le plan théorique : l'hélium liquide est une phase condensée simple (monoatomique et peu polarisable), ce qui permet de mener des études théoriques particulièrement robustes et rigoureuses. L'étude expérimentale de l'hélium constitue une mise à l'épreuve de nos outils théoriques pour la compréhension thermodynamique d'un superfluide et l'étude de la nucléation.

1.1.2 Métastabilité, pressions négatives

Diagramme de phase et états métastables : Le diagramme de phase d'un système, comme celui de l'hélium présenté sur la Fig.1.1, permet de connaître son état à l'équilibre thermodynamique pour un jeu donné de variables d'état. En revanche il n'est pas exclu, pour ce même jeu de variables d'état, de pouvoir l'observer sous une autre phase. Par exemple, par des

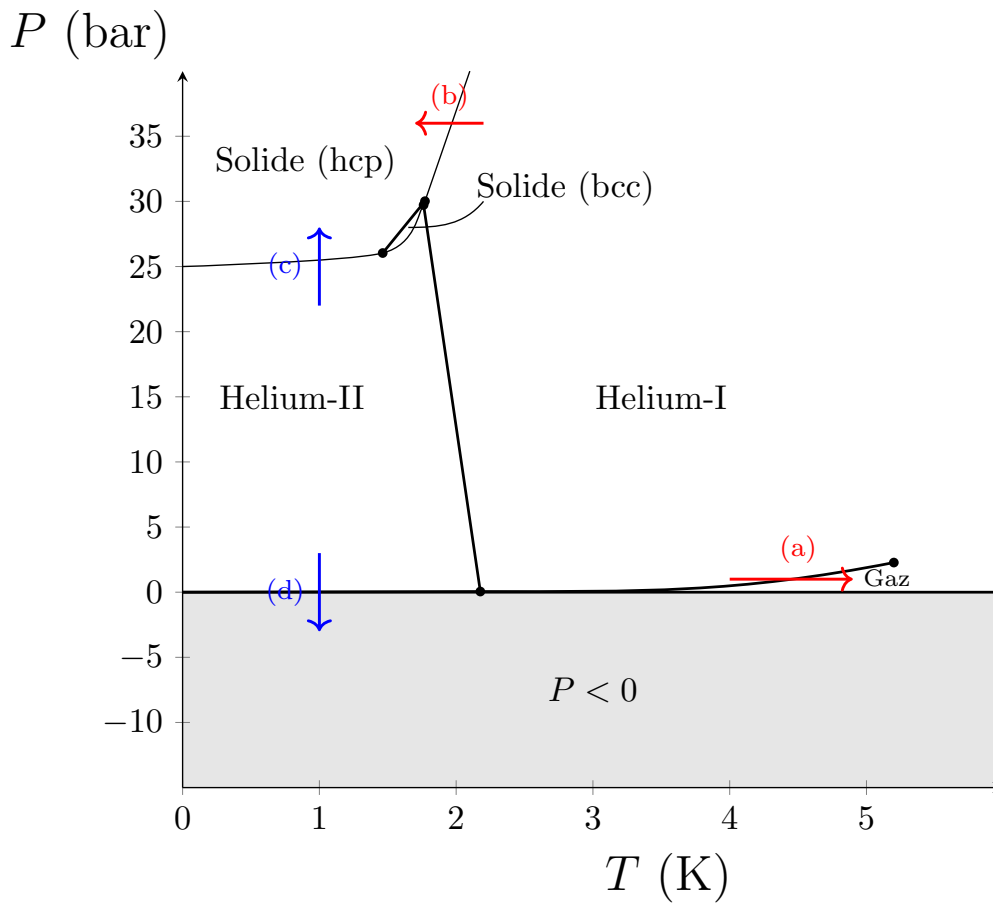


FIG. 1.1 Diagramme de phase de l'hélium 4.

précautions particulières, l'hélium (ou tout autre corps pur) peut rester liquide au-delà de sa température de vaporisation : on parle d'hélium *surchauffé*, voir flèche (a). De même, il est possible d'obtenir de l'hélium liquide à des températures plus basses que sa température de solidification : on parle d'hélium *surfondue*, voir flèche (b). L'hélium peut être *comprimé* au-delà de sa pression de solidification (flèche (c)) ou encore *étiré* en-dessous de sa pression de vapeur saturante (flèche (d)).

Dans chacune de ces situations, l'hélium est dans un état dit *métastable*. Aux temps longs, le système finit par rejoindre l'état d'équilibre thermodynamique : il y a changement d'état vers l'état le plus stable. Dans certains cas, il peut y avoir blocage cinétique (le temps de retour vers l'état d'équilibre est très long devant le temps d'observation typique). Il existe beaucoup d'exemples dans la nature de tels blocage cinétique : la diamant est un état métastable du carbone, car c'est en réalité le graphite qui est sa variété allotropique la plus stable à pression et température ambiantes. De manière générale, la possibilité de l'existence d'états métastables est associée aux transitions de phase du premier ordre, où une barrière énergétique est à franchir pour passer d'une phase à l'autre.

Au cours des années précédentes, l'équipe s'est intéressée à l'hélium 4 liquide pressurisé et étiré [qu2015, qu2017] ainsi qu'à l'hélium solide (hcp) étiré [souris2011]. Dans le cadre de ma thèse, nous nous intéresserons exclusivement à l'hélium 4 liquide étiré.

Notion de pression négative : Si l'on suit le chemin (d) l'hélium peut rester liquide à une pression bien en-dessous de sa pression de vapeur saturante, et peut même être obtenu à *pression négative*. La notion de pression négative peut paraître contre-intuitive. Au sein d'un fluide, la pression est définie en un point comme « *la force surfacique que subirait une surface matérielle si on la plaçait en ce point* » [taillet2018]. Une pression négative correspond ainsi à une interaction attractive entre les particules du milieu et cette paroi fictive, ou encore à une interaction attractive entre les différentes particules fluide. Ceci est possible en vertu des interactions attractives de Van der Waals qui existent au sein d'un fluide à l'échelle microscopique.

Prenons l'exemple d'un fluide de Van der Waals, décrit par l'équation d'état :

$$P = \frac{Nk_B T}{V - Nb} - a \frac{N^2}{V^2} \quad (1.1)$$

où k_B est la constante de Boltzmann, P la pression du fluide, V son volume, T sa température, N le nombre de particules, et a et b deux constantes.

Le premier terme du membre de droite, positif, est associé à une interaction répulsive entre les particules (potentiel des sphères dures, impénétrables), tandis que le second terme, négatif, est associé à l'interaction attractive de Van der Waals entre molécules. À volume molaire suffisamment faible, le deuxième terme prédomine et peut conduire à des pressions négatives. Notons tout de suite qu'un liquide à pression négative n'est jamais stable car sa pression est en-dessous de sa pression de vapeur saturante (toujours positive)¹.

Des pressions négatives peuvent être atteintes par simple traction (par exemple avec une seringue remplie de liquide sur laquelle on tire), par refroidissement isochore², par des écoulements rapides de fluide (en vertu de la loi de Bernoulli $\frac{1}{2}\rho v^2 + P = cste$ le long des lignes de courant pour un fluide parfait, la pression peut ainsi devenir négative pour des vitesses v suffisamment élevées), par centrifugation... Les pressions négatives ne sont pas une simple curiosité de laboratoire, et existent dans la nature. L'exemple le plus connu est celui de la sève dans les arbres : la sève circule jusqu'à la plus haute feuille d'un arbre grâce à la dépression créée par l'évaporation de l'eau au niveau des feuilles. Au niveau des racines, la sève est à pression atmosphérique, et la pression décroît d'environ 1 bar tous les 10 m, en vertu de la loi de l'hydrostatique $P = P_0 - \rho g z$. Ainsi la pression atteinte au sommet des *Redwood Pine* d'Amérique du Nord, pouvant atteindre jusqu'à 100 m de haut, peut descendre jusqu'à -9 bar ! Pour d'autres exemples nous renvoyons à la lecture du (très intéressant) chapitre 1 de la thèse d'Olivier Vincent [vincent2012], qui évoque notamment la vitesse limite de nage des dauphins ou la limitation de la force d'adhésion des ventouses des pieuvres à des surfaces à cause de la cavitation, mais également l'utilisation de la cavitation par la crevette pistolet pour assommer ses proies, ou par la fougère pour propulser ses spores.

La méthode utilisée par l'équipe pour créer des régions de pression négatives dans l'hélium est une méthode acoustique, voir Fig.1.2. Une onde sonore est focalisée dans le fluide. Le fluide est ainsi soumis à une variation périodique de pression autour de la pression statique P_{stat} . Si l'amplitude δP de cette variation est suffisante ($\delta P > P_{stat}$), on atteint un régime de pression

1. On introduit parfois la *tension* définie comme $-P$ (une tension élevée correspond à une pression basse). Dans ce manuscrit, nous continuerons de raisonner avec la pression.

2. C'est la méthode qu'utilise Berthelot en 1850 avec une ampoule remplie d'eau, et atteint ainsi des pressions de l'ordre de -50 bars ! Par une méthode de refroidissement d'eau incluse dans du quartz, des pressions de -1400 bars ont été obtenues en 1991 par Zheng *et al.* [zheng1991], et ont été étudiés encore récemment par Holten *et al.* [holten2017].

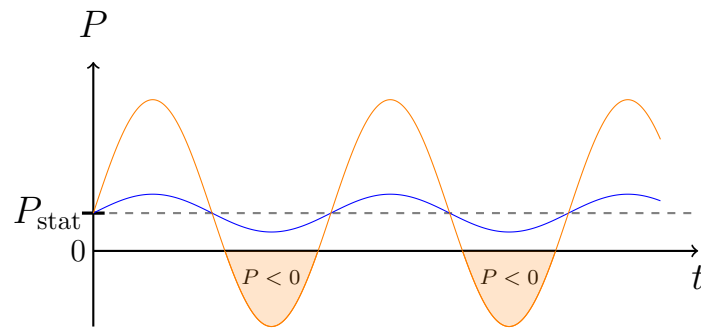


FIG. 1.2 En bleu : allure temporelle d’une onde de pression de faible amplitude créée dans un fluide de pression statique P_{stat} . Lorsqu’une onde sonore d’amplitude suffisante, des pressions négatives sont atteintes.

négative.

1.1.3 Théorie classique de la Nucléation

Barrière énergétique de nucléation : La Théorie Classique de la Nucléation (CNT pour “Classical Nucleation Theory”) vise à décrire les mécanismes qui régissent les transitions de phase d’un système. On reprend l’approche effectuée dans les Réfs.[[landau1980](#), [hirth1970](#)]. On considère un système fermé, de volume V en contact avec un réservoir de température à T . À l’équilibre thermique et mécanique, l’énergie libre F du système est le potentiel thermodynamique pertinent. On s’intéresse plus particulièrement au système présenté sur la Fig.1.3a, constitué d’un liquide et d’une bulle de rayon r au sein du liquide.

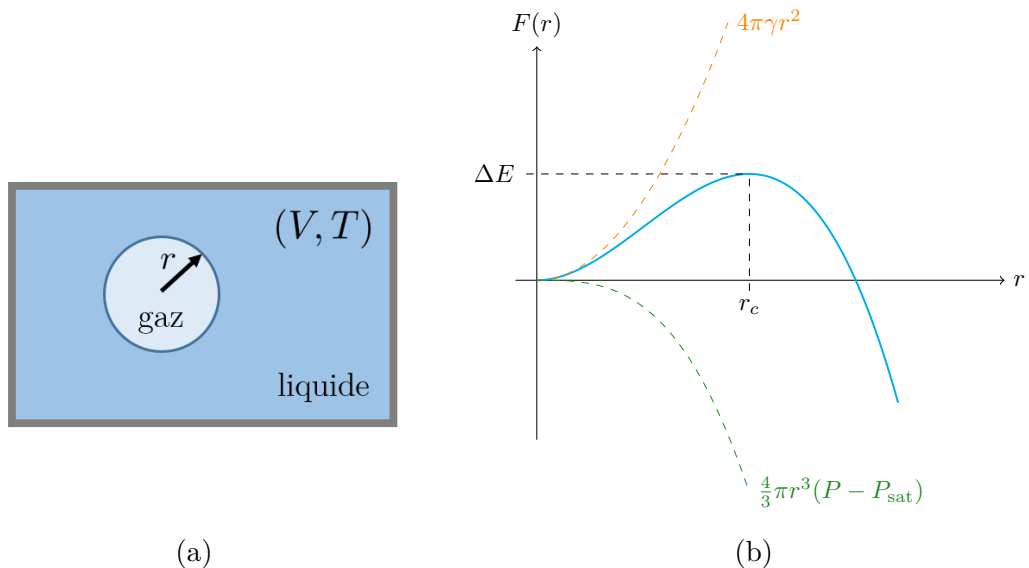


FIG. 1.3 (a) : Système étudié en théorie de la nucléation : une bulle de gaz de rayon r au sein du liquide. Les paramètres fixés sont le volume V et la température T ; (b) : Allure du potentiel thermodynamique $F(r)$ en fonction du rayon de la bulle r

La pression P du liquide est inférieure à la pression de vapeur saturante P_{sat} (le liquide est

métastable) La bulle est remplie de vapeur, à la pression P_{sat} . On note γ la tension de surface associée à l'interface liquide-gaz. L'énergie libre du système est donnée par :

$$F(r) = 4\pi\gamma r^2 + \frac{4}{3}\pi r^3(P - P_{\text{sat}}) \quad (1.2)$$

On peut réécrire l'équation sous la forme adimensionnée $F(r)/\Delta E = 3\left(\frac{r}{r_c}\right)^2 - 2\left(\frac{r}{r_c}\right)^3$ avec $\Delta E = 16\pi\gamma^3/(3(P_{\text{sat}} - P)^2)$ le maximum de F , atteint en $r_c = 2\gamma/(P_{\text{sat}} - P)$ (voir Fig.1.3b). Le premier terme dans $F(r)$ est un terme associé au coût énergétique de la création de l'interface liquide-gaz (la tension de surface), tandis que le second est un terme énergétique de travail des forces pressantes lors de la croissance de la bulle. Chacune de ces deux contributions est représentée sur la figure Fig.1.3b. On voit que le coût énergétique associé à la tension de surface est responsable de la barrière énergétique.

On retrouve, comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, la discussion de deux cas : si initialement $r > r_c$, la minimisation du potentiel thermodynamique conduit à une croissance de la bulle : l'état métastable cesse et tout le liquide se vaporise ; si $r < r_c$, le système rejoint l'état correspondant à un minimum local de F : la bulle disparaît et tout le système redevient liquide. L'état métastable correspond ainsi à un minimum local du potentiel thermodynamique, et l'état le plus stable à un minimum absolu, tous deux séparés par la barrière énergétique ΔE .

Cette barrière énergétique peut être franchie par activation thermique. La barrière de potentiel peut également être abaissée, à cause de la présence d'impuretés ou de gaz dissous dans le fluide, la présence des parois, les rayons cosmiques... Dans un tel cas, on parle de *nucléation hétérogène*, et la nucléation a lieu au niveau des zones où l'énergie potentielle est abaissée. En l'absence de tels défauts, le processus de nucléation est dit *homogène* et peut avoir lieu n'importe où dans le liquide.

Pression de cavitation. À partir de l'expression de la barrière énergétique ΔE , et à une température T , il vient que le taux de nucléation par unité de volume et par unité de temps est donné par [landau1980] :

$$\Gamma = \Gamma_0 \exp(-\Delta E/k_B T) \quad (1.3)$$

La probabilité qu'il y ait cavitation pendant une durée τ et dans un volume V est ainsi donnée par :

$$\Sigma = 1 - \exp(-\Gamma V \tau) \quad (1.4)$$

On définit la pression de cavitation P_c telle que l'on ait une chance sur deux de rompre l'état métastable par nucléation : $\Sigma(P_c) = 1/2$. Il vient :

$$P_c = -\sqrt{\frac{16\pi\gamma^3}{3k_B T \ln(\Gamma_0 V \tau / \ln(2))}} \sim -\frac{1}{\sqrt{T}} \quad (1.5)$$

Cette théorie donne souvent résultats dans les liquides usuels métastables³, et est satisfaisante dans l'hélium entre 1,6 K et 4,6 K [sinha1982, nissen1989].

3. Citons malgré tout des études récentes qui montrent les limites de la CNT dans certains liquides en raison de la taille nanométrique du rayon critique de nucléation [arvengas2011, azouzi2013, baidakov2016, bossert2021] ou d'un coefficient de tension de surface élevé [arvengas2011, bruot2016].

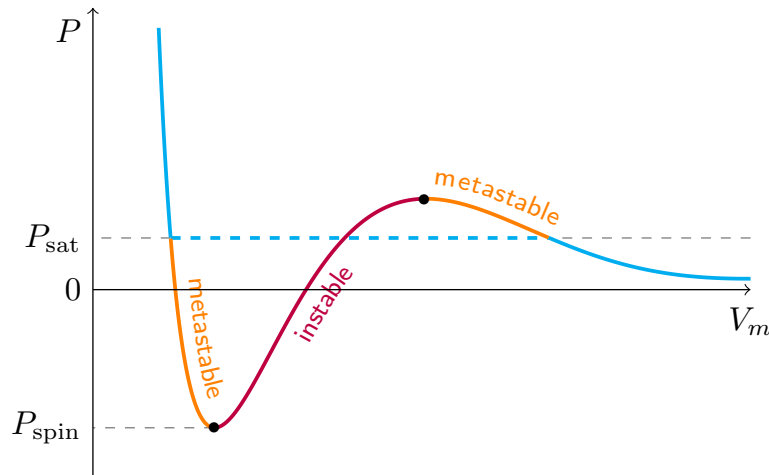


FIG. 1.4 Allure de la courbe Pression-Volume molaire pour un fluide de Van der Waals à température constante. La courbe en trait plein est une isotherme. La courbe bleue est la courbe d'évolution suivie usuellement par un fluide (présence d'un pallier de changement d'état à $P = P_{\text{sat}}$ représenté en pointillé). Le fluide peut également être obtenu dans un état métastable (orange). En revanche, la courbe en trait plein rouge est une zone où le fluide est mécaniquement instable ($\chi_T < 0$) et ne peut être atteinte. On remarque sur cette courbe que des régions métastables à $P < 0$ peuvent être atteintes. Le minimum de la courbe ($\partial P/\partial V|_T = 0$) définit la pression spinodale P_{spin} à la température de l'isotherme représentée.

1.1.4 Limites de la CNT et spinodale

La théorie de la nucléation prédit une divergence de la pression de cavitation à basse température. Cependant, un autre mécanisme peut devenir dominant à basse température pour franchir la barrière énergétique : l'effet tunnel. En prenant en compte cet effet, Akulichev & Bulanov [akulichev1975] montrent que la pression de cavitation P_c de l'hélium 4 dépend peu de la température en-dessous de 0,3 K et vaut environ -15 bars dans le cadre de la CNT.

Il existe deux autres limites à la CNT. D'abord, dans le cadre de la CNT, l'épaisseur de l'interface est négligée devant le rayon critique r_c , ce qui cesse d'être vrai proche du point critique (où l'épaisseur de l'interface liquide-gaz devient importante), ou pour les pressions très basses. D'autre part, cette théorie présuppose que l'on peut choisir une pression arbitrairement faible, et ne prend pas en compte l'équation d'état du fluide. En réalité, pour des pressions trop faibles, le fluide peut devenir mécaniquement instable : c'est la limite spinodale, en-dessous de laquelle la pression ne peut diminuer davantage. Cette limite est représentée Fig.1.4, où on représente en trait plein l'allure d'une isotherme de Van der Waals pour un fluide. Lors d'une évolution du fluide, la courbe bleue (en trait plein et pointillé) est en général suivie, avec la présence d'un pallier de changement d'état à $P = P_{\text{sat}}$. Mais le fluide peut être obtenu dans un état métastable (orange). En revanche, la courbe rouge correspond à une région où la compressibilité du fluide est négative : le fluide est mécaniquement instable. La limite spinodale est donnée par le minimum de la courbe $P(V)$, soit $(\partial P/\partial V)_T = 0$, où la compressibilité du fluide diverge. Il est à noter que la pression spinodale dépend de la température.

L'existence de la limite spinodale, qui est la frontière avec la zone d'instabilité mécanique du fluide, a une influence sur la barrière énergétique ΔE décrite précédemment. À la limite spinodale, la barrière énergétique de cavitation ΔE s'annule. D'autre part, dans cette même

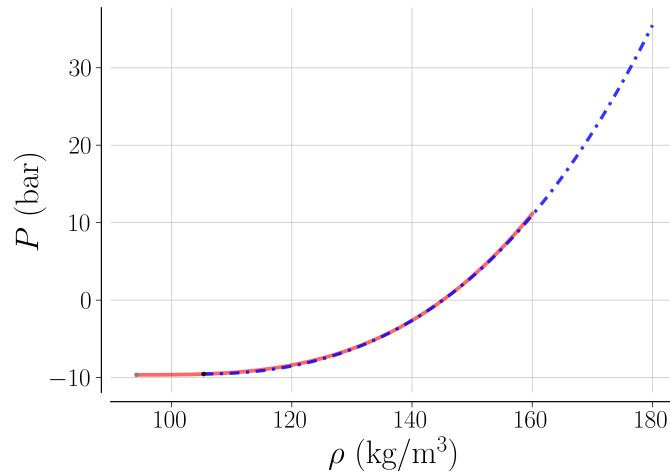


FIG. 1.5 Équations d'état $P(\rho)$ proposées par Maris [maris1994] (courbe rouge) et par Dalfovo *et al.* [dalfovo1995] (courbe bleue en traits pointillés), voir texte.

limite, en raison de la divergence de χ_T , l'interface liquide-gaz devient de plus en plus grande, jusqu'à être comparable au rayon critique r_c . La pression de cavitation attendue en prenant en compte cette instabilité peut être calculée à condition de connaître l'équation d'état du fluide à pression négative. Comme nous le verrons, la prise en compte de cette instabilité pour l'hélium liquide est essentielle pour comprendre les résultats obtenus expérimentalement.

1.1.5 Équation d'état (EoS) et ligne de nucléation de l'hélium liquide

Équations d'état de l'hélium liquide à pression négative L'équation d'état (EoS) de l'hélium a été déterminée théoriquement par plusieurs méthodes :

- Une équation d'état de l'hélium liquide à pression négative a été proposée par Maris dans la Réf.[maris1994]. Cette approche repose sur l'extrapolation des mesures de "vitesse du son isothermes" $v_T \equiv \sqrt{(\partial P / \partial \rho)_T}$ à pression positive réalisées par Abraham *et al.* [abraham1970, caupin2001]. Comme le souligne Maris, à 0,1 K et à $P > 0$ la vitesse du son isotherme v_T peut être ajustée de manière satisfaisante par la loi $v_T(P) = a(P - P_1)^{1/3}$ avec a et P_1 deux constantes. Il propose que cette relation soit toujours valable dans l'hélium métastable. Cette relation conduit à l'équation d'état :

$$P(\rho) = P_{\text{spin}} + b(\rho - \rho_{\text{spin}})^3 \quad (1.6)$$

avec $P_{\text{spin}} = -9,6435$ bar ; $b = 7,2904 \cdot 10^{-5}$ bar.(kg.m⁻³)⁻³, $\rho_{\text{spin}} = 94,175$ kg.m⁻³. Cette EoS est supposée vraie à 0 K. On la représente sur la Fig.1.5.

- Bauer *et al.* [bauer2000] ont calculé l'équation d'état de l'hélium à pression négative à partir de simulations de Monte Carlo. Ils retrouvent la même dépendance de v_T en fonction de P que celle proposée par Maris.
- Dalfovo *et al.* [dalfovo1995] ont calculé l'équation d'état de l'hélium à $T = 0$ K par la théorie de la fonctionnelle de la densité. Il s'agit d'une approche phénoménologique où

l'énergie massique de l'hélium est donnée par la fonctionnelle :

$$\epsilon(\rho) = c_1\rho + \frac{c_2}{2}\rho^2 + \frac{c_3}{3}\rho^3 \quad (1.7)$$

avec $c_1 = -112,36 \text{ J.m}^3.\text{kg}^{-2}$ un paramètre directement lié au type d'interaction choisi pour décrire les interactions interatomiques (potentiel de Lennard-Jones écranté), et $c_2 = -1,134125 \text{ J.m}^6.\text{kg}^{-3}$ et $c_3 = 0,01314860 \text{ J.m}^9.\text{kg}^{-4}$ des paramètres choisis de manière à rendre compte des propriétés thermodynamiques de l'hélium. La pression est alors donnée par :

$$P \equiv \rho^2 \frac{\partial \epsilon}{\partial \rho} = c_1\rho^2 + c_2\rho^3 + c_3\rho^4 \quad (1.8)$$

Cette équation d'état à 0 K est représentée sur la Fig.1.5 en trait pointillé bleu. La limite spinodale est atteinte pour $P_{\text{spin}} = -9,53 \text{ bar}$ et $\rho_{\text{spin}} = 105,32 \text{ kg.m}^{-3}$.

- Boronat *et al.* [boronat1994] calculent l'équation d'état $P(\rho)$ à 0 K sur un intervalle de pression allant de la pression spinodale à la pression de solidification de l'hélium. La méthode utilisée repose sur la résolution stochastique de l'équation de Schrödinger (méthode de Monte Carlo à diffusion quadratique), en utilisant le potentiel d'interaction interatomique "Aziz II". Leur résultat peut être ajusté de manière satisfaisante en utilisant, pour l'énergie massique de l'hélium, la fonctionnelle suivante :

$$\epsilon(\rho) = b\rho + c\rho^{1+\gamma} \quad (1.9)$$

avec b , c et γ trois constantes. Ils trouvent $\rho_{\text{spin}} = 105,1(8) \text{ kg.m}^{-3}$ et $P_{\text{spin}} = -9,4(2) \text{ bar}$. Ils montrent en particulier que sur une large gamme de pression, la dépendance de la vitesse du son isotherme avec la pression est de la forme $v_T \propto (P - P_{\text{spin}})^\nu$ avec $\nu = 0,322(7) \simeq 1/3$. En revanche, lorsque la pression P est proche de la spinodale (pour $P_{\text{spin}} - P/P_{\text{spin}} < 1\%$), on a $\nu = 1/4$, comme attendu théoriquement [maris1991].

Les équations d'état calculées à 0 K, et l'équation d'état empirique de Maris extrapolées à partir des mesures de vitesse du son à 0,1 K sont toutes en accord à quelques pourcents près. De plus Maris & Edwards ont montré (en utilisant une méthode de la fonctionnelle de la densité) que l'équation d'état est presque indépendante de la température pour $0 < T < 1 \text{ K}$ [maris2002].

Limite spinodale et ligne de nucléation de l'hélium liquide La limite spinodale de l'hélium a été calculée par Jezek *et al.* [jezek1993] en utilisant la théorie de la fonctionnelle de la densité. Elle est présentée sur la Fig.1.6. D'autres approches conduisent à des résultats similaires [guirao1992, hall1997, bauer2000].

Jezek *et al.* ont également calculé la ligne de nucléation de l'hélium, en faisant l'hypothèse que la cavitation est homogène (absence d'impuretés). Afin de déterminer cette ligne, Jezek *et al.* ont considéré un volume $V \sim 10^{-12} \text{ m}^3$ de liquide métastable sur une durée $\tau \sim 0,1 \text{ } \mu\text{s}$, échelles spatiale et temporelle qui correspondent au volume et temps typiques utilisés dans toutes les expériences où les états métastables sont créés acoustiquement après 1989 (voir plus loin section 1.2.2). Cette ligne est représentée en pointillé sur la Fig.1.6. En particulier, on remarque qu'en dessous de 0,3 K, la pression de cavitation est constante avec la température. Cela correspond au régime où la barrière de nucléation est franchie par effet tunnel.

On représente aussi sur cette figure la ligne de nucléation prédite par la CNT, et l'on peut voir que les pressions de cavitation prédites par cette théorie ne peuvent décrire correctement l'hélium liquide à basse température.

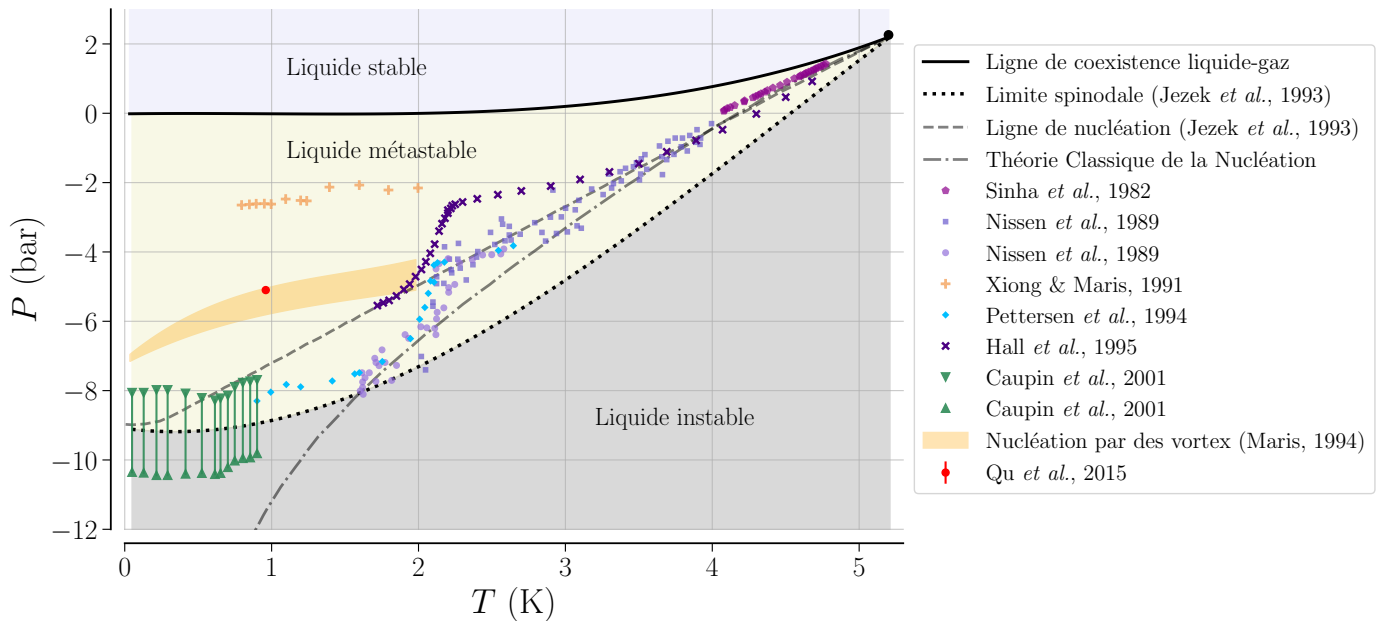


FIG. 1.6 Situation en début 2019 de notre compréhension de l'hélium 4 métastable ($P < 0$). Les lignes en pointillé correspondent à la limite spinodale et à la ligne de nucléation (courbe telle que la probabilité de cavitation soit $1/2$), calculées théoriquement par Jezek *et al.* [jezek1993]. Les points correspondent à différentes estimations expérimentales de la pression de cavitation à différentes températures. Enfin, la zone en jaune correspond à une estimation de la pression de cavitation entre 0 et 2 K en présence de lignes de vortex, dont la densité est comprise entre 10^4 et 10^{12} cm/cm³[maris1994].

1.2 Études expérimentales de l'hélium 4 à pression négative

1.2.1 Création des états métastables dans l'hélium liquide

Étude de l'hélium surchauffé, Sinha *et al.*, 1982 : Une première étude de l'hélium métastable a été effectuée par Sinha *et al.* [sinha1982]. Les états métastables sont créés thermiquement (hélium liquide *surchauffé* à des températures supérieures à sa température de vaporisation). Dans l'expérience de Sinha *et al.* un cristal de bismuth est plongé dans le bain d'hélium. Une série d'impulsions électrique est appliquée au cristal, ce qui a pour effet de le chauffer par effet Joule. Les variations de température du cristal sont mesurées à l'aide des variations de sa magnétorésistance. Une fine couche d'hélium est alors chauffée à la surface du cristal. Même si la cavitation a lieu proche de la surface du cristal, les résultats sont en accord avec les mécanismes de cavitation homogène. Cela s'explique par le fait que l'hélium mouille efficacement toutes les surfaces (excepté le césium [nacher1991]), d'où l'absence de sites de nucléation hétérogène à l'interface, comme des poches de gaz piégées à la surface du matériau. Les températures de nucléation des premières bulles de gaz sont représentées sur la Fig.1.6).

Premières expériences de cavitation dans l'hélium : Marston [marston1976] et [maris1993] Maris passent en revue les expériences de détermination de la pression de cavitation dans l'hélium superfluide jusqu'en 1976. Toutes ces mesures ne vont pas en-dessous de -1 bar. Dans ces expériences, des volumes importants ($> \text{cm}^3$) ont été étudiés, souvent avec des vases Dewar ouverts, donnant ainsi de grandes chances à ce que la nucléation intervienne sur des hétérogénéités, comme des germes d'air gelé ou des ions positifs ou négatifs provenant de rayons cosmiques ou de sources radioactives.

Nouvelles méthodes de création des états métastables par focalisation d'ondes acoustiques : En 1988, Nissen *et al.* [nissen1988] développent une nouvelle technique de création des états métastables permettant de diminuer considérablement les risques de nucléation hétérogène. Ils utilisent un émetteur piézoélectrique hémisphérique, permettant de focaliser une onde ultrasonore ($\sim 600 \text{ kHz}$) dans l'hélium, voir Fig.1.7. L'avantage de cette technique est la réduction considérable du volume ($\sim 10^{-5} \text{cm}^3$) et de la durée ($\sim 10^{-6} \text{ s}$) des états métastables, qui permet de réduire les chances de cavitation hétérogène à cause d'impuretés. Aussi, l'amplitude de l'onde sonore est maximale au foyer acoustique de l'onde sonore, situé loin des parois de l'émetteur, ce qui réduit les chances de nucléation sur les parois. Un dernier avantage vient de l'utilisation d'une cellule scellée, remplie d'hélium liquide préalablement purifié et filtré : on évite ainsi tout contact direct avec l'air.

Toutes les expériences que nous décrirons dans la suite (y compris notre propre montage expérimental, voir Chapitre 5) utilisent ce dispositif pour la création des états métastables.

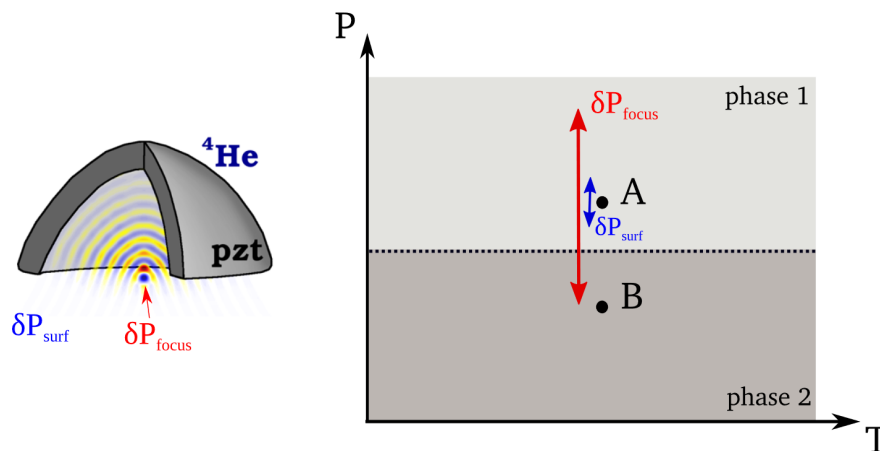


FIG. 1.7 **À gauche :** schéma de l'émetteur piézoélectrique hémisphérique permettant de focaliser une onde acoustique dans l'hélium. L'amplitude de l'onde acoustique au niveau de la paroi interne est δP_{surf} , et l'amplitude de l'onde acoustique au foyer est δP_{focus} . **À droite :** représentation des transformations effectuées dans le diagramme d'état de l'hélium, en partant d'un point A. L'amplitude au niveau de la paroi de l'émetteur n'est pas suffisante pour atteindre des pressions négatives, contrairement à l'amplitude au foyer, qui permet d'atteindre B (où $P < 0$). Un dispositif analogue peut être utilisé pour créer de l'hélium solide métastable (en-dessous de sa pression de fusion).

1.2.2 Estimation des propriétés de l'hélium liquide au seuil de cavitation

L'apparition d'une bulle de cavitation peut être aisément observée dans l'hélium liquide, par exemple à partir du signal de diffusion d'un laser focalisé sur le foyer acoustique de l'onde sonore. Une difficulté expérimentale majeure est la mesure directe des propriétés de l'hélium au seuil de cavitation, comme la densité ρ ou la pression P au niveau de la région métastable. Dans les années 1990 et 2000, certaines propriétés de l'hélium métastable ont pu malgré tout être estimées indirectement. Ces différentes mesures sont présentés sur la Fig.1.6. Nous en détaillons ci-dessous la méthode.

Résultats de Nissen *et al.*, 1989 : Nissen *et al.* estiment la pression au seuil de cavitation par deux méthodes [nissen1989] (voir points et carrés violets de la Fig.1.6). La première est basée sur la mesure de la puissance consommée par l'émetteur piézoélectrique et l'estimation de la puissance sonore rayonnée, la géométrie de l'émetteur et certains éléments théoriques relatifs à l'absorption non-linéaire des ondes de choc dans les fluides. La seconde méthode utilise la fraction de lumière diffractée par l'onde au centre du foyer pour estimer la pression. Dans l'intervalle de température 1,6 K - 2,2 K, P_c est estimée entre -6 bars et -8 bars avec une incertitude de l'ordre de 20%. Comme nous le verrons plus loin avec la présentation des développements théoriques, ces mesures sont compatibles avec le scénario de cavitation homogène dans l'hélium. Cependant, ces estimations sont remises en cause quelques années plus tard par Xiong & Maris[xiong1991]. La première estimation de P_c par Nissen *et al.* surestime la pression, en recourant à l'hypothèse de création d'ondes de choc par l'émetteur piézoélectrique. D'après des simulations, cette hypothèse n'est pas justifiée pour les amplitudes de pression mises en jeu. Dans leur deuxième méthode d'estimation de P_c , Nissen *et al.* étudient la diffraction de la lumière au niveau du foyer acoustique. S'il est raisonnable, au foyer acoustique, de considérer que l'indice de réfraction est linéaire avec la densité ρ , il n'est en revanche pas correct de considérer que la variation de pression est linéaire avec la variation de densité comme cela a été supposé par Nissen *et al.*. L'équation d'état théorique prédit des non-linéarités importantes dans la relation entre P et ρ , et les estimations de Nissen *et al.* pourraient être faussées de plusieurs bars.

Résultats de Xiong & Maris, 1991 : En utilisant une configuration expérimentale similaire, Xiong & Maris [xiong1991] effectuent des mesures allant de 0,8 K à 2 K (croix jaunes sur la Fig.1.6). Leurs mesures conduisent à des pressions de cavitation beaucoup plus élevées, de l'ordre de -3 bar, avec une incertitude de l'ordre de 10% selon les auteurs. L'estimation de P_c par Xiong & Maris repose sur une simulation de la propagation du son par un émetteur piézoélectrique hémisphérique, et sur l'équation d'état théorique de l'hélium à pression négative[xiong1989]. Les possibles réflexions de l'onde sonore dans la cellule, qui augmenteraient ou diminueraient la pression au foyer, ont un effet négligeable (le volume de la cellule contenant l'hélium liquide, $\sim 1 \text{ cm}^3$, devant le volume du foyer acoustique où les états métastables sont créés, de l'ordre de $\sim 10^{-5} \text{ cm}^3$). Comme on peut le voir sur la Fig.1.6, cette évaluation de P_c est en désaccord avec la pression de cavitation attendue d'après la théorie, de l'ordre de -5 à -7 bar à ces températures (voir la "ligne de nucléation" en pointillé gris sur la Fig.1.6).

Plusieurs pistes sont envisagées pour expliquer cet écart. L'effet de l'élévation de la température due à la compression adiabatique lors du passage de l'onde sonore, évalué à partir leur

modèle théorique des propriétés de l'hélium à pression négative [xiong1989], n'est pas suffisant pour expliquer un tel désaccord. Parmi les différents scénarios possibles, il y a la possible élévation de température due à l'atténuation de l'onde sonore dans l'hélium, ou encore le fait que la présence de vortex baisse la barrière énergétique de cavitation (cavitation hétérogène sur les vortex). C'est cette dernière hypothèse qui est privilégiée par les auteurs, et qui mènera à des estimations théoriques de l'effet des vortex sur les seuils de cavitation [maris1994], que nous décrirons plus loin.

Résultats de Pettersen *et al.* (étude réalisée conjointement par l'équipe de S. Balibar et H. Maris), 1994 : En 1994, Pettersen *et al.* [pettersen1994] effectuent une analyse minutieuse de la statistique de cavitation (étude de la probabilité de cavitation en fonction de V) dans l'hélium liquide de 0,8 K à 2,8 K, qui tend à conforter l'hypothèse selon laquelle les vortex jouent un rôle dans le processus de cavitation. Ils effectuent également des expériences avec de l'hélium liquide possédant une abondance naturelle en hélium 3, et avec de l'hélium liquide purifié isotopiquement : aucune différence n'est détectée. Aussi, lorsque l'émetteur piézoélectrique est excité, deux types de perturbations se propagent : des ondes de densité, et des ondes de chaleur (dus à la dissipation de chaleur dans l'émetteur) de vitesse environ douze fois plus faible que le premier son dans le superfluide à $T > 1$ K. Pettersen *et al.* montrent que les bulles de cavitation apparaissent bien avant que les ondes de chaleur n'atteignent le foyer acoustique, ce qui montre que la cavitation n'est pas due aux effets thermiques associés à la propagation de ces ondes de chaleur. Dans leur expérience, Pettersen *et al.* ne font pas d'estimation de la pression de cavitation, et ne mesurent que la tension V_c à laquelle les bulles de cavitation apparaissent. Cependant, une calibration a été effectuée par Balibar & Caupin [balibar2002bis] : les données sont converties en pression de manière à être en accord avec les données de Nissen *et al.*

Résultats de Hall *et al.* (équipe de H. Maris), 1995 : En 1995, Hall *et al.* [hall1995] étudient la nucléation de bulles de gaz par des électrons dans l'hélium métastable. L'équipe mesure la tension critique d'alimentation de l'émetteur piézoélectrique V à laquelle la probabilité de cavitation est $1/2$. Ils effectuent des mesures dans l'hélium en présence d'une source radioactive à proximité, qui émet de électrons. La cavitation est alors hétérogène : la présence des électrons abaisse la barrière énergétique de nucléation ΔE , et la cavitation a lieu à des pressions plus hautes que dans le cas de la cavitation homogène. La mesure de V_{el} (tension critique à laquelle a lieu la cavitation en présence de la source radioactive) en fonction de la température suit la tendance attendue d'après la théorie en supposant une relation de proportionnalité entre la pression et la tension : $P = aV$. Le coefficient a est alors déterminé en comparant les résultats à la théorie. Entre 1,8 K et 3,2 K, les pressions de cavitation en présence d'électrons sont comprises entre -2 bar et -1 bar. L'équipe a réitéré l'expérience, cette fois en l'absence de source radioactive entre 1,8 K et 3,2 K. Ils supposent que la relation $P = aV$ est toujours vérifiée, et utilisent cette relation pour déterminer la pression de cavitation en l'absence de source radioactive. La pression estimée est comprise entre -2,5 bar et -5,5 bar (voir croix violettes sur la Fig.1.6). Comme cela est précisé par les auteurs, l'hypothèse d'une relation linéaire entre V et P est beaucoup plus critiquable dans ce dernier cas, où les tensions V en jeu sont plus importantes. Ces résultats sont donc à considérer avec recul et précaution.

Résultats de Caupin *et al.* (équipe de S. Balibar), 2001 : Plusieurs années plus tard, Caupin & Balibar donnent d'autres estimations de la pression de cavitation,

en prenant cette fois en considération l'effet des non-linéarités de l'EoS de l'hélium à pression négative[caupin2001]. Dans leur expérience, l'hélium liquide est initialement à une pression statique notée P_{stat} . Une onde sonore est focalisée à l'aide d'un émetteur piézoélectrique alimenté par une salve sinusoïdale de plusieurs oscillations d'amplitude V . On fait varier la tension d'alimentation V de l'émetteur piézoélectrique jusqu'à créer des bulles de cavitation (pour $V = V_c$), voir Fig.1.8(a). À une température donnée, on fait varier la pression statique P_{stat} (de la pression de vapeur saturante de l'hélium liquide à 1,4 bar) et on mesure la tension de cavitation V_c associée à chaque valeur de P_{stat} . Si la propagation du son était linéaire, on s'attendrait à $(P_{\text{stat}} - P_c) \propto \rho V_c$ avec ρ la densité du liquide au repos et P_c la pression de cavitation. À une température donnée, P_c est fixée, donc on s'attendrait à une relation affine entre P_{stat} et ρV_c (voir courbe en pointillés sur la Fig.1.8). Mais à mesure que la pression diminue, la compressibilité du liquide augmente (et diverge à la spinodale). On s'attend ainsi à ce que la courbe $P_{\text{stat}}(\rho V_c)$ soit en réalité concave (voir courbe noire en trait plein de la Fig.1.8). À partir de ces considérations sur l'allure de la courbe $P_{\text{stat}}(\rho V_c)$, les mesures de ρV_c en fonction de P_{stat} (entre 0 et 1,4 bar) permettent de remonter à une borne inférieure et une borne supérieure de P_c à une température donnée, comme le montre la Fig.1.8(b). À $T \sim 1$ K, on obtient $-10 \text{ bar} < P_c < -8 \text{ bar}$. La pression de cavitation estimée par cette méthode est alors très proche de la valeur de la pression spinodale $P_{\text{spin}}(1 \text{ K}) \sim -9 \text{ bar}$ [jezek1993, bauer2000].

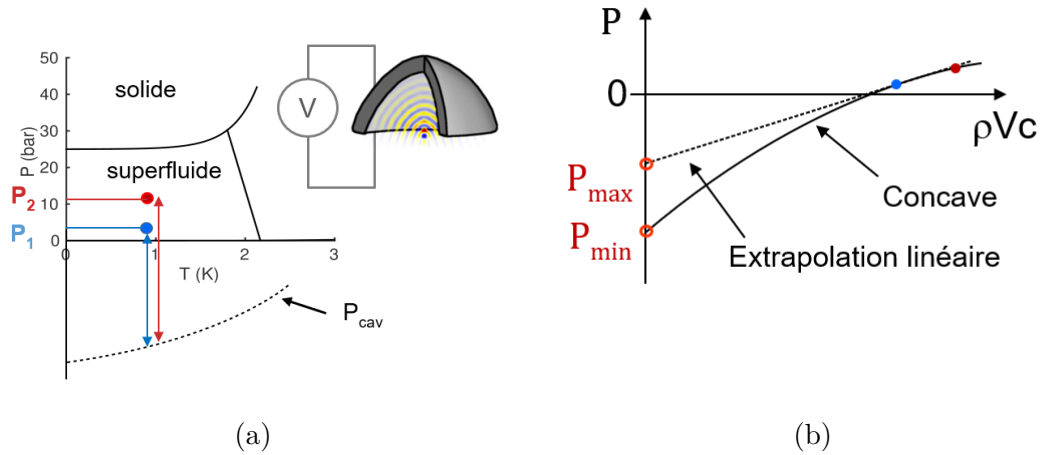


FIG. 1.8 (a) : Principe de l'expérience de Caupin & Balibar (2001)[caupin2001]. On mesure, pour différentes valeurs de pression statique de l'hélium, l'amplitude V_c du signal de tension d'excitation de l'émetteur piézoélectrique nécessaire pour créer une bulle de cavitation. (b) Les valeurs de pression statique sont tracées en fonction de ρV_c . En raison des non-linéarités de l'EoS, une telle courbe doit être concave. Les mesures réalisées pour différentes valeurs de pression statique permettent de remonter à une borne inférieure de la pression de cavitation. Une extrapolation linéaire donne une borne supérieure de la tension de cavitation.

Résultats de notre équipe (Qu *et al.*, 2015) : Par un dispositif interférométrique que nous décrivons au Chap.6 l'équipe a mesuré la densité de l'hélium au seuil de cavitation à $T = 0,96 \text{ K}$ [qu2015] :

$$\rho_c = 133,8(2) \text{ kg.m}^{-3} \quad (1.10)$$

Cette mesure est la première mesure **directe** d’une des propriétés de l’hélium au seuil de cavitation. Afin de convertir cette valeur de densité en valeur de pression de cavitation, l’équipe a utilisé l’équation d’état théorique de l’hélium à pression négative (cf Éq.(1.6)). Ceci conduit à :

$$P_c(1 \text{ K}) = -5,1(1) \text{ bar} \quad (1.11)$$

Un tel point est représenté en rouge sur la Fig.1.6.

Bilan de la situation en 2019 : On observe une grande dispersion dans les estimations expérimentales de P_c représentées sur la Fig.1.6. Une première raison est que la plupart de ces mesures ne prennent pas en compte les non-linéarités de l’équation d’état de l’hélium à pression négative. Une seconde raison permettant de l’expliquer est que ces méthodes sont, à l’exception de celle de Qu *et al.*, indirectes. Les deux mesures les plus pertinentes sont celle de Caupin & Balibar, qui prennent en compte la non-linéarité de l’équation d’état, et celle de Qu *et al.* qui est une mesure directe de ρ_c (mais a recourt à une équation d’état théorique pour estimer P_c). En revanche, les estimations de P_c à 1 K par ces deux méthodes sont en nette contradiction : la mesure de Caupin & Balibar conduit à $P_c < -8$ bar à 1 K tandis que celle de Qu *et al.* conduit à $P_c = -5.1(1)$ bar⁴. Par ailleurs, les prédictions théoriques de la pression de cavitation conduisent à $P_c^{\text{Jezek}}(0,96 \text{ K}) \sim -6,9$ bar[jezek1993] (voir “ligne de nucléation” sur la Fig.1.6). Cette valeur est intermédiaire entre celle obtenue par Qu *et al.* et celle estimée par Caupin & Balibar.

1.2.3 La piste de la nucléation hétérogène

Il est intéressant de noter que la mesure de Qu *et al.* semble en accord avec un modèle de nucléation prenant en compte la présence de vortex quantifiés dans l’hélium superfluide[maris1994] (nucléation hétérogène par des vortex). Du fait de la circulation du liquide au sein d’un vortex, la pression est diminuée localement. La présence de vortex peut ainsi abaisser la barrière énergétique de nucléation. On peut estimer les diminutions typiques de pression par un rapide calcul d’ordre de grandeur. La vitesse de circulation du fluide au sein des vortex est $v = \hbar/m_{\text{He}}r$ à une distance r par rapport au centre du vortex. Le rayon d’un vortex est de l’ordre de $r = 2,5 \text{ \AA}$, la vitesse typique de circulation du fluide est donc $v = 60 \text{ m.s}^{-1}$ ce qui correspond à une réduction de la pression de 2,4 bar en utilisant la formule de Bernoulli décrivant les fluides parfaits[balibar2002]. Ce rapide calcul d’ordre de grandeur montre que la pression diminue localement de plusieurs bars. On peut donc s’attendre à ce que, en présence de vortex, la cavitation soit déclenchée à des pressions plus élevées. En utilisant une méthode de la fonctionnelle de la densité, Maris calcule précisément les valeurs de pression de cavitation attendues pour des densités de vortex “raisonnables” (typiquement attendues dans les configurations expérimentales de ces expériences, et comprises entre 10^4 et 10^{12} cm^{-2} [maris1994]). On représente le résultat de ces estimations par la zone en jaune sur la Fig.1.6. En particulier, à $T = 1 \text{ K}$, Maris trouve que la pression de

4. Il est important de noter que Qu *et al.* ont reproduit la même expérience que celle de Caupin & Balibar avec leur dispositif expérimental (mesure de ρV_c en fonction de P_{stat}) et sont parvenus au même résultat que ces derniers (en trouvant une borne supérieure de $-7.9(3)$ bar pour P_c). Le désaccord entre les résultats des expériences de Caupin & Balibar et de Qu *et al.* ne provient donc pas d’une éventuelle différence dans les conditions expérimentales avec lesquelles l’hélium est étudié.

cavitation est comprise entre -5.8 and -5,1 bar. On remarque que la valeur obtenue par Qu *et al.* est compatible avec cette estimation théorique.

1.3 Objectifs de la thèse

Afin de comprendre l'incompatibilité des mesures de Caupin & Balibar et celles de Qu *et al.*, il est important de mesurer **expérimentalement** l'EoS de l'hélium liquide métastable. Cela permettra d'une part de tester la validité de l'équation d'état théorique. D'autre part, cela permettrait d'obtenir une mesure purement expérimentale de P_c , qui pourra pencher en faveur du scénario de cavitation homogène, ou au contraire d'un scénario de cavitation hétérogène (par des vortex par exemple).

La mesure expérimentale de l'équation d'état à pression négative de l'hélium liquide est une tâche *a priori* difficile à réaliser : elle requiert une technique capable de sonder la vitesse du son au sein de la région métastable, dont la taille correspond typiquement à la demi-longueur d'onde de l'onde sonore acoustique ($\sim 100 \mu\text{m}$), et sur des durées de l'ordre $\sim 400 \text{ ns}$ (durée de l'état métastable)[qu2015]. De plus, une technique non intrusive est nécessaire afin de ne pas déstabiliser la région métastable en lui offrant des sites de nucléation hétérogène⁵.

Nous proposons dans ce travail de thèse une mesure expérimentale de l'équation d'état à partir de la mesure locale de la vitesse du son dans l'hélium métastable. La vitesse du son dans un milieu est donnée par :

$$v = \sqrt{\left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_S} \quad (1.12)$$

avec P , ρ et S respectivement la pression, la densité et l'entropie du milieu. Une mesure locale de v , couplée à la mesure de ρ déjà mise en place, permet de remonter à la pression P par intégration et ainsi à l'équation d'état de l'hélium à entropie constante.

Dans ma thèse, nous avons mesuré v par une technique de Spectroscopie Brillouin Stimulée, qui est une technique optique non intrusive. Nous avons adapté cette technique afin de pouvoir réaliser des mesures à des échelles spatiales et temporelles suffisamment petites pour étudier la région métastable. La description de cette technique fait l'objet du prochain chapitre.

5. Bien que l'hélium soit connu pour mouiller parfaitement toutes les surfaces, il n'empêche que des expériences de Caupin & Balibar (où une onde acoustique est focalisée sur une plaque de verre) suspectent des phénomènes possibles de cavitation hétérogène[chavanne2002].

2 – Principe de la Spectroscopie Brillouin Stimulée

Sommaire

2.1 Diffusion Brillouin spontanée	24
2.1.1 Spectres Brillouin	24
2.1.2 Principe de la diffusion Brillouin : approche quantique .	25
2.1.3 Principe de la diffusion Brillouin : approche “milieux continus”	25
2.1.4 Expériences de diffusion Brillouin spontanée dans l’hé- lium liquide et dans les états métastables de l’eau	27
2.2 Diffusion Brillouin stimulée	28
2.2.1 Approche qualitative	29
2.2.2 Couplage lumière-matière électrostrictif	29
2.2.3 Amplification du retour et seuil Brillouin	30
2.2.4 Régime permanent	32
2.2.5 Régime transitoire	33
2.2.6 Expériences de diffusion Brillouin stimulée dans l’hélium	34
2.2.7 Tentatives de diffusion Brillouin stimulée	34
2.3 Spectroscopie Brillouin Stimulée (SBS)	34
2.3.1 Principe de la SBS	35
2.3.2 Avantages	36
2.3.3 Régime transitoire	37
2.3.4 Expériences de Spectroscopie Brillouin Stimulée	39
2.3.5 Spectroscopie Brillouin à faisceaux croisés	41
2.4 Cahier des charges en vue des expériences de SBS dans l’hélium 4	42
2.4.1 Estimation de Ω_B et de Γ_B	42
2.4.2 Estimation du facteur d’amplification Brillouin dans l’hé- lium	43

2.4.3 Estimations des caractéristiques requises pour les laser pompe et sonde 44

Introduction

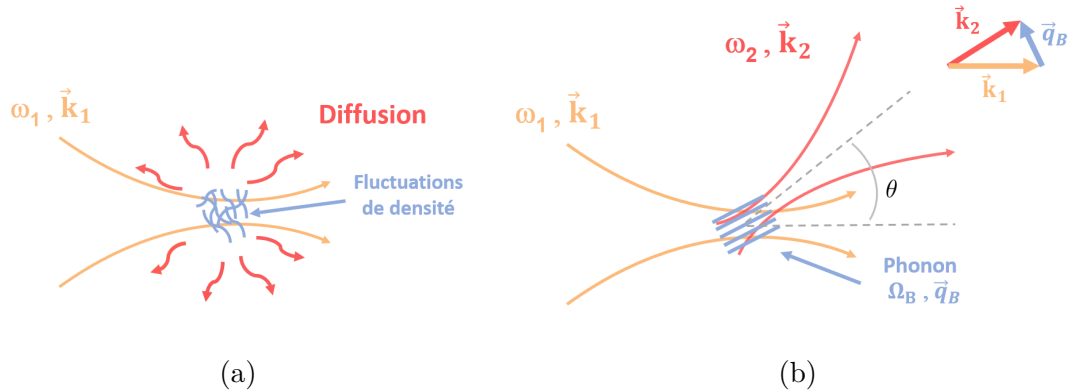


FIG. 2.1 (a) : Diffusion d’une onde électromagnétique (pulsation ω_1 ; vecteur d’onde \vec{k}_1) par les fluctuations de densité d’un milieu ; (b) : Diffusion d’une onde électromagnétique par un phonon (pulsation Ω ; vecteur d’onde \vec{q}). L’angle θ correspond à l’angle de diffusion.

La lumière peut être diffusée spontanément dans un milieu en raison de fluctuations de la permittivité relative ϵ_r , voir Fig.2.1(a). Ces fluctuations sont associées à des fluctuations de la densité ρ par la relation $\Delta\epsilon_r = (\gamma_e/\rho)\Delta\rho$ avec $\gamma_e = \rho \left(\frac{\partial\epsilon_r}{\partial\rho} \right)$ la constante électrostrictive du milieu[boyd2010]. Si l’on choisit l’entropie S et la pression P comme variables thermodynamiques indépendantes pour décrire le milieu, on peut décomposer les fluctuations de densité en $\Delta\rho = \left(\frac{\partial\rho}{\partial P} \right)_S \Delta P + \left(\frac{\partial\rho}{\partial S} \right)_P \Delta S$. On distingue alors plusieurs types de diffusion :

- Le premier terme, associé à des variations isentropiques de la pression, correspond à la propagation d’ondes sonores. La diffusion de la lumière sur les modulations de densité associées conduit à un décalage de la fréquence par effet Doppler. Un tel processus de diffusion, inélastique, est appelé **diffusion Brillouin**.
- Le deuxième terme correspond à des variations isobares de l’entropie du fluide (que l’on peut voir également comme des variations de la température du fluide à pression constante). Ces fluctuations obéissent à une équation de diffusion. Ces modulations de densité sont donc non-propagatives, et le processus de diffusion associé est élastique (pas de décalage de fréquence) : c’est la **diffusion Rayleigh**.

Remarque : Il peut également y avoir diffusion inélastique de la lumière résultant de l’interaction avec des états d’énergie vibrationnelles des constituants du milieu : c’est la **diffusion Raman**. Les décalages de fréquences associés à ce type de diffusion sont dans le domaine de l’infrarouge.

L’analyse spectrale de la lumière diffusée par diffusion Brillouin permet de mesurer de manière non intrusive la compressibilité du fluide, mesure que l’on cherche à réaliser pour l’étude des états métastables de l’hélium 4 superfluide.

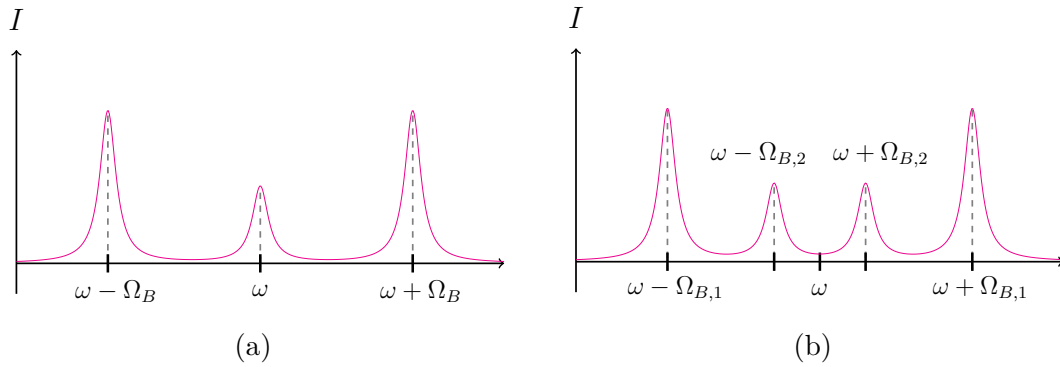


FIG. 2.2 (a) Allure du spectre de la lumière diffusée par un liquide usuel. La raie centrale correspond à la diffusion Rayleigh, et les deux satellites correspondent à la diffusion Brillouin. (b) Allure du spectre de la lumière diffusée par l'hélium superfluide : le pic de diffusion Rayleigh d'un liquide usuel est remplacé par deux satellites Brillouin, qui correspondent à la diffusion par le second son. Les raies associées à la diffusion Raman ne sont pas représentées.

Dans ce chapitre, nous nous intéresserons d'abord, en partie 2.1 plus en détail au phénomène de diffusion Brillouin spontanée. Dans un second temps (partie 2.2), nous nous intéresserons au phénomène de diffusion Brillouin stimulée, qui résulte d'une instabilité liée au couplage lumière-matière. Nous présenterons une technique de spectroscopie basée sur la diffusion Brillouin stimulée dans la partie 2.3. Enfin nous présenterons le cahier des charges établi en vue de développer un spectromètre adapté à l'étude de l'hélium 4 superfluide métastable (partie 2.4)

2.1 Diffusion Brillouin spontanée

2.1.1 Spectres Brillouin

L'allure du spectre de la lumière diffusée par les liquides usuels, comme l'hélium normal ($T > T_\lambda$), est donnée par la Fig.2.2a. Un pic de diffusion est centré autour de la pulsation ω de l'onde électromagnétique (laser). Ce pic est associé à la diffusion Rayleigh. Les deux satellites centrés autour de $\omega - \Omega_B$ et $\omega + \Omega_B$ correspondent à la diffusion Brillouin de la lumière.

Dans l'hélium superfluide, les fluctuations d'entropie du fluide sont régies par des équations différentes, de type propagative cette fois. Les ondes associées sont appelées "second son", et se propagent à la vitesse $v_2 < v$ où v est la vitesse du premier son. Typiquement, à $T \sim 1$ K, $v = 240 \text{ m.s}^{-1}$ et $v_2 = 20 \text{ m.s}^{-1}$, et $v_2 \rightarrow 0$ quand $T \rightarrow T_\lambda$. Ces ondes permettent en particulier un transport de la chaleur très efficace dans le superfluide. De même que le premier son, le second son diffuse la lumière de manière inélastique : c'est la diffusion Brillouin par le second son. Le spectre de la diffusion de la lumière par l'hélium superfluide comporte ainsi deux paires de raies, comme représenté sur la figure 2.2b. Les fréquences angulaires $\Omega_{B,1}$ et $\Omega_{B,2}$ sont associées respectivement au premier et au second son. Les pics de diffusion par le second son sont en revanche d'amplitude beaucoup plus faibles que ceux du premier son, car les ondes d'entropie dans le superfluide ne s'accompagnent que d'une très faible variation de densité.

Dans la suite, **nous nous intéresserons exclusivement au premier son dans l'hélium.**

2.1.2 Principe de la diffusion Brillouin : approche quantique

Considérons la diffusion dite **Stokes** : il s'agit du processus par lequel un photon incident (vecteur d'onde \vec{k}_1 et pulsation ω_1) crée un phonon (vecteur d'onde \vec{q} et pulsation Ω) et un photon (vecteur d'onde \vec{k}_2 et pulsation ω_2). Les équations de conservation de l'énergie et de l'impulsion s'écrivent :

$$\hbar\omega_1 = \hbar\Omega + \hbar\omega_2 \quad \text{et} \quad \hbar\vec{k}_1 = \hbar\vec{q} + \hbar\vec{k}_2 \quad (2.1)$$

avec $\Omega = |\vec{q}|v$ et $\omega_i = |\vec{k}_i|c$ ($i = 1,2$). En notant θ l'angle de diffusion (voir Fig.2.1(b)), n l'indice de réfraction du milieu, et en considérant $v \ll c$, la pulsation du photon diffusé est décalée d'une quantité $\Omega_B = \Omega$ appelée pulsation Brillouin :

$$\boxed{\Omega_B = \omega_2 - \omega_1 = 2n\omega \frac{v}{c} \sin(\theta/2)} \quad (2.2)$$

avec $\omega = \omega_1 \simeq \omega_2$. Dans l'hélium superfluide à 1 K et à pression de vapeur saturante : $v = 237,8 \text{ m.s}^{-1} \simeq 240 \text{ m.s}^{-1}$ et $n = 1,028 \simeq 1$ l'indice de réfraction de l'hélium. Pour un laser de longueur d'onde 1064 nm et angle de diffusion $\theta \sim 90^\circ$ on a $\Omega_B/2\pi \sim 320 \text{ MHz}$.

On peut aussi considérer le cas de la collision inélastique entre un photon incident (\vec{k}_1, ω_1) et un phonon (\vec{q}, Ω), conduisant à la création d'un photon (\vec{k}_2, ω_2) : c'est la diffusion **Anti-Stokes**. Les relations de conservation de l'énergie-impulsion conduisent cette fois à $\hbar\omega_1 + \hbar\Omega = \hbar\omega_2$ et $\hbar\vec{k}_1 + \hbar\vec{q} = \hbar\vec{k}_2$. La pulsation Brillouin $\Omega_B = \omega_2 - \omega_1$ est toujours donnée par l'Éq.(2.2).

La mesure de la pulsation Brillouin Ω_B , ainsi que la connaissance de n , de ω_i et de θ , donnent accès à la vitesse du son v du milieu.

2.1.3 Principe de la diffusion Brillouin : approche "milieux continus"

Cette deuxième approche, plus complète par rapport à la précédente, permet de décrire la forme des raies Brillouin [boyd2010].

Équation de propagation des ondes sonores : À partir de l'équation de Navier-Stokes linéarisée et de l'équation de conservation de la masse, on obtient l'équation de propagation des ondes acoustiques dans un fluide de densité $\rho(\vec{r}, t)$:

$$\frac{\partial^2 \rho}{\partial t^2} - \Gamma' \nabla^2 \frac{\partial \rho}{\partial t} - v^2 \nabla^2 \rho = 0 \quad (2.3)$$

où Γ' est un paramètre d'amortissement. On considère la propagation d'une onde plane monochromatique : on écrit ainsi $\rho(\vec{r}, t) = \rho_0 + \rho_1(\vec{r}, t)$ avec ρ_0 la densité du milieu au repos et :

$$\rho_1(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} [\delta \rho e^{i(\Omega t - \vec{Q} \cdot \vec{r})} + c.c.] \quad (2.4)$$

où $\delta \rho$ est l'amplitude de l'onde sonore. L'Éq.(2.3) conduit la relation de dispersion :

$$Q^2 = \Omega^2 / (i\Omega\Gamma' + v^2) \quad (2.5)$$

avec $Q = |\vec{Q}|$. En posant $q = \Omega/v$ et $\Gamma_B = \Gamma'q^2$ et en considérant $\Gamma_B \ll \Omega$ (ce qui sera toujours vérifié dans le cadre de nos expériences) on obtient la relation de dispersion simplifiée :

$$Q \simeq \frac{\Omega}{v} - i \frac{\Gamma_B}{2v} = q - i \frac{\alpha_{\text{att}}}{2} \quad (2.6)$$

où $\alpha_{\text{att}} = \Gamma_B/v$. Ainsi, lors d'une propagation selon z , l'intensité acoustique varie spatialement comme :

$$I_{ac}(z, t) \propto |\rho_1(\vec{r}, t)|^2 \propto |\delta\rho|^2 e^{-\alpha_{\text{att}} z} \quad (2.7)$$

Le coefficient α_{att} , homogène à l'inverse d'une longueur, est le coefficient d'absorption du son. On introduit le temps de vie du phonon de fréquence Ω et de vecteur d'onde \vec{q} :

$$\tau_{\text{ph}} = \frac{1}{\Gamma_B} = \frac{1}{q^2 \Gamma'} \quad (2.8)$$

Équation de propagation des ondes électromagnétiques : on s'intéresse à la diffusion d'une onde plane électromagnétique. Le champ électrique de l'onde incidente est noté :

$$\vec{E}_1(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} [\vec{E}_0 e^{i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} + c.c.] \quad (2.9)$$

On note \vec{E} le champ électrique total dans le milieu (champs incident \vec{E}_1 et champ diffusé). On s'intéresse à un milieu diélectrique supposé non magnétique et isotrope, les équation de Maxwell conduisent à :

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (2.10)$$

où $\vec{P} = \epsilon_0 \chi \vec{E}$ est le vecteur polarisation (associé à la réponse du milieu) avec $\chi = \epsilon_r - 1 = n^2 - 1$. Dans un milieu isotrope, et pour une amplitude du champ incident \vec{E}_1 faible on peut faire l'hypothèse que \vec{P} est directement proportionnel à \vec{E}_1 : $\vec{P} = \epsilon_0 \chi \vec{E}_1$. D'autre part on relie la variation de la permittivité diélectrique du milieu aux variations de densité à travers la constante électrostrictive $\gamma_e = \rho_0 \left(\frac{\partial \epsilon_r}{\partial \rho} \right)_{\rho_0}$. On peut ainsi écrire : $\epsilon_r(\rho) = \epsilon_r(\rho_0) + \gamma_e \rho_1(\vec{r}, t) / \rho_0$. En négligeant pour le moment l'atténuation du son au sein du milieu (l'onde sonore correspond donc à une onde plane monochromatique progressive de vecteur d'onde \vec{q}), et en réinjectant l'expression de $\epsilon_r(\rho)$ dans l'Éq.(2.10) on obtient que le champ électrique total obéit à l'équation d'onde avec terme de forçage suivante :

$$\begin{aligned} \vec{\nabla}^2 \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = & - \frac{1}{c^2} \left[\frac{1}{2} \omega_1^2 \vec{E}_0 e^{i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} \right. \\ & + \frac{1}{2} \gamma_e \frac{\delta \rho}{\rho_0} (\omega_1 - \Omega)^2 \vec{E}_0 e^{i((\omega_1 - \Omega)t - (\vec{k}_1 - \vec{q}) \cdot \vec{r})} \\ & \left. + \frac{1}{2} \gamma_e \frac{\delta \rho}{\rho_0} (\omega_1 + \Omega)^2 \vec{E}_0 e^{i((\omega_1 + \Omega)t - (\vec{k}_1 + \vec{q}) \cdot \vec{r})} + c.c. \right] \end{aligned} \quad (2.11)$$

Les deuxième et troisième termes du membre de droite, qui oscillent à $\omega_1 - \Omega$ et $\omega_1 + \Omega$, correspondent à la diffusion de l'onde électromagnétique par la modulation de la densité du milieu. Ils sont décalés en fréquence par rapport à l'onde incidente (de pulsation ω_1) en raison de l'effet Doppler.

On retrouve par cette approche les relations trouvées dans l'approche simplifiée pour le vecteur d'onde et la pulsation de l'onde diffusée : ($\omega_2 = \omega_1 - \Omega$; $\vec{k}_2 = \vec{k}_1 - \vec{q}$) ou ($\omega_2 = \omega_1 + \Omega$; $\vec{k}_2 = \vec{k}_1 + \vec{q}$), le premier cas correspondant à la création d'un phonon par le faisceau incident (diffusion **Stokes**), et le second à l'absorption d'un phonon (diffusion **Anti-Stokes**). D'autre part, on a les relations de dispersion $\Omega = |\vec{q}|v$ et $\omega_i = |\vec{k}_i|c$ ($i = 1, 2$). On retrouve alors l'Éq.(2.2).

En raison de la durée de vie finie des phonons, le spectre de la lumière diffusée ne contient pas seulement les fréquences $\omega_1 + \Omega$ et $\omega_1 - \Omega$, mais un continuum de fréquences autour de ces deux

valeurs : on obtient un spectre de raies. La forme de ces raies est lorentzienne (car associée à une décroissance temporelle exponentielle de l'onde sonore) dont la largeur à mi-hauteur (FWHM), appelée **largeur Brillouin**, est donnée par :

$$\Gamma_B = 1/\tau_{\text{ph}} \quad (2.12)$$

Or $\Gamma_B = \Gamma' q^2$ et $|\vec{q}| = |\vec{k}_2 - \vec{k}_1|$. Ainsi on a :

$$\Gamma_B = \Gamma' \Omega_B^2 / v^2 = 4n^2 \Gamma' \frac{\omega^2}{c^2} \sin^2(\theta/2) \quad (2.13)$$

Retenons $\Gamma_B \propto \Omega_B^2$. À 1 K, Berberich *et al.* ont mesuré dans l'hélium 4 liquide $\Gamma_B/2\pi \sim 2,4$ MHz pour une fréquence Brillouin $\Omega_B/2\pi \sim 700$ MHz [berberich1976] ($\theta \sim 180^\circ$ et $\lambda = 694,3$ nm), ce qui est en accord avec l'hypothèse $\Gamma_B \ll \Omega_B$.

2.1.4 Expériences de diffusion Brillouin spontanée dans l'hélium liquide et dans les états métastables de l'eau

Expériences de diffusion Brillouin spontanée dans l'hélium liquide : Pike *et al.* ont été les premiers à publier les spectres Brillouin spontanés de l'hélium 4 liquide en 1970 [pike1970]. Ils ont utilisé un laser à argon ($\lambda = 488$ nm) et un interféromètre Fabry-Pérot comme analyseur de fréquence pour mesurer des fréquences Brillouin (de l'ordre de 670 MHz dans cette configuration et avec ces lasers). La même année, St Peters *et al.* ont publié les vitesses du son et les coefficients d'atténuation du son de l'hélium 4 superfluide à sa pression de vapeur saturante entre 1,25 K et T_λ obtenus par diffusion Brillouin spontanée [st.peters1970]. La diffusion Brillouin spontanée a aussi été activement utilisée dans du ^4He superfluide pressurisé (jusqu'à $P \sim 30$ bars) [winterling1973, winterling1974, tarvin1977, vidal1982] ou dans des mélanges de ^3He et de ^4He [pike1969, pike1972, palin1971, rockwell1975]. Ces deux types de conditions expérimentales ont en particulier permis d'étudier la diffusion Brillouin de la lumière par le second son ¹.

Expériences de diffusion Brillouin spontanée dans un liquide métastable :

La diffusion Brillouin spontanée a également été utilisée pour étudier les propriétés de liquides métastables. Aucune étude n'a été réalisée dans l'hélium liquide métastable avant nos travaux de recherche, mais des expériences ont été conduites dans l'eau. Certaines des techniques utilisées dans l'eau métastable pour la mesure de l'EoS étant proches des nôtres, nous en effectuons une brève présentation.

À la fin des années 1980, Teixeira & Leblond [teixeira1978] mesurent la vitesse du son dans l'eau surfondue (eau liquide en-dessous de sa température de solidification) jusqu'à -20 °C à pression atmosphérique. Leurs résultats montrent une rapide variation de la fréquence Brillouin avec la température, ce qui est cohérent avec certaines anomalies attendues dans l'eau surfondue.

1. Dans l'hélium 4 pur à pression de vapeur saturante, la diffusion Brillouin par le second son est très faible et très difficile à observer. La présence d'atomes d'hélium 3 accroît les variations de densité très faibles associées à la propagation du second son et amplifie le signal de diffusion Brillouin associé. De même, la pressurisation de l'hélium conduit à une augmentation des variations de densité associées au second son, et donc à un signal Brillouin d'amplitude plus élevée.

Leurs résultats semblent notamment conforter la possibilité d’une température limite de stabilité aux alentours de -45 °C. Hareng & Leblond [hareng1980] mesurent la vitesse du son de l’eau liquide métastable surchauffée de 100 °C à 220 °C à pression atmosphérique, et obtiennent à partir de ces mesures une estimation de la température limite de stabilité du liquide : $T^* \simeq 315$ °C. Plus récemment, en 2010, Davitt *et al.* [davitt2010] utilisent la diffusion Brillouin pour mesurer l’équation d’état de l’eau à pression négative. La méthode de création des états métastables à pression négative dans l’eau est similaire à celle que nous utilisons : un émetteur piézoélectrique hémisphérique, plongé dans une cellule contenant de l’eau préalablement filtrée et purifiée, focalise une onde sonore (fréquence 1 MHz) et crée une zone de pression négative sur un petit volume ($\sim 0,1$ mm) et sur des temps de l’ordre de (~ 100 ns). Davitt *et al.* mesurent simultanément la vitesse du son v (par diffusion Brillouin) et la densité ρ (avec un hydrophone à fibre optique) au foyer acoustique de l’onde. Par intégration, ils remontent à l’équation d’état $P(\rho)$, jusqu’à la pression de cavitation située à -26 MPa.

L’étude de l’eau métastable est aujourd’hui une thématique de recherche active. La diffusion Brillouin est une des méthodes utilisées pour l’étude des anomalies de l’eau liquide, en particulier l’existence d’un minimum dans l’évolution de la vitesse du son avec la température. En étudiant de l’eau métastable piégée dans des inclusions de quartz, Pallares *et al.* ont pu explorer plus profondément les états métastables de l’eau, et atteindre des pressions bien plus basses que dans la Réf.[davitt2010], jusqu’à -140 MPa[pallares2014, holten2017]. L’équation d’état $P(\rho)$ a pu être mesurée à partir de la mesure de $v(T)$ et de $P(T)$ dans plusieurs échantillons de densité ρ fixée[pallares2016].

Avantages et inconvénients de la mesure de v dans l’hélium liquide métastable par diffusion Brillouin spontanée : La diffusion Brillouin spontanée a l’avantage d’injecter dans l’échantillon étudié une puissance laser de quelques centaines de mW, bien inférieure à celle nécessaire pour les expériences de diffusion Brillouin stimulée que nous décrirons plus bas. La principale difficulté pour obtenir des spectres spontanés dans l’hélium 4 liquide métastable est le taux d’acquisition très faible comme celui mentionné par exemple par Pike *et al.* d’environ 30 minutes pour obtenir un seul spectre [pike1970]. L’expérience de Davitt *et al.* ne peut être transposée au cas de l’hélium liquide, le temps d’acquisition requis pour l’étude des états métastables serait excessif. Les états métastables ont une durée de vie de ~ 100 ns, et sont créés à un taux de répétition de 10 Hz. L’acquisition d’un spectre dans les régions de pression négative requiert ainsi un temps 10^6 fois plus long que dans les expériences de Pike *et al.*² Cela est principalement dû au fait que les phonons du milieu à l’origine de la diffusion sont beaucoup plus rares à quelques kelvin, par rapport aux mesures réalisées dans l’eau à température ambiante.

2.2 Diffusion Brillouin stimulée

La diffusion Brillouin spontanée, qui est la diffusion de la lumière par les phonons présents dans le milieu à l’équilibre, est extrêmement faible. À titre d’exemple, lors de son passage à travers 1 cm d’eau liquide, seule une fraction $\sim 10^{-5}$ de la lumière visible est diffusée spontanément [boyd2010]. En revanche, pour des puissances incidentes “ élevées ” (nous expliciterons plus loin

2. Soit 57 ans pour faire l’acquisition d’un seul spectre...

ce que cela signifie), une instabilité apparaît et il y a amplification du signal rétrodiffusé ($\theta = 180^\circ$). C'est le phénomène de diffusion Brillouin **stimulée**. Dans la limite des hautes puissances, 100% du signal incident est rétrodiffusé³! Le signal rétrodiffusé est décalé en fréquence par effet Doppler. La mesure de ce décalage permet de remonter à la vitesse du son avec un bien meilleur rapport signal sur bruit que dans le cas de la diffusion Brillouin spontanée. Le prix à payer est toutefois la nécessité d'injecter des impulsions lumineuses de forte intensité dans le liquide (\sim MW). Nous décrivons ci-dessous le principe de cette technique, ainsi que certaines investigations expérimentales conduites dans l'hélium 4 liquide.

2.2.1 Approche qualitative

Nous reprenons les notations de la section précédente (champ incident $\vec{E}_1, \omega_1, \vec{k}_1$; champ diffusé $\vec{E}_2, \omega_2, \vec{k}_2$). Parmi toutes les directions de diffusion spontanée de la lumière, la diffusion à $\theta = 180^\circ$ occupe une place particulière : la lumière rétrodiffusée se propage selon la même direction que le faisceau incident, il y a donc un recouvrement important entre le faisceau incident et le faisceau rétrodiffusé. Cela crée un réseau optique par interférence avec le faisceau incident, dont la pulsation de battement est $\Omega = \omega_2 - \omega_1 = 2n\omega v/c$, et dont le vecteur d'onde est donné par $\vec{q} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$. Ces relations sont identiques à celles de l'Éq.(2.1) : le réseau optique ainsi créé satisfait la relation de dispersion des ondes sonores dans le milieu, et a les mêmes vecteurs d'onde \vec{q} et pulsation Ω que le phonon spontané à l'origine de la diffusion à $\theta = 180^\circ$.

Or, le réseau d'interférences optique peut avoir un effet rétroactif sur la densité du milieu de deux manières :

- par **électrostriction** : le milieu se polarise dans les zones où l'intensité est élevée, ce qui conduit à une contraction du milieu.
- par **absorption** : le milieu s'échauffe et se dilate dans les zones d'intensité importante.

Dans chacun de ces deux cas, le réseau optique a la même pulsation et le même vecteur d'onde que la modulation de densité (phonon) à l'origine de la rétrodiffusion. L'effet rétroactif du réseau optique sur le milieu tend à renforcer la modulation de densité. La modulation de densité amplifie à son tour la rétrodiffusion, ce qui accroît l'intensité du réseau optique, ce qui amplifie la modulation de densité,... etc. Le signal rétrodiffusé est ainsi amplifié par un effet d'avalanche. Ce phénomène d'instabilité résulte du couplage entre le champ lumineux incident et rétrodiffusé et le matériau.

Dans l'hélium, milieu très peu absorbant, c'est le couplage électrostrictif qui est le mécanisme prédominant à l'origine de l'amplification.

2.2.2 Couplage lumière-matière électrostrictif

L'électrostriction est la tendance de certains matériaux à se contracter sous l'effet d'un champ électrique. Considérons un milieu diélectrique, comme l'hélium, soumis à un champ statique \vec{E} . À l'échelle microscopique la présence du champ électrique polarise les molécules, dont on note \vec{p} le moment dipolaire microscopique. Ces molécules subissent une force :

$$\vec{F} = (\vec{p} \cdot \vec{\nabla})\vec{E} \quad (2.14)$$

3. Ce type d'instabilité s'avère être extrêmement problématique dans les expériences utilisant des lasers hautes puissances, comme le Laser Mega-Joule (LMJ) du CEA qui effectue des tests de fusion inertielle.

Les molécules sont attirées vers les zones de champ fort : la densité du milieu augmente dans ces régions. On peut quantifier cette force à l'échelle macroscopique par une approche thermodynamique. Prenons comme système le champ et le milieu diélectrique, et considérons comme variables naturelles l'entropie volumique s , la densité ρ et le champ électrique \vec{E} . L'énergie interne volumique du système est :

$$u(s, \rho, \vec{E}) = u_0(s, \rho) - \frac{1}{2} \epsilon_0 \epsilon_r E^2 \quad (2.15)$$

où u_0 est l'énergie interne volumique du diélectrique en champ nul [couture1989]. Considérons comme état initial le milieu "gelé" (s et ρ constants), que l'on soumet à un champ électrique \vec{E} . On relâche ensuite réversiblement le fluide, sa densité change, il s'ensuit que sa constante diélectrique en chaque point change, et la variation d'énergie stockée dans le champ est :

$$\Delta u = -\frac{1}{2} \epsilon_0 \Delta \epsilon_r E^2 \quad (2.16)$$

avec $E = |\vec{E}|$. D'autre part, le champ exerce une pression "strictive" p_{st} dans le milieu, dont le travail par unité de volume est donné par :

$$w = -p_{st} \frac{\Delta V}{V} = p_{st} \frac{\Delta \rho}{\rho} \quad (2.17)$$

Par application du premier principe, on en déduit l'expression de la pression strictive :

$$p_{st} = -\frac{1}{2} \epsilon_0 \gamma_e E^2 \quad (2.18)$$

avec $\gamma_e = \rho (\partial \epsilon_r / \partial \rho)_s$ la constante électrostrictive du diélectrique. La pression strictive est négative, et son module est quadratique avec l'amplitude du champ : le fluide est donc attiré vers les régions de pression plus faibles, où le champ y est plus intense. On peut effectuer le même raisonnement pour des champs électriques variables \vec{E} : la pression strictive est alors donnée en remplaçant E^2 par sa moyenne temporelle $\langle \vec{E} \cdot \vec{E} \rangle$.

2.2.3 Amplification du retour et seuil Brillouin

En raison de l'existence de la pression strictive, le milieu est soumis à la force volumique $\vec{f} = -\vec{\nabla} p_{st}$. Ce terme apparaît comme un terme de forçage qui s'ajoute dans le membre de droite de l'Éq.(2.3) :

$$\frac{\partial^2 \rho}{\partial t^2} - \Gamma' \vec{\nabla}^2 \frac{\partial \rho}{\partial t} - v^2 \vec{\nabla}^2 \rho = \vec{\nabla} \cdot \vec{f} \quad (2.19)$$

On garde les mêmes hypothèses que celles réalisées dans le cas de la diffusion Brillouin spontanée (milieu non absorbant ; ondes planes quasi-monochromatiques se propageant selon z ; évolution lente du terme d'enveloppe ; on néglige la diffraction, *i.e.* on ne conserve que les dérivées spatiales selon z et non selon x ou y).

On s'intéresse au cas simplifié d'une onde incidente plane $\vec{E}_1(z, t) = \frac{1}{2} [\vec{E}_{1,0}(z, t) e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + c.c.]$ se propageant dans la direction $+z$ (voir Fig.2.3). On note $\vec{E}_2(z, t) = \frac{1}{2} [\vec{E}_{2,0}(z, t) e^{i(\omega_2 t + k_2 z)} + c.c.]$ le champ rétro-diffusé se propageant en sens opposé. Le terme $\vec{\nabla} \cdot \vec{f}$ apparaît comme un terme de forçage dans l'Éq.2.19, avec $\vec{f} = -\vec{\nabla} p_{st}$ et $p_{st} = -\frac{1}{2} \epsilon_0 \gamma_e (\vec{E}_1 + \vec{E}_2)^2$. Donc le terme de forçage s'écrit $\vec{\nabla} \cdot \vec{f} = \frac{1}{2} \epsilon_0 \gamma_e \Delta (\vec{E}_1 + \vec{E}_2)^2$. On écarte les termes de forçage rapides, variant aux fréquences optiques, ainsi que les termes constants : on ne garde que les termes de forçage oscillant à Ω , soit $\frac{1}{4} \epsilon_0 \gamma_e q^2 \vec{E}_{1,0} \cdot \vec{E}_{2,0}^* e^{i(\Omega t - qz)} + c.c.$ avec $q = k_1 + k_2$. La modulation de densité se

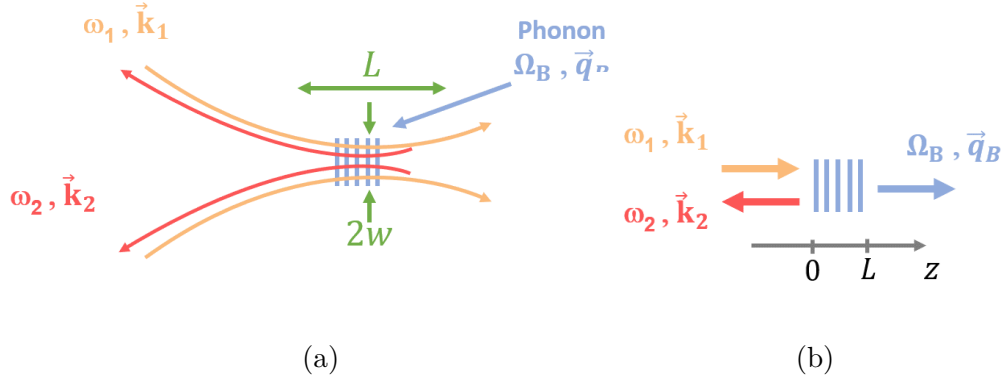


FIG. 2.3 (a) Un champ lumineux (en orange, pulsation ω_1 , vecteur d'onde \vec{k}_1) est diffusé par un phonon (en bleu). Le réseau d'interférence créé par le champ diffusé (en rouge, pulsation ω_2 , vecteur d'onde \vec{k}_2) et le champ incident tend à renforcer la fluctuation de densité par électrostriction, qui à son tour renforce la diffusion du champ lumineux, etc. La zone d'interaction a une longueur typique $L \sim 2L_R$ et une largeur typique $2w$, avec L_R la longueur de Rayleigh et w le col du faisceau laser incident. (b) : Approche simplifiée de la diffusion Brillouin stimulée : les champs lumineux sont assimilés à des ondes planes qui interagissent sur une distance L .

propage ainsi à la vitesse $(\omega_2 - \omega_1)/(k_1 + k_2)$. Si cette vitesse coïncide avec la vitesse du son dans le milieu, le terme de forçage reste en phase avec la modulation de densité et il y a amplification de l'onde. C'est ce que nous allons prouver en résolvant l'équation de propagation des champs électriques et acoustique.

On note $\rho = \rho_0 + \frac{1}{2}[\delta\rho e^{i(\Omega t - qz)} + c.c.]$ la modulation de densité créée par le terme de forçage. D'autre part on néglige les dérivées spatiales du terme d'enveloppe pour la densité $\frac{\partial \rho}{\partial z}$ devant les termes en $q\rho$ dus à la modulation de la densité (l'enveloppe varie plus lentement que les modulations acoustiques de la densité). On obtient :

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial t^2} + (2i\Omega + \Gamma_B) \frac{\partial}{\partial t} + (\Omega_B^2 - \Omega^2 + i\Omega\Gamma_B) \right) \frac{\delta\rho}{2} + c.c. = -\frac{1}{4}\epsilon_0 q^2 \gamma_e \vec{E}_{1,0} \cdot \vec{E}_{2,0}^* + c.c. \quad (2.20)$$

avec $\Gamma_B = q^2\Gamma$ et $\Omega_B = qv$.

On considère désormais la propagation des champs électromagnétiques, donnée par Éq.(2.10). Le vecteur polarisation est donné par : $\vec{P} = \epsilon_0\chi(\vec{E}_1 + \vec{E}_2)$ et $\chi = n_0 + \gamma_e\rho_1(\vec{r},t)\rho_0^{-1}$ avec $n_0 = \epsilon_r(\rho_0) - 1$ l'indice de réfraction du milieu au repos. Les seuls termes en phase avec le champ électrique \vec{E}_1 , respectivement \vec{E}_2 , sont $\epsilon_0\gamma_e\rho_0^{-1}\vec{E}_{2,0}\delta\rho/2$, respectivement $\epsilon_0\gamma_e\rho_0^{-1}\vec{E}_{1,0}\delta\rho^*/2$. D'autre part, avec l'approximation du terme d'amplitude lentement variable ($|\frac{1}{\omega_i}\frac{\partial\vec{E}_i}{\partial t}| \ll |\vec{E}_i|$ et $|\frac{1}{k_i}\frac{\partial\vec{E}_i}{\partial z}| \ll |\vec{E}_i|$), les équations de propagation du champ électromagnétique (cf Éq.(2.10)) donnent :

$$\frac{\partial E_{1,0}}{\partial z} + \frac{n}{c} \frac{\partial E_{1,0}}{\partial t} = -\frac{i\omega_1\gamma_e}{4nc\rho_0} E_{2,0}\delta\rho \quad (2.21)$$

$$-\frac{\partial E_{2,0}}{\partial z} + \frac{n}{c} \frac{\partial E_{2,0}}{\partial t} = -\frac{i\omega_2\gamma_e}{4nc\rho_0} E_{1,0}\delta\rho^* \quad (2.22)$$

2.2.4 Régime permanent

On s'intéresse aux solutions des Éq.(2.20), Éq.(2.21) et Éq.(2.22) en régime permanent, où $\partial\rho/\partial t = 0$, $\partial\vec{E}_1/\partial t = \partial\vec{E}_2/\partial t = 0$. À partir de l'Éq.(2.20), on obtient le profil de densité en régime permanent :

$$\delta\rho = \frac{1}{2}\epsilon_0 q^2 \gamma_e \frac{1}{\Omega_B^2 - \Omega^2 + i\Omega\Gamma_B} \vec{E}_{1,0} \cdot \vec{E}_{2,0}^* \quad (2.23)$$

En posant $I_2 = \epsilon_0 cn |\vec{E}_2|^2/2$ l'intensité du laser sonde, et en multipliant l'Éq.(2.22) par $\epsilon_0 cn E_{2,0}^*/2$ on obtient :

$$\frac{dI_2}{dz} = i \frac{\gamma_e^2 q^2 \omega_2}{4n^2 c^2 \rho_0} \frac{1}{\Omega_B^2 - \Omega^2 - i\Omega\Gamma_B} I_1 I_2 + c.c. \quad (2.24)$$

que l'on peut réécrire :

$$\frac{dI_2}{dz} = i \frac{\gamma_e^2 q^2 \omega_2}{4n^2 c^2 \rho_0} \frac{(\Omega_B^2 - \Omega^2) + i\Omega\Gamma_B}{4\Omega_B^2 \Delta\Omega^2 + \Omega_B^2 \Gamma_B^2} I_1 I_2 + c.c. \quad (2.25)$$

où $\Delta\Omega = \Omega - \Omega_B$ et où on a utilisé $\Omega^2 - \Omega_B^2 \simeq 2\Omega_B \Delta\Omega$ et $\Omega^2 \Gamma_B^2 \simeq \Omega_B^2 \Gamma_B^2$.

En additionnant les complexes conjugués dans le terme de droite, on obtient :

$$\frac{dI_2}{dz} = -g(\Delta\Omega) I_1 I_2 \quad (2.26)$$

avec $g(\Delta\Omega)$ le "facteur d'amplification Brillouin" donné par :

$$g(\Delta\Omega) = g_\infty \frac{(\Gamma_B/2)^2}{(\Gamma_B/2)^2 + \Delta\Omega^2} \quad (2.27)$$

où g_∞ (en m.W^{-1}) est appelé "facteur d'amplification Brillouin à la résonance en régime permanent", donné par :

$$g_\infty = \frac{\gamma_e^2 \omega_2 (q/2)}{(n^2 v c^2 \rho_0 \Gamma_B)} = \kappa \Gamma_B^{-1} = \kappa \tau_{\text{ph}} \quad (2.28)$$

avec $\kappa = \gamma_e^2 \omega_2 (q/2) / (n^2 v c^2 \rho_0)$ un coefficient qui dépend des propriétés photoélastiques du milieu et de la longueur d'onde des lasers utilisés. Dans le cas ici considéré avec $\theta = 180^\circ$, on a $q \simeq 2k$ et donc $\kappa = \omega^2 \gamma^2 / (n c^3 \rho_0)$ (avec $\omega \approx \omega_1 \approx \omega_2$). On voit que la fonction $g(\Delta\Omega)$ est une fonction de résonance de type lorentzienne⁴, dont la fréquence centrale est Ω_B et dont la largeur est Γ_B . Ainsi il y a amplification du signal rétrodiffusé selon une distribution de fréquence donnée par la fonction $g(\Delta\Omega)$.

Le paramètre $g(\Delta\Omega)$, exprimé en m.W^{-1} , est le facteur d'amplification du retour Brillouin stimulé. En considérant que l'intensité du signal incident I_1 reste constante, l'intégration de l'Éq.(2.26) à résonance ($\Delta\Omega = 0$) conduit à :

$$I_2(z) = I_2(L) e^{g_\infty I_1 (L-z)} \quad (2.29)$$

4. On se référera à [boon1991] pour le calcul complet du spectre de la lumière diffusée. Nous n'avons, dans notre approche, gardé les termes d'atténuation qu'au premier ordre. À l'ordre suivant, en prenant $\gamma = 1$ (comme cela est vérifié dans l'hélium liquide aux températures auxquelles nous l'étudions) les raies Brillouin sont légèrement asymétriques, et centrées en $\sqrt{\Omega_B^2 - \Gamma_B^2} - 2\Omega_B \simeq -\Omega_B + \frac{1}{2}(\Gamma_B/\Omega_B)^2$ et $-\sqrt{\Omega_B^2 - \Gamma_B^2} + 2\Omega_B \simeq \Omega_B - \frac{1}{2}(\Gamma_B/\Omega_B)^2$. Dans l'hélium, comme nous le verrons plus loin, on a $\Gamma_B/\Omega_B \sim 2 \cdot 10^{-3}$. Le terme correctif en $(\Gamma_B/\Omega_B)^2$ est donc bien inférieur aux incertitudes avec lesquelles les raies sont mesurées (incertitude relative de l'ordre de $3 \cdot 10^{-4}$).

Pour $z < L$, le terme dans l'exponentielle est positif : $g_\infty I_1(L - z) > 0$. On a donc une loi exactement inverse de celle de type "absorption" (loi de Beer-Lambert) : le signal est amplifié. En $z = L$: $I_2(L)$ correspond à une fraction de l'intensité I_1 , rétrodiffusée par les phonons spontanément présents dans le milieu. On peut écrire $I_2(L) = f \cdot I_1$ avec f un paramètre lié à la diffusion du laser incident par les phonons spontanés du milieu. Dans les matériaux usuels on a typiquement $f \sim 10^{-12}$ [boyd2010]. f est probablement bien moindre dans l'hélium 4 liquide à quelques kelvin, milieu dans lequel les phonons thermiques sont beaucoup moins nombreux.

Pour $z < L$: I_2 est amplifié selon l'Éq.(2.29). En sortie de la région d'interaction ($z = 0$, voir Fig.2.3(b)), l'intensité du signal diffusé est $I_2(0) = I_2(L)e^{g_\infty I_1 L} = I_2(L)e^G$ où on a défini le **gain d'amplification** du signal de retour G donné par $G = g_\infty I_1 L$. On définit également la réflectivité Brillouin R comme le rapport entre les intensités du signal diffusé en sortie de la zone d'interaction et du signal incident : $R = \frac{I_2(0)}{I_1}$.

On remarque qu'il y a toujours amplification du signal rétro-diffusé ($G > 0$). On définit cependant un seuil G_{th} à partir duquel cette amplification devient "significative" : la réflectivité de seuil est définie comme $R_{\text{th}} = 10^{-2}$, ce qui conduit à $G_{\text{th}} \simeq 25$. On peut également exprimer la condition $R_{\text{th}} = 10^{-2}$ à partir de la puissance du faisceau incident. Pour estimer la puissance du faisceau P_{th} au seuil d'amplification on considère faisceau gaussien de col w_0 . La "longueur d'interaction" correspond typiquement à deux fois la longueur de Rayleigh du faisceau : $L \sim 2L_R = 2\pi w_0/\lambda$, comme représenté sur la Fig.2.3(a). D'autre part, l'intensité est $I = P/S$ avec P la puissance incidente et $S \sim \pi w_0^2$ la section du faisceau au foyer. On a donc, pour $G = G_{\text{th}}$:

$$P_{\text{th}} = \frac{G_{\text{th}} \lambda}{2g} \quad (2.30)$$

Pour un liquide organique comme l'acétone (que nous utiliserons comme échantillon test, voir chapitre suivant), on a $g_\infty = 3,4 \cdot 10^{-10} \text{m.W}^{-1}$. Comme nous le verrons plus loin, on s'attend à $g_\infty \sim 1 \text{M.GW}^{-1}$ dans l'hélium liquide à quelques kelvin. Pour un faisceau dont la longueur d'onde est dans le visible, les puissances de seuil sont de l'ordre de 0,1 MW à 1 MW. De telles puissances ne peuvent être atteintes qu'avec des lasers impulsionsnels.

2.2.5 Régime transitoire

Le temps typique de variation des modulations de densité dans le milieu est égal à $1/\Gamma_B \equiv \tau_{\text{ph}}$. Dans le cas où on utilise des lasers impulsionsnels, un deuxième temps caractéristique intervient, associé à la durée des impulsions, notée τ_{pulse} (largeur à mi-hauteur des impulsions du laser de pompage). Si $\tau_{\text{pulse}} \gg \tau_{\text{ph}}$, les modulations de densité atteignent le régime permanent pendant l'interaction entre les lasers incident et rétrodiffusé. En revanche, si la durée des impulsions τ_{pulse} est comparable ou inférieure à τ_{ph} , les modulations de densité n'atteignent pas le régime permanent (et dans la limite $\tau_{\text{pulse}} \rightarrow 0$, les modulations de densité issues de l'interaction entre les lasers n'ont pas le temps de s'établir, et le gain effectif tend vers 0). Sous réserve des hypothèses simplificatrices qui ont été effectuées ci-dessus, le facteur d'amplification Brillouin effectif g_{eff} est donné par [hagenlocker1967] :

$$g_{\text{eff}} = \begin{cases} 4(12,5\tau_{\text{ph}}/\tau_{\text{pulse}})/(1 + 12,5\tau_{\text{ph}}/\tau_{\text{pulse}})^2 & \text{si } \tau_{\text{pulse}} < 12,5\tau_{\text{ph}}. \\ 1 & \text{if } \tau_{\text{pulse}} > 12,5\tau_{\text{ph}}. \end{cases} \quad (2.31)$$

Le régime transitoire est alors défini par la condition $\tau_{\text{pulse}} < 12,5\tau_{\text{ph}}$. La durée des impulsions laser dans nos expérience est de l'ordre de 200 ns. Dans les liquides usuels, comme l'acétone que

nous avons étudié comme échantillon de test, la durée de vie des phonons est de l'ordre de la dizaine de nanosecondes. Le régime permanent est alors atteint. En revanche dans les solides la durée de vie des phonons est de l'ordre de plusieurs centaines de nanosecondes, et c'est souvent le régime transitoire qui doit être considéré. Il en va de même dans l'hélium à quelques kelvin, où le temps de vie typique des phonons est également de l'ordre de la centaine de nanosecondes.

2.2.6 Expériences de diffusion Brillouin stimulée dans l'hélium

La diffusion Brillouin stimulée dans l'hélium 4 liquide a été observée pour la première fois par Winterling *et al.* [winterling1968], rapidement suivis par Abrikosova *et al.* [abrikosova1969, abrikosova1970]. Ils ont pu déterminer la vitesse du (premier) son à partir de la mesure des fréquences Brillouin du liquide. Les fréquences Brillouin typiquement mesurées sont de l'ordre de 700 MHz. Ces mesures sont en bon accord avec des mesures acoustiques précédentes à 12 MHz montrant qu'il n'y avait pas de dispersion dans la vitesse du son de l'hélium 4 liquide entre 12 MHz et 700 MHz. Le même groupe a utilisé la diffusion Brillouin stimulée pour mesurer l'atténuation du son dans l'hélium 4 liquide à environ 650 MHz entre 1,2 et 4,2 K [heinicke1969]. Une première impulsion laser crée, à l'instant t , des phonons par diffusion Brillouin stimulée. Après un temps Δt , une seconde impulsion lumineuse est focalisée dans le milieu. Cette seconde impulsion sert alors de "sonde" pour évaluer la quantité de phonons dans le milieu à $t + \Delta t$: une fraction de l'intensité de cette seconde impulsion est diffractée par les phonons, et l'intensité du signal diffusé est directement proportionnelle à la quantité de phonons. En faisant varier Δt , on a accès à la variation temporelle du nombre de phonons dans le milieu en fonction du temps. Le temps de vie des phonons peut ainsi être mesuré. Quelques années plus tard, Berberich *et al.* ont amélioré cette dernière méthode en mesurant continûment la décroissance temporelle de l'intensité de l'impulsion sonde, ce qui permet une détermination plus précise de la durée de vie des phonons. De cette façon, ils ont pu mesurer la vitesse et l'atténuation des phonons excités à environ 700 MHz dans l'hélium 4 superfluide à sa pression de vapeur saturante et à 23 bar [berberich1976].

2.2.7 Tentatives de diffusion Brillouin stimulée

Nous avons essayé de reproduire les expériences de Winterling *et al.*, cette fois en focalisant davantage le faisceau laser utilisé (ce qui est nécessaire pour sonder localement la vitesse du son dans l'hélium liquide métastable). Nous avons effectué plusieurs essais de diffusion Brillouin stimulée à un faisceau, avec succès dans un échantillon test d'acétone, mais restés sans succès dans l'hélium, même pour des puissances laser de l'ordre de 1 MW. Nous n'avons pu observer que la création d'un plasma dans l'hélium pour des intensités laser élevées (10^{11} W.cm⁻²). Ces tentatives sont décrites dans l'Annexe A. Cela nous a conduit à adopter une autre technique pour mesurer la fréquence Brillouin de l'hélium liquide : la Spectroscopie Brillouin Stimulée (SBS).

2.3 Spectroscopie Brillouin Stimulée (SBS)

La spectroscopie Brillouin stimulée regroupe certains avantages de la diffusion Brillouin spontanée (notamment possibilité de sonder de petits volumes de l'échantillon et le recours à des puissances optiques faibles) et de la diffusion Brillouin stimulée (en augmentant le signal rapport-sur-bruit grâce à l'amplification du signal diffusé).

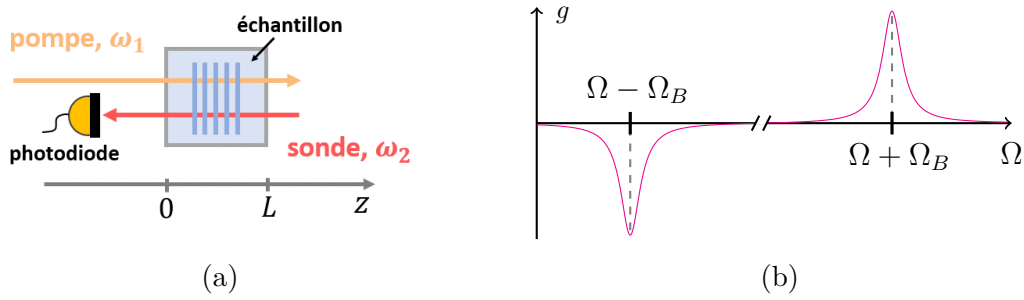


FIG. 2.4 (a) Schéma d'un spectromètre Brillouin Stimulé : les laser sonde et pompe interagissent au sein du matériau étudié. Le signal du laser sonde est recueilli par une photodiode en sortie de la zone d'interaction. (b) Allure du spectre Brillouin Stimulé d'un matériau : deux raies sont observées, autour de $-\Omega_B$ (gain négatif) et autour de $+\Omega_B$ (gain positif).

2.3.1 Principe de la SBS

Nous avons présenté deux manières d'effectuer de la diffusion Brillouin dans un milieu : la diffusion Brillouin spontanée, et la diffusion Brillouin stimulée. Dans chaque cas, on s'intéresse à la diffusion d'un seul faisceau laser focalisé dans un milieu. L'analyse fréquentielle de la lumière diffusée (spectres Brillouin) donne des informations sur les propriétés acoustiques du milieu, comme la vitesse et l'atténuation du son. Il existe une troisième façon d'obtenir un spectre Brillouin. On peut faire de la diffusion Brillouin stimulée dans une configuration dite "amplificatrice", où **deux** faisceaux lasers sont utilisés. On parle de configuration "génératrice" dans le cas de la diffusion Brillouin stimulée où un seul faisceau est utilisé, comme vu précédemment. Dans la section précédente, nous avons vu que l'interaction entre le faisceau incident (dont l'intensité est notée I_1) et une fraction rétrodiffusée du faisceau incident (dont l'intensité est notée I_2) conduit à une amplification de ce dernier. Dans le cas de la Spectroscopie Brillouin Stimulée, le faisceau incident est appelé "faisceau de pompage", ou faisceau pompe (d'intensité I_1), et on considère son interaction avec un **deuxième faisceau** injecté dans le milieu, appelé faisceau sonde (intensité I_2). Dans ce cas, il n'y a pas amplification d'un signal diffusé spontanément, et d'intensité initiale très faible (car contraint par la relation $I_2(0) = f \cdot I_1$ avec $f \sim 10^{-12}$) mais il y a amplification d'un signal sonde d'intensité déjà bien plus importante (typiquement \sim mW), ce qui conduit à des signaux de rapport signal sur bruit élevés. Les calculs menés dans la section 2.2 sont identiques **en régime permanent** dans le cas de la spectroscopie Brillouin à deux faisceaux. En sortie de la zone d'interaction, l'intensité du signal sonde est $I_2(L) = I_2(0)e^{g(\Delta\Omega)I_1L}$ avec I_1 l'intensité du laser pompe (supposée constante), L la longueur de la zone d'interaction entre les lasers (voir Fig.2.4a), et $I_2(0)$ l'intensité initiale du laser sonde.

Dans le cas de la spectroscopie Brillouin, la différence de pulsation $\omega_1 - \omega_2$ entre les faisceaux n'est pas fixée par le processus d'amplification, mais peut être modifiée expérimentalement : on peut accorder la pulsation du laser sonde, et il n'y a amplification que lorsque $\Omega = \omega_1 - \omega_2$ est proche de Ω_B . En modifiant Ω et en mesurant $I_2(0)$ à l'aide d'une photodiode (voir Fig.2.4a), on peut remonter à l'allure du facteur d'amplification Brillouin : $g(\Delta\Omega) \propto \ln(I_2(0)/I_2(L))$. L'ajustement du spectre, d'allure lorentzienne, permet de remonter à Ω_B et à Γ_B .

Il faut noter que si $\Omega \simeq -\Omega_B$, le facteur d'amplification Brillouin est négatif et l'énergie est transférée de la sonde au champ de la pompe, ce qui entraîne une décroissance exponentielle de l'intensité du champ de la sonde. Ainsi, on obtient une raie Brillouin à la fois autour de Ω_B (gain

positif) et autour de $-\Omega_B$ (gain négatif), comme représenté sur la Fig.2.4b.

2.3.2 Avantages

La Spectroscopie Brillouin Stimulée (ou “Diffusion Brillouin Stimulée en configuration amplificatrice”) combine les avantages de chacune des configurations vues précédemment (diffusion Brillouin spontanée et stimulée en configuration génératrice). Premièrement, comme il s’agit d’une technique basée sur la diffusion stimulée, l’intensité des signaux de diffusion est plus importante, et les taux d’acquisition sont inférieurs de plusieurs ordres de grandeur à ceux obtenus avec la diffusion Brillouin spontanée. Deuxièmement, des signaux significatifs peuvent être obtenus avec une puissance optique entrante inférieure de plusieurs ordres de grandeur à celle obtenue dans le cas de la diffusion Brillouin stimulée en configuration génératrice. Ceci est représenté sur la Fig.2.5, où l’on représente la réflectivité en fonction du gain d’amplification Brillouin $G = gI_1(0)L$. La courbe rouge correspond à la diffusion Brillouin stimulée en configuration génératrice, pour laquelle $I_2(L)/I_1(0) \equiv f \sim 10^{-12}$. Les courbes vertes correspondent à la diffusion Brillouin stimulée en configuration amplificatrice, pour diverses valeurs du rapport $I_2(L)/I_1(0)$. On remarque que les seuils typiques d’amplification de la lumière diffusée à 180° sont bien plus bas dans le cadre de la diffusion Brillouin stimulée en configuration génératrice. Dans les expériences de spectroscopie Brillouin stimulée de l’hélium que nous décrirons au chapitre suivant, la puissance instantanée du laser de pompage utilisée est de quelques dizaines de kW seulement (et 20 mW pour le laser sonde), contre ~ 1 MW dans nos tentatives (infructueuses) de diffusion Brillouin stimulée en configuration génératrice⁵ (voir Annexe A).

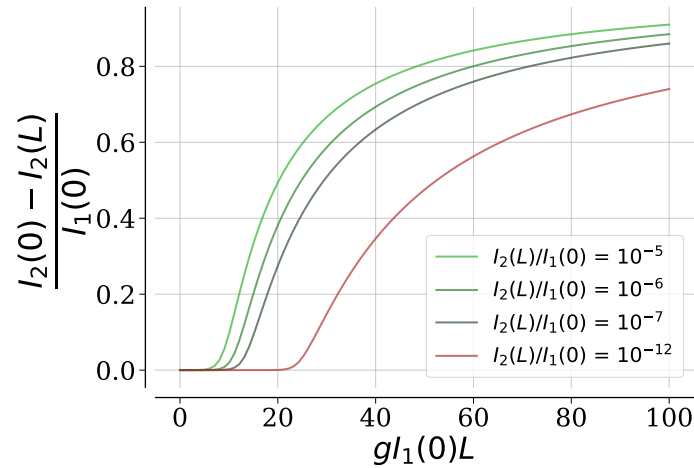


FIG. 2.5 Fraction de l’intensité lumineuse transférée du faisceau pompe au faisceau sonde en fonction du gain d’amplification $G = gI_1(0)L$ et pour différents rapports $I_2(L)/I_1(0)$. Le cas $I_2(L)/I_1(0) = 10^{-12}$ (rouge) correspond au régime de diffusion Brillouin stimulée en configuration génératrice (un seul faisceau), tandis que les courbes en vert correspondent à la diffusion Brillouin stimulée en configuration amplificatrice (ou SBS) pour des rapports $I_2(L)/I_1(0)$ typiquement utilisés dans nos expériences.

5. Tentatives sans doute restées sans succès en raison du fait que la puissance laser n’était pas suffisamment importante...

2.3.3 Régime transitoire

Dans nos expériences de spectroscopie Brillouin stimulée, le laser sonde est un laser continu, et le laser pompe est un laser impulsionnel. Il est important d'évaluer le facteur d'amplification Brillouin en **régime transitoire** car la durée des impulsions du faisceau pompe ($\tau_{\text{pulse}} \sim 200$ ns) est comparable à τ_{ph} la durée de vie typique des phonons dans l'hélium à quelques kelvin. Le traitement du régime transitoire conduit à des résultats légèrement différents de ceux présentés en section 2.2 pour la diffusion Brillouin stimulée à un faisceau. Pour simplifier, on considère de nouveau une propagation des lasers pompe et sonde selon l'axe z (lasers contra-propageants, configuration similaire à celle représentée sur la Fig.2.3(b)).

On cherche à décrire l'amplification du signal sonde en régime transitoire, c'est-à-dire avant l'établissement du régime permanent. Avant d'effectuer le calcul du facteur d'amplification Brillouin en régime transitoire, on en donne les grandes lignes : la présence du laser pompe, dont l'amplitude du champ électrique est $E_{1,0}(t)$ (impulsion de largeur à mi-hauteur τ_{pulse}), et du laser sonde d'amplitude initiale $E_{2,0}^0$ (constante, car le laser sonde est un laser continu) conduisent, par électrostriction, à la création d'une modulation d'amplitude $\delta\rho^0(t)$. $E_{2,0}^0$ et $\delta\rho^0(t)$ sont tous deux d'ordre 0 en G . Le laser pompe est diffusé par la modulation de densité, ce qui résulte en un accroissement de l'amplitude du laser sonde, que l'on note $E_{2,0}^1(t)$ en sortie de la zone d'interaction (terme d'ordre 1 en G). La détermination de $E_{2,0}^1(t)$ permet d'exprimer le facteur d'amplification Brillouin en régime transitoire.

Calculons chacune de ces contributions. Dans le régime des amplifications faibles ($G \ll 1$), on peut linéariser la croissance spatiale des ondes de densité et du faisceau sonde au sein de la zone d'interaction, et écrire [pohl1970] :

$$\delta\rho(z, t) = \delta\rho^0(t) + \delta\rho^1(t)z/L + \dots \quad (2.32)$$

$$E_{2,0}(z, t) = E_{2,0}^0(t) - E_{2,0}^1(t)z/L + \dots \quad (2.33)$$

avec L la longueur caractéristique d'interaction, $\delta\rho^0$ et $E_{2,0}^0(t)$ des termes d'ordre 0 en G et $\delta\rho^1$ et $E_{2,0}^1(t)$ des termes d'ordre 1 en G (on ne considère pas les termes d'ordre supérieur en G). Étant donné que le faisceau sonde est un laser continu, on peut tout de suite supprimer la dépendance temporelle du terme d'ordre 0 dans $E_{2,0}(z, t)$: $E_{2,0}^0(t) = \text{cste}$. D'autre part, on suppose que I_1 ne dépend pas de z (le laser impulsionnel ne cède qu'une très faible fraction de son énergie). Le terme $\delta\rho^0(t)$ est créé par électrostriction par les termes $E_{1,0}(t)$ et $E_{2,0}^0(t)$ d'ordre 0 en G . Cette modulation de densité est ensuite, par rétroaction, à l'origine du terme $E_{2,0}^1(t)$ d'ordre 1 en G . On calcule successivement chacune de ces contributions.

• **Calcul de $\delta\rho^0(t)$.** On simplifie l'équation de la propagation acoustique (Éq.(2.20)). On prend d'une part $\omega \simeq \omega_B$ et $\omega_B \gg \Gamma_B$, et d'autre part $\frac{\partial^2 \delta\rho^0}{\partial t^2} \ll 2\omega \frac{\partial \delta\rho^0}{\partial t}$ (valide si l'on suppose que la croissance de l'onde acoustique est lente devant ω_B , ce qui est très généralement vérifié dès lors que l'on considère des impulsions laser de durée supérieure à plusieurs dizaines de nanosecondes, comme c'est le cas dans nos expériences). On arrive à :

$$\frac{\partial \delta\rho^0}{\partial t} + (i\Delta\Omega + \frac{\Gamma_B}{2})\delta\rho^0 + c.c. = \frac{i\gamma_e \epsilon_0 q}{4v} \vec{E}_{1,0} \cdot \vec{E}_{2,0}^* + c.c. \quad (2.34)$$

La solution homogène de cette équation différentielle est, comme vu précédemment :

$$\delta\rho_H^0(t) = \rho_0 e^{-i\Delta\Omega t} e^{-\Gamma_B t/2} + c.c. \quad (2.35)$$

avec ρ_0 une constante correspondant à la densité initiale. Dans la suite on se place à la résonance ($\Delta\Omega = 0$). Par variation de la constante, et en posant $F(t) = E_1^*(t)E_2^0(t)$ on obtient alors :

$$\delta\rho^0(t) = \frac{i\gamma_e\epsilon_0q}{4v} \int_{t_0}^t F^*(t')e^{-\Gamma_B(t-t')/2} dt' \quad (2.36)$$

• **Calcul de $E_{2,0}^1(t)$.** L'Éq.(2.22) donne au premier ordre non nul :

$$E_{2,0}^1(t) = \frac{i\omega_2\gamma_e}{4nc\rho_0} E_{1,0}(t)\delta\rho^{0*}(t)L \quad (2.37)$$

où on a négligé $\frac{n}{c} \frac{\partial E_{2,0}^1(t)}{\partial t} z$ devant $E_{2,0}^1$, ce qui revient à considérer que le terme d'enveloppe varie lentement devant la vitesse de propagation de la lumière c/n .

L'intensité I_2 est donnée par : $I_2 = \frac{\epsilon_0cn}{2} E_{2,0}(t)E_{2,0}^*(t)$ et donc jusqu'à l'ordre 1 : $I_2 = I_2^0 + I_2^1(t) + \dots$ avec $I_2^0 = \frac{\epsilon_0cn}{2} E_{2,0}^0 E_{2,0}^{0*}$ et $I_2^1(t) = \frac{\epsilon_0cn}{2} [E_{2,0}^1(t)E_{2,0}^{0*}z/L + c.c.]$.

• **Expression du facteur d'amplification Brillouin effectif.** On a $I_2 = I_2^0 e^G \simeq I_2^0(1 + G)$ avec $G = gI_1 z \ll 1$. On définit le facteur d'amplification Brillouin en régime transitoire comme :

$$g(\Delta\Omega, t) = \frac{I_2^1(t)}{I_2^0 I_{1,\max} L} = 2\text{Re}[E_{2,0}^1(t)/I_{1,\max} E_{2,0}^0 L] \quad (2.38)$$

qui donne en utilisant l'Éq.(2.37) :

$$g(\Delta\Omega, t) = -\frac{\gamma_e\Omega_B}{2n^3 c\rho_0 v\epsilon_0} \text{Im}[E_{1,0}(t)\delta\rho^{0*}(t)/(I_{1,\max} E_{2,0}^0)] \quad (2.39)$$

On définit le facteur d'amplification Brillouin effectif comme $g_{\text{eff}} \equiv g(\Delta\Omega = 0, t = t^*)$ avec t^* l'instant auquel l'intensité signal diffusé est maximale. En utilisant l'expression trouvée pour $\delta\rho^{0*}(t)$ on obtient :

$$g_{\text{eff}} \equiv g(\Delta\Omega = 0, t^*) = \kappa \text{Re} \left(E_{1,0}(t^*) \int_{t_0}^{t^*} F(t') e^{\Gamma_B(t'-t^*)/2} dt' / 2I_{1,\max} E_{2,0}^0 \right) \quad (2.40)$$

On remarque que g_{eff} ne dépend de Γ_B (et donc de τ_{ph}) que par l'intégrale du second membre. On s'attend donc à une modification du gain qui dépend du rapport entre la durée caractéristique de l'impulsion laser et le temps de vie des phonons τ_{ph} . Dans notre cas, on modélise les impulsions du laser pompe par une gaussienne : $E_1(t) = E_1(0)\exp(-\sqrt{\ln(2)}(t-t^*)^2/2\tau_{\text{pulse}}^2)$ où, pour rappel, τ_{pulse} est la largeur à mi-hauteur des impulsions du laser de pompage. On représente ainsi le rapport g_{eff}/g_∞ sur la figure 2.6.

On remarque que g_{eff}/g_∞ tend bien vers 1 lorsque $\tau_{\text{pulse}} \rightarrow +\infty$, conformément aux calculs du régime permanent. D'autre part, ce rapport tend vers 0 quand la durée des impulsions devient infiniment courte : le gain est inhibé par le fait que les photons "n'ont pas le temps d'être créés". On représente également $g_{\text{eff}}/\kappa\tau_{\text{pulse}}$ et on remarque que pour des impulsions courtes devant la durée de vie des phonons, g_{eff} ne dépend plus de τ_{ph} mais varie comme $\kappa\tau_{\text{pulse}}$ et tend, dans notre cas où les impulsions sont gaussiennes, vers $0,41\kappa\tau_{\text{pulse}}$. Remarquons que cette courbe ne dépend pas des propriétés du liquide et reste valable quel que soit le liquide considéré (sous réserve, certes, des hypothèses simplificatrices effectuées, mais très généralement vérifiées dans ce type d'expériences).

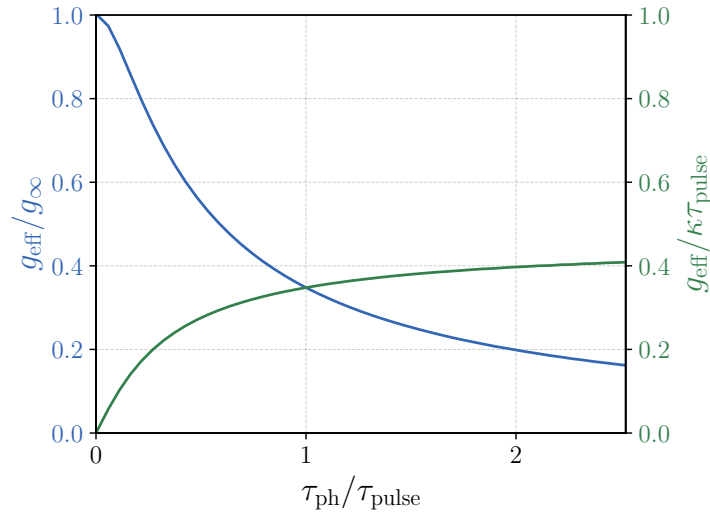


FIG. 2.6 Rapport du facteur d'amplification Brillouin effectif et du facteur d'amplification Brillouin en régime permanent (en bleu) et rapport du facteur d'amplification Brillouin effectif et de $\kappa\tau_{pulse}$ (en vert) en fonction du rapport du temps de vie des phonons et la durée des impulsions du laser de pompage.

2.3.4 Expériences de Spectroscopie Brillouin Stimulée

Expérience de Pohl *et al.* : Pohl *et al.* en 1970 ont été les premiers à faire de la SBS de plusieurs liquides et solides [pohl1970]. Ils procèdent de manière ingénieuse. Une seule source laser est utilisée. Une fraction du faisceau, de pulsation ω_1 , sert de faisceau pompe. Une autre fraction du faisceau est focalisée dans un mélange de liquide : un signal Brillouin rétrodiffusé est généré par Diffusion Brillouin Stimulée en configuration génératrice. Ce signal est décalé en fréquence : la pulsation du signal rétrodiffusé est $\omega_1 - \Omega_B^*$ où Ω_B^* est la pulsation Brillouin associée au mélange des liquides. En modifiant la composition du mélange, on modifie Ω_B^* . Ce faisceau est alors utilisé comme laser sonde, dont on peut accorder la fréquence. Avec le développement des lasers à semi-conducteurs, les spectromètres Brillouin utilisent désormais des diodes lasers accordables en fréquence (pompe ou sonde), où la fréquence est modifiée en changeant la température du matériau semi-conducteur ou le courant qui le traverse.

Spectroscopie Brillouin à lasers impulsions : Les spectromètres SBG peuvent être constitués de lasers impulsions pour le laser de pompage, ce qui permet d'injecter des puissances optiques "importantes" (par rapport aux spectromètres conçus à partir d'un laser de pompage continu) et ainsi d'obtenir un bon rapport signal sur bruit. Pour le laser sonde, on utilise soit un laser impulsions, soit un laser continu. Dans cette configuration, l'échelle de temps sur laquelle les propriétés acoustiques du milieu sont sondées est donnée par la durée de l'impulsion limitante, généralement de l'ordre de 2 à 200 ns pour les lasers Nd :YAG à mode déclenché ("Q-switched lasers"). De plus, comme la puissance instantanée de ces lasers à mode déclenché peut facilement être de plusieurs MW, un gain de Brillouin G d'environ 1 % ou plus peut être obtenu dans une configuration contra-propageante ($\theta \sim 180^\circ$), ce qui rend la détection des signaux Brillouin assez simple. C'est probablement la raison pour laquelle le premier spectromètre SBG utilisant des lasers accordables était un spectromètre à lasers impulsions, réalisé par She

et al. en 1983[[she1983](#)]. Leur étude a permis d’obtenir des spectres Brillouin de différents gaz (Ar, SF₆, N₂, CO₂). Faris *et al.* ont ensuite développé un spectromètre SBG impulsif pour obtenir des spectres Brillouin de différents solides et liquides[[faris1990](#), [faris1993](#), [faris2001](#)].

Spectroscopie Brillouin à lasers continus : Les spectromètres Brillouin peuvent être constitués de lasers continus pour les faisceaux sonde **et** pompe. Le premier spectromètre Brillouin à lasers continus est développé par Tang *et al.* qui ont mesuré le spectre Brillouin du SF₆ gazeux (à 10,5 atm) dans une géométrie laser de co-propagation ($\theta \approx 10^\circ$) et de contre-propagation ($\theta \approx 180^\circ$). Dans ce genre d’expériences où la puissance de la pompe est de l’ordre de 100 mW, le rapport $I_2(L)/I_2(0)$ est généralement d’environ 10^{-5} ou moins. Pour extraire le signal Brillouin du bruit, la pompe est hachée à des fréquences de quelques kHz et un dispositif de détection synchrone est utilisé[[tang1987](#)]. La résolution en fréquence du spectre Brillouin est de 4 MHz, limitée par la largeur spectrale des lasers. Grubbs *et al.* effectuent le même type d’expérience en modulant l’intensité des lasers sonde et pompe à des fréquences différentes [[grubbs1994](#)]. Le signal résultant de la diffusion Brillouin oscille alors à une fréquence correspondant à la différence de modulation de fréquence des lasers pompe et sonde (on le détecte par détection synchrone). Cela permet d’augmenter le rapport signal sur bruit dans la mesure des spectres Brillouin. Cette technique a été utilisée plus récemment par Remer *et al.* avec une modulation de la fréquence de la pompe et de la sonde de plusieurs MHz, ce qui permet de diminuer significativement le temps d’acquisition des spectres de Brillouin [[remer2016](#)]. Ces techniques ont permis de diminuer considérablement les temps d’acquisition par rapport à la diffusion Brillouin spontanée tout en utilisant des puissances optiques modérées. Elles sont aujourd’hui beaucoup utilisées pour la détermination des propriétés acoustiques des échantillons biologiques (voir Réfs.[[meng2016](#), [ballmann2019](#)] où de faibles puissances optiques et des taux d’acquisition rapides sont nécessaires.

Géométries couramment utilisées en spectroscopie Brillouin : Une caractéristique commune à la plupart des travaux mentionnés précédemment est que la géométrie du croisement des faisceaux laser est soit **co-propageante** (θ proche de 0°), soit **contra-propageante** ($\theta \approx 180^\circ$). En effet, pour des intensités données de la pompe et de la sonde, ces géométries maximisent le chevauchement entre les faisceaux de la pompe et de la sonde, maximisant ainsi la longueur d’interaction L (voir Fig.2.3(b)) et donc le rapport d’intensité $I_2(L)/I_2(0)$. Cependant, la longueur d’interaction effective n’est pas clairement définie dans ces géométries. La plupart des auteurs supposent qu’elle est de l’ordre de deux fois la distance de Rayleigh du plus focalisé des lasers [[grubbs1994](#), [ballmann2015](#)], ou de la taille de l’échantillon sondé [[remer2016](#), [faris1993](#)]. À ce jour et à ma connaissance, la plus petite longueur d’interaction rapportée dans une configuration contra-propageante est d’environ $100 \mu\text{m}$, et est rapportée par Ballmann *et al.*[[ballmann2015](#)] en supposant que $L = 2L_R$ où L_R est la distance de Rayleigh du faisceau pompe très focalisé (taille $\sim 4 \mu\text{m}$, longueur d’onde 780 nm). Si $2z_R$ est probablement une limite inférieure de la longueur d’interaction effective, il n’est pas évident que l’effet SBS ne se produise pas sur des échelles spatiales plus longues. Une façon simple de surmonter ces difficultés et d’accéder à une meilleure résolution spatiale est d’utiliser une configuration avec des faisceaux lasers croisés à 90° .

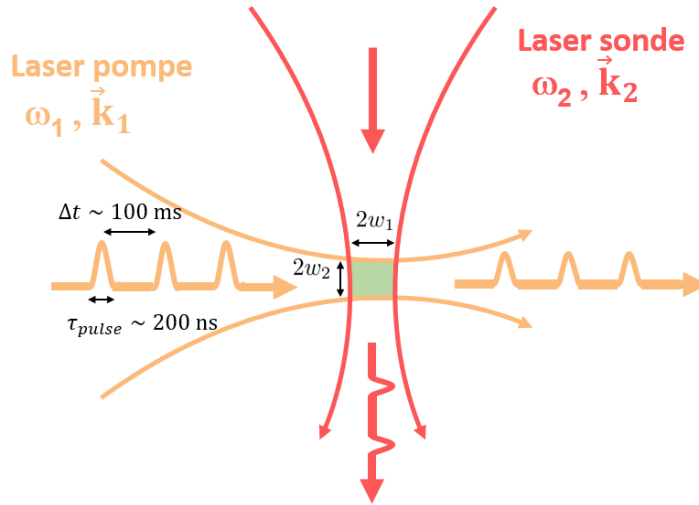


FIG. 2.7 Schéma d'un spectromètre Brillouin stimulé en configuration croisée, avec un laser sonde continu et un laser pompe impulsionnel (durée des impulsions τ_{pulse} , fréquence de répétition de 10 Hz). Après sortie de la zone d'interaction, si $\omega_1 - \omega_2 = \Omega_B$ (on suppose que c'est le cas sur ce schéma), de l'énergie est transférée du laser pompe au laser sonde : on voit apparaître des pics sur le signal sonde en sortie de la zone d'interaction, de même largeur que les impulsions du laser pompe.

2.3.5 Spectroscopie Brillouin à faisceaux croisés

On peut effectuer de la spectroscopie Brillouin avec des faisceaux laser focalisés au même point (cols notés w_1 et w_2 pour la pompe et la sonde respectivement) et croisés à $\theta \approx 90^\circ$, comme représenté sur la Fig.2.7. Dans la configuration croisée, la longueur d'interaction du faisceau sonde avec le faisceau pompe et le milieu est donnée par $L = 2w_1$ alors que la résolution spatiale transversale est donnée par $2w_2$. En focalisant étroitement les faisceaux de la pompe et de la sonde, on peut donc facilement atteindre une résolution spatiale de l'ordre de la dizaine de μm pour un spectromètre SBG. Je n'ai trouvé que deux travaux dans la littérature qui utilisent une configuration croisée à $\theta \approx 90^\circ$. Dans la Réf. [faris1990], Faris *et al.* ont utilisé cette configuration pour sonder les modes acoustiques transversaux de la silice fondue avec un spectromètre SBG à lasers impulsionnels. Cependant, bien que la résolution temporelle du spectromètre soit d'environ 5 ns (largeur de temps de leur laser de pompage impulsionnel), la résolution spatiale dans cette configuration de $\theta \approx 90^\circ$ était encore de l'ordre de la taille de leur échantillon (~ 1 cm) car le laser pompe est focalisé seulement dans une direction de l'espace à l'aide d'une lentille cylindrique. L'autre travail est celui de Grubbs *et al.* qui ont utilisé un spectromètre SBG à lasers continus, développé pour étudier la dépendance en fonction de θ de la largeur et de l'amplitude de la raie Brillouin du disulfure de carbone liquide [grubbs1992]. Dans leur publication, un point de mesure est réalisé pour un angle de diffusion de $\theta \approx 90^\circ$. Cependant, les lasers de pompe et de sonde sont des lasers continus hachés à des fréquences de l'ordre du kHz, conduisant donc à une résolution temporelle de l'ordre de la milliseconde. Comme nous le verrons dans le chapitre suivant, nos travaux ont conduit à la première réalisation d'un spectromètre Brillouin en configuration croisée avec une bonne résolution spatiale ($\sim 40 \mu\text{m}$) et temporelle (~ 200 ns).

2.4 Cahier des charges en vue des expériences de SBS dans l'hélium 4

On établit le cahier des charges pour l'étude des états métastables de l'hélium liquide par spectroscopie Brillouin. À cet effet, il est d'abord nécessaire d'évaluer les trois paramètres clés qui interviennent dans le phénomène de diffusion Brillouin stimulée dans l'hélium : la pulsation Brillouin Ω_B , la largeur naturelle des raies Brillouin Γ_B , et le facteur d'amplification en régime permanent g_∞ . On choisira ensuite des lasers permettant de sonder des raies autour de Ω_B , avec des gains Brillouin G satisfaisants (0,1% à 1% au minimum).

2.4.1 Estimation de Ω_B et de Γ_B

La pulsation Brillouin est donnée par l'Éq.2.2 : $\Omega_B = 2n\omega \frac{v}{c} \sin(\theta/2)$. On calcule l'indice de réfraction n à partir de la densité fournie par la Réf.[donnelly1998] et des valeurs polarisabilité molaire α et de masse molaire M données dans le glossaire. La vitesse du son est également prise de la Réf.[donnelly1998]. On donne sur la Fig.2.8 la fréquence Brillouin $\Omega_B/2\pi$ attendue entre $T = 0,8$ K et $T = 4.1$ K, pour $\lambda = 1064$ nm et pour trois angles proches de 90° . On reporte aussi sur cette figure les valeurs de fréquence Brillouin mesurées par St Peters *et al.* [st.peters1970] par diffusion Brillouin spontanée avec un laser à Rubis de longueur d'onde $\lambda = 632,8$ nm et un angle de diffusion $\theta = 90^\circ$, ici rapportées à la longueur d'onde 1064 nm.

Pour l'estimation de Γ_B , on utilise les données expérimentales de Berberich *et al.* [berberich1976] et de St Peters *et al.* [st.peters1970], qui mesurent respectivement le temps de vie des phonons τ_{ph} et le coefficient d'atténuation du son, tous deux reliés à Γ_B par : $\Gamma_B = 1/\tau_{ph} = \alpha_{att}v$. On rapporte ces mesures, effectuées respectivement à 705 MHz et aux alentours de 750 MHz, aux fréquences sonores attendues dans notre expérience, à partir d'une extrapolation quadratique, voir Fig.2.9(a). Un tel type d'extrapolation vient de la dépendance quadratique de l'atténuation du son avec la fréquence, ce qui est attendu pour un fluide en hydrodynamique classique. Il s'agit également d'un comportement attendu pour l'hélium liquide à des températures plus élevées que le pic d'atténuation observé ici aux alentours de 1,4 K [berberich1976]. Pour des températures beaucoup plus basses que le pic d'atténuation, la théorie prévoit une dépendance linéaire de $\Gamma_B/2\pi$ avec la fréquence dans l'hélium liquide. Cependant, on remarque expérimentalement qu'une extrapolation quadratique est encore bonne à des températures à plusieurs centaines de mK en-dessous du pic d'atténuation, comme le mettent en évidence les mesures d'atténuation du son de la Réf.[woolf1966] à 556 Mhz et 723 MHz. On suppose ainsi que cette dépendance quadratique est toujours valable jusqu'à 0,9 K lors du tracé de la Fig.2.9(a).

Pour l'estimation de Γ_B à $T > T_\lambda$, on utilise la théorie classique de l'hydrodynamique [damzen2003] :

$$\Gamma_B = \frac{\Omega_B^2}{\rho v^2} \left[\frac{4}{3}\eta + \frac{(\gamma - 1)\kappa}{c_p} \right] \quad (2.41)$$

où η est la viscosité dynamique, κ la conductivité thermique, $\gamma = c_P/c_V$ rapport entre les capacités thermiques à pression constante c_P et à volume constant c_V de l'hélium. Ces données sont fournies par la Réf.[donnelly1998]. On calcule ainsi théoriquement $\Gamma_B/2\pi$, et on reporte des valeurs expérimentales de $\Gamma_B/2\pi$ obtenues à partir de la mesure de l'atténuation du son à 15 MHz [pellam1947], rapportée à nos fréquences d'étude. Ces résultats sont présentés en Fig.2.9(b). On remarque que

les valeurs mesurées s'écartent de la théorie en-dessous de 3 K, ce qui est attendu [eselson1974] en raison de l'existence de la transition de phase entre la phase normale et la phase superfluide de l'hélium (située à $T_\lambda = 2,17$ K à pression de vapeur saturante)

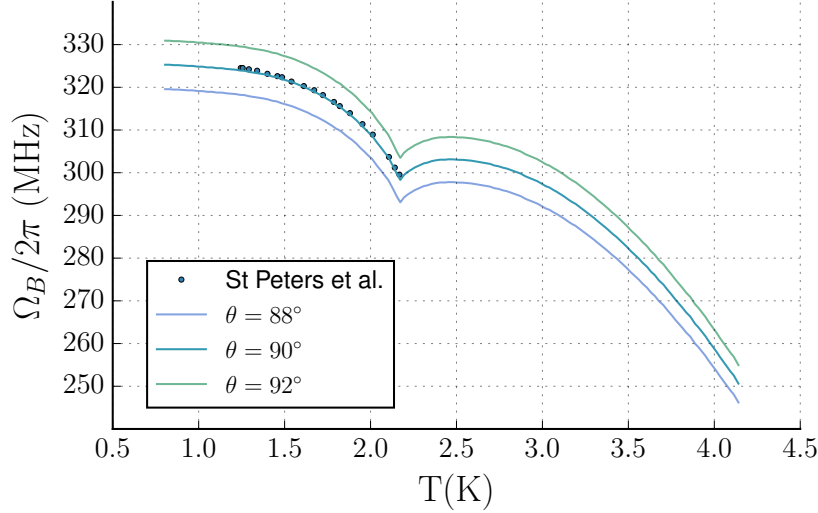


FIG. 2.8 Fréquences Brillouin $\Omega_B/2\pi$ attendues dans l'hélium en fonction de la température T pour différents angles θ à $\lambda = 1064$ nm. On représente également les points expérimentaux de St Peters *et al.* rapportés à notre longueur d'onde (1064 nm).

En conclusion, dans l'hélium superfluide à $T \sim 1$ K on s'attend à $\Omega_B/2\pi \sim 300$ MHz et $\Gamma_B/2\pi \sim 1$ MHz.

2.4.2 Estimation du facteur d'amplification Brillouin dans l'hélium

Aucune valeur du facteur d'amplification Brillouin en régime permanent g_∞ n'a été directement mesurée dans l'hélium liquide. On peut estimer le facteur d'amplification Brillouin attendu à partir des propriétés photoélastiques du milieu.

Le facteur d'amplification attendu dans l'hélium en régime permanent est donné par l'Éq.(2.28) :

$$g_\infty = \frac{\gamma_e^2 \omega^2}{n v c^3 \rho \Gamma_B} = \kappa \Gamma_B^{-1} \quad (2.42)$$

où $\kappa = \frac{\gamma_e^2 \omega^2}{n v c^3 \rho}$, (avec n l'indice de réfraction du milieu, ρ la densité, v la vitesse du son et γ_e la constante électrostrictive). On cherche donc à déterminer κ , qui dépend des propriétés photoélastiques du milieu ainsi que de la longueur d'onde utilisée.

Il est possible d'estimer le coefficient κ de manière indirecte à partir des valeurs de γ_e , n , v et ρ déterminées expérimentalement. Pour le calcul de la constante électrostrictive $\gamma_e = \rho \left(\frac{\partial \epsilon_r}{\partial \rho} \right)$, on utilise la relation de Lorentz-Lorenz (qui est une très bonne approximation car l'indice de réfraction de l'hélium liquide est très proche de 1) : $\epsilon_r = 1 + \frac{4\pi\alpha}{M} \rho$ avec α la polarisabilité molaire et M la masse molaire de l'hélium. La constante électrostrictive γ_e est ainsi donnée par :

$$\gamma_e = \rho \left(\frac{\partial \epsilon_r}{\partial \rho} \right) = \frac{4\pi\alpha}{M} \rho \quad (2.43)$$

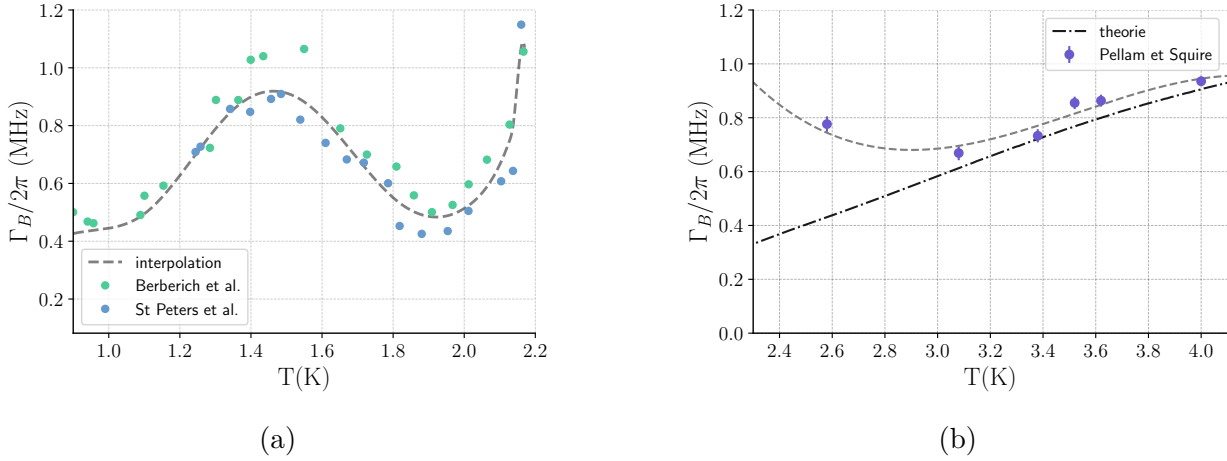


FIG. 2.9 (a) Largeur Brillouin attendue dans l'hélium superfluide pour $\theta = 90^\circ$ et $\lambda = 1064$ nm. Les points expérimentaux de Berberich *et al.* [berberich1976] ($\theta \sim 180^\circ$ et $\lambda = 694,3$ nm) et de St Peters *et al.* [st.peters1970] ($\lambda = 632,8$ nm et $\theta = 90^\circ$) sont rapportés à nos valeurs de θ et λ . Une interpolation est effectuée (tirets gris). (b) : Largeur Brillouin attendue dans l'hélium normal. En trait tirets-pointillés noir, valeur théorique attendue pour $\Gamma_B/2\pi$ d'après l'Éq.2.41, qui ne prend pas en compte l'existence de la transition normal/superfluide à $T_\lambda = 2,17$ K. Points : estimations de $\Gamma_B/2\pi$ obtenues à partir des mesures d'atténuation du son dans l'hélium à 15 MHz [pellam1947]. Une interpolation (tirets gris) est effectuée).

En utilisant les données numériques données dans le glossaire à 1 K et à pression de vapeur saturante on s'attend à $\gamma_e = 0,057$. Avec des lasers de longueur d'onde $\lambda = 1064$ nm on obtient ainsi $\kappa = 1,03 \cdot 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}.\text{W}^{-1}$ à 1 K et à pression de vapeur saturante.

Entre 0.9 K et 2 K on s'attend à un facteur d'amplification Brillouin en régime permanent g_∞ compris entre $1,8 \text{ m.GW}^{-1}$ et $3,9 \text{ m.GW}^{-1}$.

Afin de donner plus de consistance à cette première estimation du facteur d'amplification Brillouin, on effectue de manière indépendante une deuxième estimation du facteur d'amplification Brillouin attendu à partir d'observations expérimentales effectuées par Winterling *et al.* [winterling1968], qui mettent en évidence dans leur expérience que la puissance de seuil Brillouin P_{th} dans l'hélium est comparable à celle obtenue dans le quartz. Ces informations nous ont permis de remonter à un encadrement de la valeur de κ pour des températures comprises entre 1,3 K et 3,8 K :

$$0,86 \cdot 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}.\text{W}^{-1} < \kappa < 1,24 \cdot 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}.\text{W}^{-1}$$

ce qui est compatible avec l'estimation de κ effectuée sur la même gamme de température ($1,8 \text{ K} < T < 3,8 \text{ K}$) à partir des paramètres photoélastiques de l'hélium liquide : $\kappa \in [1,04 \times 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}.\text{W}^{-1}; 1,24 \times 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}.\text{W}^{-1}]$.

2.4.3 Estimations des caractéristiques requises pour les laser pompe et sonde

Afin d'effectuer de la spectroscopie Brillouin, nous choisissons d'utiliser un laser sonde solide accordable en fréquence. La longueur d'onde de travail $\lambda = 1064$ nm semble adaptée : c'est

une longueur d'onde répandue parmi les lasers à semi-conducteurs, ainsi que pour les lasers impulsionnels (laser Nd :YAG doublés en fréquence). Nous choisissons un laser sonde dont la puissance est de l'ordre de 20 mW. Nous présentons ici le cahier des charges requis pour déterminer les autres paramètres requis pour effectuer de la spectroscopie Brillouin dans l'hélium métastable : le **rayon w des faisceaux pompe et sonde** requis pour sonder le foyer acoustique de l'onde sonore, la **durée τ_{pulse}** et l'**énergie E_1** des impulsions du laser de pompage.

Taille et durée typiques de la zone métastable : Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, le domaine spatio-temporel typique sur lequel l'état métastable de ^4He doit être sondé est d'environ $r_{\text{ac}} = 100 \mu\text{m}$ (rayon du foyer acoustique) et $T_{\text{ac}} = 400 \text{ ns}$ (demi-période de l'onde acoustique). Ces deux dimensions, temporelles et spatiales, constituent une borne supérieure de la résolution spatiale et temporelle requise pour sonder la région métastable. Les lasers doivent ainsi être focalisés au foyer acoustique et avoir un rayon w qui vérifie $w \ll r_{\text{ac}} = 100 \mu\text{m}$. D'autre part, la durée τ_{pulse} des impulsions du laser de pompage doit vérifier $\tau_{\text{pulse}} \ll T_{\text{ac}} = 400 \text{ ns}$.

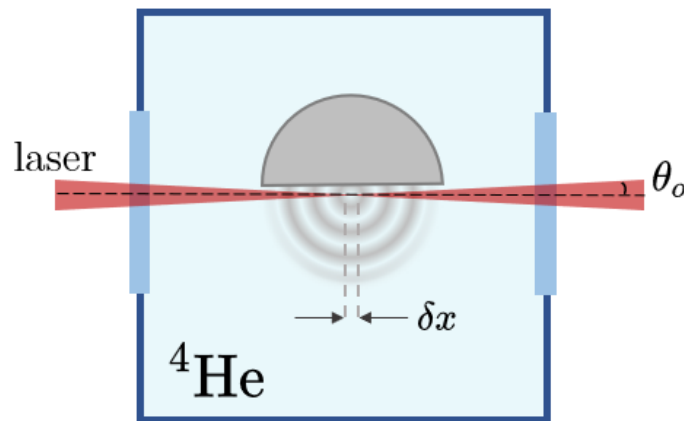


FIG. 2.10 Schéma représentant la cellule expérimentale contenant l'hélium, au sein de laquelle se situe l'émetteur piézoélectrique permettant de créer les états métastables. L'ouverture angulaire limitante θ_0 est imposée par la position du foyer acoustique par rapport au bas de l'émetteur. Le diamètre de la région métastable est typiquement $\delta x \sim 200 \mu\text{m}$.

Ouverture angulaire du système : Une borne inférieure de la résolution spatiale de notre dispositif est l'ouverture angulaire du système. Comme représenté sur la figure 2.10, le bas de l'émetteur piézoélectrique a été rapé sur 0,9 mm : le foyer acoustique est ainsi situé légèrement en-dessous de la cale, à une distance $\sim 0,40 \text{ mm}$, et est ainsi accessible optiquement. Le rayon de la cale est de 6 mm. L'ouverture angulaire limitante est donc $\theta_0 \sim 0,067 \text{ rad}$ (plus petit que l'ouverture des fenêtres $\sim 0,143 \text{ rad}$). Nous utilisons des faisceaux gaussiens, de col w , et d'ouverture angulaire $\Theta = \lambda/(\pi w)$. Ainsi on doit avoir $\Theta < \theta_0$ soit $w > \lambda/(\pi\theta_0) \sim 5 \mu\text{m}$.

Longueur d'onde et temps de vie des phonons : Étant donné que la diffusion Brillouin stimulée repose sur le phénomène d'électrostriction, c'est-à-dire de création de phonons par l'interférence des faisceaux pompe et sonde, la longueur d'onde des phonons doit être très

inférieure à la taille typique de la zone de recouvrement des lasers afin que le processus soit efficace, soit $\Lambda \ll w$. Or $\Lambda = \lambda/2 \sin(\theta/2) \sim 0,4 \mu\text{m}$. Cette condition est moins limitante que celle imposée par l'ouverture angulaire des faisceaux. D'autre part, le temps de vie des phonons à 1 K pour $\Lambda = 0,4 \mu\text{m}$ est estimé à $\tau_{\text{ph}} \sim 400 \text{ ns}$ (voir Fig.2.9). Si nous souhaitions déterminer la largeur naturelle des raies Brillouin, il serait nécessaire d'avoir $\tau_{\text{pulse}} \gg \tau_{\text{ph}}$, ce qui est incompatible avec la restriction due à la durée de la région métastable. On prend ainsi $\tau_{\text{pulse}} < \tau_{\text{ph}}$.

Résolution spectrale : La résolution spectrale de notre dispositif est principalement limitée par la durée des impulsions du laser pompe, et est donnée typiquement par $1/\tau_{\text{pulse}}$. Si l'on souhaite résoudre les raies Brillouin avec une résolution spectrale de Δf , il faut avoir des durées d'impulsion suffisamment longues : $\tau_{\text{pulse}} > 1/\Delta f$. On souhaite avoir une résolution spectrale d'au moins $\Delta f \sim 10 \text{ MHz}$, soit $\tau_{\text{pulse}} > 10 \text{ ns}$.

Gain Brillouin : Le gain d'amplification du signal est donné par $G = g_{\text{eff}} I_1 L$. Étant donné que le temps de vie des phonons est de l'ordre de $0,2 \mu\text{s}$ dans l'hélium superfluide, et peut monter jusqu'à $\tau_{\text{ph}} \sim 0,4 \mu\text{s}$ proche de 1 K, on a $\tau_{\text{ph}} \sim T_{\text{ac}}$. Or, on a vu précédemment que pour sonder les états métastables on doit avoir $\tau_{\text{pulse}} \ll T_{\text{ac}}$. Donc on est dans le régime $\tau_{\text{pulse}} \ll \tau_{\text{ph}}$, ce qui correspond au régime transitoire. Comme vu dans la section sur le régime transitoire (voir section 2.3), ceci conduit à une diminution du facteur d'amplification Brillouin ($g_{\text{eff}} < g_{\infty}$). Dans le régime $\tau_{\text{pulse}} \ll \tau_{\text{ph}}$ on a $g \simeq g_{\infty} \tau_{\text{pulse}}/\tau_{\text{ph}}$. D'autre part, $I_1 \sim E_1/(\pi w_1^2 \tau_{\text{pulse}})$ et $L \sim 2w$, ainsi $G \sim g_{\infty} \frac{E_1}{\tau_{\text{ph}} w}$. On veut $G \sim 1 \%$, donc on doit choisir E_1 et w en conséquence.

Bilan : Il faut choisir w et τ_{pulse} tels que :

$$\frac{\lambda}{\pi \theta_0} \ll w \ll r_{\text{ac}} \quad \text{et} \quad \frac{1}{\Delta f} \ll \tau_{\text{pulse}} \ll T_{\text{ac}} \quad (2.44)$$

soit $w \in [5 \mu\text{m}, 100 \mu\text{m}]$ et $\tau_{\text{pulse}} \in [10 \text{ ns}, 400 \text{ ns}]$.

On choisit $w = 20 \mu\text{m}$ et $\tau_{\text{pulse}} = 25 \text{ ns}$. D'autre part, on choisit E_1 de l'ordre de la dizaine de mJ afin d'obtenir une amplification significative du faisceau sonde.

Laser de pompage choisi, problèmes : L'équipe s'est dotée d'un laser impulsif Nd :YAG, de la marque *EKSPLA* de la série *NL121* (voir Fig.2.11) avec un seul mode longitudinal, Q-switché, et de longueur d'onde centrale 1064 nm, utilisée initialement pour effectuer de la diffusion Brillouin stimulée en configuration génératrice (voir Annexe A). Sa durée d'impulsion est initialement de $\tau_{\text{pulse}} = 25 \text{ ns}$ FWHM et son énergie de 60 mJ (soit une puissance P de l'ordre du MW), avec un taux de répétition à 10 Hz. Nous avons eu cependant de nombreux problèmes avec ce laser : sa puissance n'a cessé de décroître pendant la durée de ce travail de thèse, malgré les maintenances et réparations, pour atteindre quelques kW en fin de thèse. La durée des impulsions a également beaucoup augmenté, et est de l'ordre de $\tau_{\text{pulse}} = 200 \text{ ns}$ au cours de nos études expérimentales, ce qui est à la limite de ce qui est souhaitable (la durée de la zone métastable étant de l'ordre de 400 ns). En revanche cela a pour effet d'augmenter le facteur d'amplification Brillouin effectif, voir Fig.2.6. D'autre part, des fluctuations d'intensité relative de plus de 30% sont observées d'une impulsion à l'autre (au lieu de 1% comme annoncé par le constructeur), ainsi qu'une variation du temps d'arrivée de l'impulsion par rapport au signal de déclenchement interne du laser de l'ordre de plusieurs dixièmes de microsecondes, ce qui est comparable à la période de l'onde sonore. Nous verrons que nous avons obtenu des résultats satisfaisants malgré les

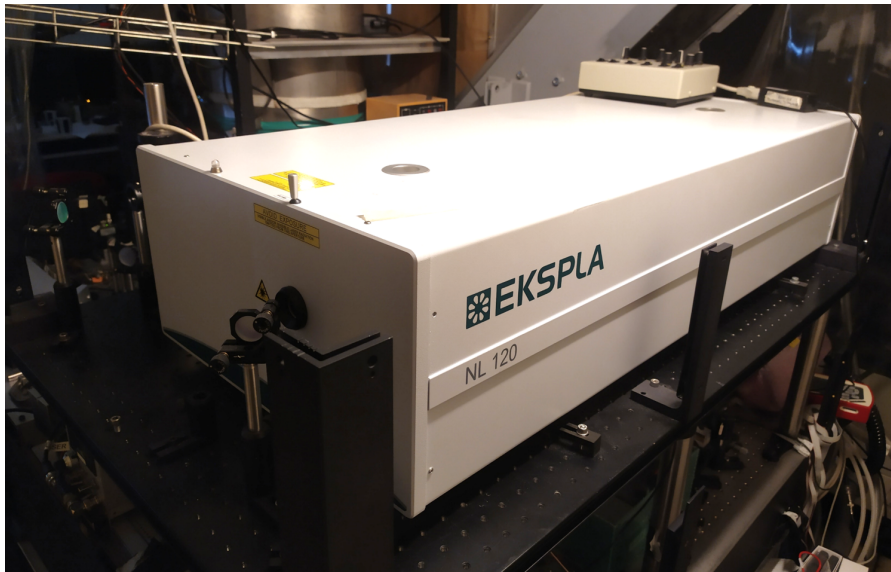


FIG. 2.11 Photographie du laser impulsif Nd :YAG *EKSPLA*, série *NL121*, utilisé comme laser de pompage dans le spectromètre Brillouin.

contraintes imposées par notre laser de pompage, notamment grâce à un traitement *a posteriori* adapté des données de nos expériences.

Laser sonde choisi : Le laser sonde est une diode laser (*Eagleyard*, série *EYP-DFB-1064-00025-1500-BFY12-0002*), à “réroaction distribuée” et de longueur d’onde centrale $\lambda = 1064$ nm,

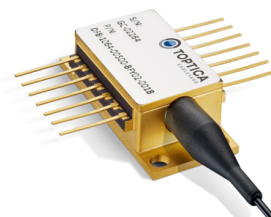
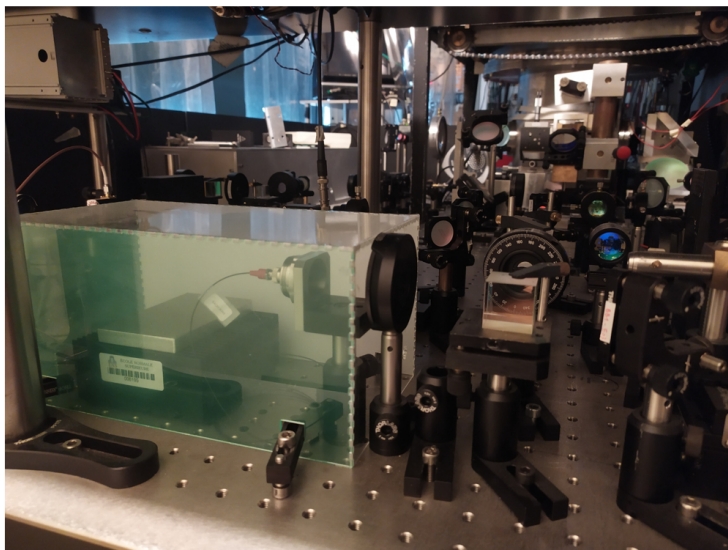


FIG. 2.12 Photographie du banc optique et de la diode laser fibrée (*Eagleyard*, série *EYP-DFB-1064-00025-1500-BFY12-0002*), située dans une boîte de protection verte fabriquée par impression 3D à l’atelier mécanique. Un dessin du fabricant est montré à droite.

voir Fig.2.12. Ce laser est accordable en fréquence en modulant la température de la diode et/ou le courant de la diode, sans saut de mode sur ± 750 pm (200 GHz). Dans nos expériences nous balayons la fréquence en modifiant le courant (la variation de la fréquence du laser en fonction du courant $df/dI = 1,358$ GHz.mA⁻¹). Des rampes en intensité sont créées par un générateur de fonction arbitraire (AFG), et la température est régulée en utilisant un dispositif de boucle de rétroaction PID. Les fluctuations résiduelles de la fréquence de la diode laser dues aux variations de température inférieures à 300 kHz. La puissance optique typique délivrée par ce laser est de 20-25 mW.

Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre le principe de la diffusion Brillouin et les motivations d'une étude de l'hélium par spectroscopie Brillouin stimulée. Les contraintes liées à la taille et la durée de la région métastable créée acoustiquement dans l'hélium imposent le développement d'une nouvelle configuration SBS, utilisant un laser pompe impulsionnel croisé à un angle $\theta \sim 90^\circ$ avec le laser sonde.

En vue de développer cette nouvelle technique, nous procédons par étape. Nous développons et testons le spectromètre en effectuant des tests dans un échantillon simple et aux propriétés électrostrictives proches de celles de l'hélium liquide à basse température (Chap.3). Puis, nous testons le spectromètre dans l'hélium stable (Chap.4) avant d'effectuer les premières mesures de fréquence Brillouin dans l'hélium liquide métastable (Chap.5 et Chap.6).

3 – Spectroscopie Brillouin Stimulée dans un domaine spatio-temporel confiné

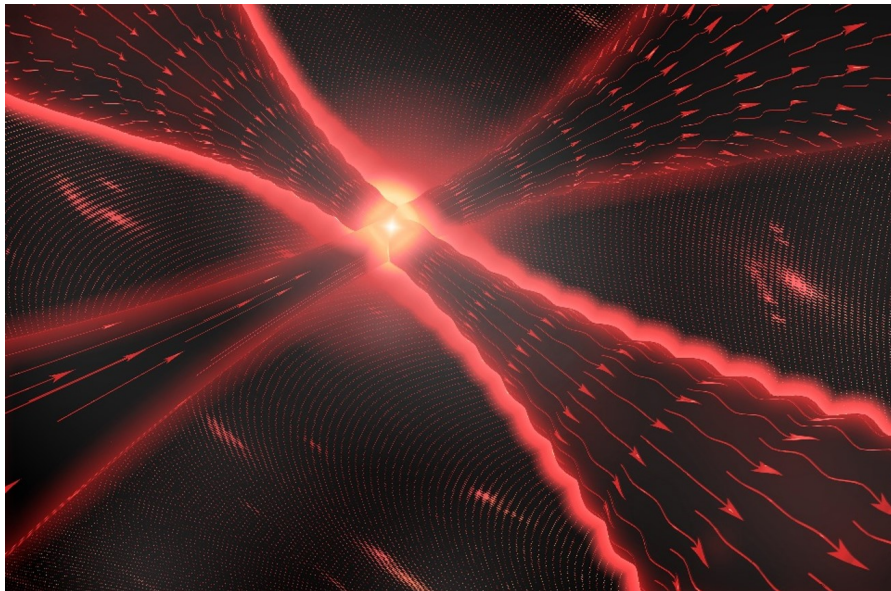


FIG. 3.1 Vue d'artiste de la technique de spectroscopie Brillouin stimulée en configuration croisée : un laser de pompage impulsif et un laser sonde continu sont focalisés au sein d'un milieu. Lorsque la différence de fréquence entre les deux lasers correspond à la fréquence Brillouin, un transfert d'énergie a lieu du laser de pompage au laser sonde en sortie de la zone d'interaction. Crédit image : Mathieu Djadaojee, mathieudjadojee.com

Sommaire

3.1	Mise en place et procédure expérimentale	51
3.1.1	Choix de l'échantillon de test	51
3.1.2	Banc optique	52
3.1.3	Résolution spectrale de l'expérience	53

3.2 Spectroscopie Brillouin stimulée de l'acétone à pression et température ambiantes	54
3.2.1 Tests préliminaires : diffusion Brillouin stimulée en géométrie contrapropageante	54
3.2.2 Spectroscopie Brillouin en géométrie croisée : méthode de superposition	54
3.2.3 Signaux Brillouin bruts à $\theta = 90^\circ$	55
3.2.4 Signal parasite dû à la création d'une lentille thermique	56
3.2.5 Signal parasite dû à la diffusion du laser de pompage	58
3.2.6 Obtention des spectres Brillouin	59
3.2.7 Ordres de grandeur	60
3.3 Résultats expérimentaux et discussion	61
3.3.1 Fréquence Brillouin dans l'acétone	61
3.3.2 Largeur Brillouin dans l'acétone	63

Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons le développement d'un spectromètre Brillouin stimulé à laser de pompage impulsionnel (durée des impulsions FWHM : $\tau_{\text{pulse}} \sim 170$ ns) en **configuration croisée** ($\theta \approx 90^\circ$), et avec des lasers focalisés sur des échelles de l'ordre de ~ 15 μm . Cette technique de spectroscopie nous a permis d'obtenir des spectres Brillouin à des échelles à la fois confinées dans l'espace (~ 30 μm) et dans le temps (~ 170 ns) dans un échantillon test (acétone à température ambiante). À cet effet il a été nécessaire d'éliminer sources de signaux de fond inhérentes à la configuration particulière du spectromètre développé. Cette technique s'avère intéressante pour sonder les propriétés acoustiques de milieux transparents soumis à des phénomènes transitoires rapides et répétitifs sur de petites échelles spatiales. Elle sera utilisée pour étudier l'hélium stable et métastable comme nous le verrons dans les chapitres suivants.

3.1 Mise en place et procédure expérimentale

3.1.1 Choix de l'échantillon de test

L'échantillon étudié est de l'acétone à température ambiante. Ce liquide est placé dans une cellule (voir Fig.3.2) semblable à celle qui contient l'hélium liquide au sein du cryostat : la cellule est un bloc en inox de forme cubique avec des fenêtres BK7 de 1 pouce de diamètre et 5 mm d'épaisseur, et contient un volume ~ 30 cm^3 de liquide.

Le disulfure de carbone (CS_2) est souvent utilisé dans les expériences de diffusion Brillouin, notamment en raison de son facteur d'amplification Brillouin g_∞ parmi les plus élevés au sein des liquides aux conditions de température et pression usuelles ($g_\infty = 1,5$ m.GW^{-1}). Mais il s'agit d'une substance dangereuse pour la santé (reprotoxique). L'eau liquide possède un gain Brillouin $g_\infty = 0,048$ m.GW^{-1} [boyd2010], beaucoup plus faible que celui attendu dans l'hélium d'après les

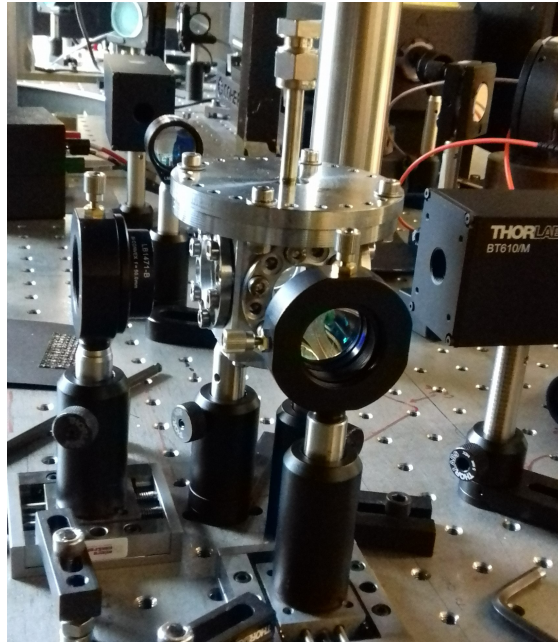


FIG. 3.2 Photographie de la cellule contenant l'acétone et des lentilles de focalisation des lasers Brillouin.

calculs menés au chapitre précédent. Notre choix se porte sur l'acétone : son gain à température et pression ambiantes $g_{\infty} = 0,2 \text{ m.GW}^{-1}$ est de l'ordre du gain attendu dans l'hélium superfluide à 1 K et à sa pression de vapeur saturante. De plus, c'est une substance qui est relativement peu dangereuse et couramment utilisée en laboratoire pour le nettoyage des optiques. Nous utilisons de l'acétone purifié (*Acétone 99.8%, AnalaR NORMAPUR ACS*).

3.1.2 Banc optique

Le laser de pompage est le laser impulsionnel décrit au paragraphe 2.4.3. Sa durée d'impulsion τ_{pulse} au moment de notre étude est de 170 ns (FWHM), et la puissance optique instantanée typique utilisée pour cette étude est de 0,5 kW. Le laser sonde est le laser décrit au paragraphe 2.4.3, et dont la puissance typique pour cette étude est de 15 mW.

Le banc optique est présenté sur la Fig.3.3. Les faisceaux laser de pompe et de sonde sont divisés en deux faisceaux secondaires par des cubes séparateurs polarisants. Deux faisceaux sont utilisés pour mesurer la différence de fréquence entre les deux lasers en les faisant battre sur une photodiode rapide (photodiode (c), largeur de bande de 5 GHz). Le signal de la photodiode est enregistré sur un oscilloscope à largeur de bande de 2,5 GHz. Les autres faisceaux, tous deux polarisés verticalement, sont focalisés dans la cellule expérimentale avec des lentilles de 50 mm de longueur focale (lentilles L_1 et L_2 sur la Fig.3.3). Les tailles des faisceaux sonde et pompe au foyer optique sont respectivement $w_1 = 17 \mu\text{m}$ et $w_2 = 14 \mu\text{m}$ (estimées à partir de la mesure du diamètre des faisceaux d'entrée dans la cellule expérimentale). La photodiode (a) (surface active : $\varnothing 80 \mu\text{m}$; largeur de bande : 600 MHz) recueille le signal Brillouin. Cette photodiode est utilisée en mode AC afin de s'affranchir de la composante continue due au laser sonde. La photodiode (b) mesure l'intensité du faisceau pompe.

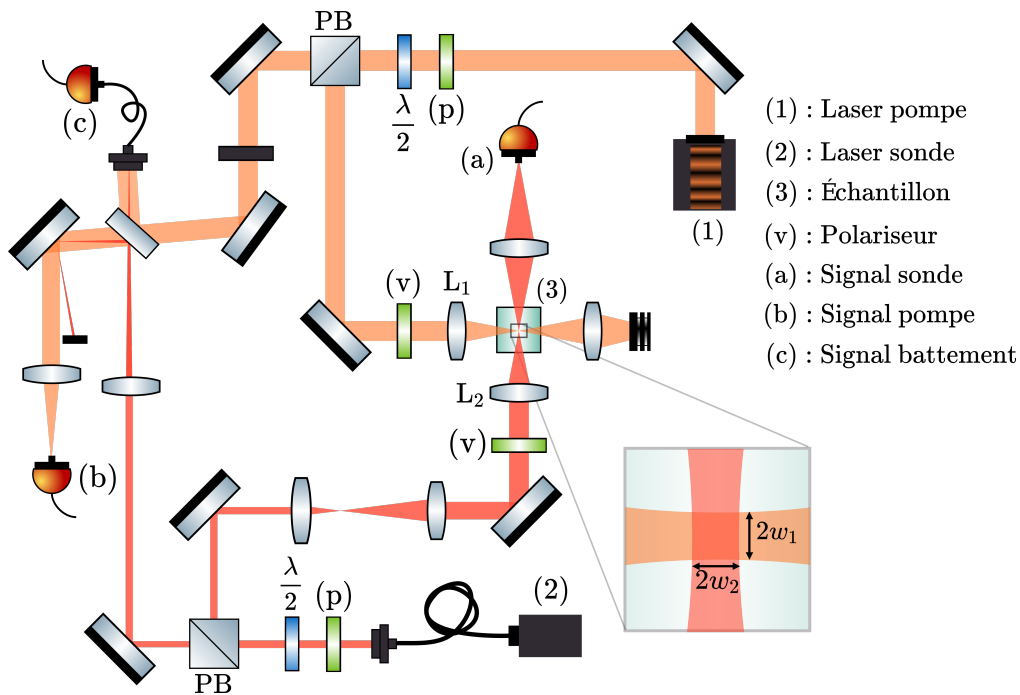


FIG. 3.3 Schéma du montage expérimental. (1) : Laser de pompe (Nd :YAG pulsé); (2) : Laser sonde (diode laser continue accordable en fréquence); (3) : Échantillon (acétone liquide à pression et température ambiante); (a), (b) et (c) : Photodiodes du signal de transmission de la sonde, de la pompe et du signal de battement; (p) : Polariseur linéaire; (v) : Polariseur vertical; $\lambda/2$: lame demi-onde; PB : Cube séparateur polarisant.

3.1.3 Résolution spectrale de l'expérience

Un signal de battement typique, pour une fréquence de battement de 23,5 MHz, est donné sur la Fig.3.4(a). La Fig.3.4(b) montre la transformée de Fourier du signal, réalisée par transformation de Fourier rapide programmée en Python. La largeur du battement à mi-hauteur (FWHM) est de $3,3 \pm 0,1$ MHz. Nous avons remarqué que la largeur du battement varie d'une impulsion à une autre du laser de pompe. En moyenne, la largeur du battement est 3,4 MHz avec un écart-type 0,4 MHz. Cette dispersion dans les largeurs semble principalement due au laser de pompe. La largeur du signal de battement est de l'ordre de $1/\tau_{\text{pulse}}$. Cela assure le caractère monomode (spectral) du laser de pompe, et est cohérent avec la faible largeur spectrale du laser sonde (~ 1 MHz) annoncée par le fabricant.

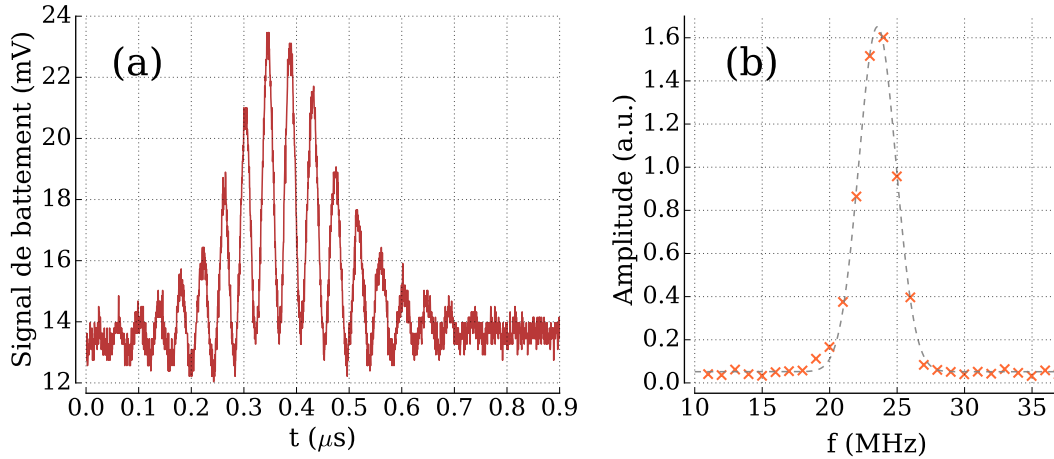


FIG. 3.4 (a) : Allure temporelle du signal de battement entre le laser de pompage et le laser sonde recueilli par une photodiode rapide (*Thorlabs DET08C/M* de bande passante 5 GHz entre 800 et 1700 nm), pour une fréquence de battement de 23,5 MHz; (b) : Transformée de Fourier du signal de battement (a), ajustée par une fonction gaussienne (fréquence centrale $f_0 = 23,5 \pm 0,02$ MHz, FWHM $3,3 \pm 0,1$ MHz)

3.2 Spectroscopie Brillouin stimulée de l'acétone à pression et température ambiantes

3.2.1 Tests préliminaires : diffusion Brillouin stimulée en géométrie contrapropageante

Nous avons d'abord effectué quelques tests en géométrie contrapropageante (angle $\theta \sim 180^\circ$ entre les sens de propagation des deux lasers), avec des lasers dont le col au point de focalisation est $\sim 15 \mu\text{m}$. Les lasers sont croisés en les focalisant à travers un diaphragme. Le diaphragme est retiré, puis la cellule d'acétone est placée. Nous balayons la position verticale du laser de pompage en translatant sa lentille de focalisation. Un signal Brillouin (amplification du signal sonde) est obtenu pour un décalage de fréquence entre les lasers $f = \Omega/2\pi = 3,06 \pm 0,05 \text{ GHz}$. Cette valeur est en accord avec la valeur attendue dans l'acétone à pression et température ambiante ($f_B = \Omega_B/2\pi \sim 3 \text{ GHz}$ pour $\theta \sim 180^\circ$).

3.2.2 Spectroscopie Brillouin en géométrie croisée : méthode de superposition

Nous présentons dans cette section la méthode adoptée pour superposer les foyers des faisceaux laser dans une géométrie "croisée", où les deux faisceaux se propagent à 90° l'un de l'autre. La focalisation est ici plus délicate que dans le cas contrapropageant : le col au point de focalisation est de l'ordre de $15 \mu\text{m}$, et le recouvrement des lasers est bien moindre, donc les signaux d'amplification Brillouin sont plus faibles. Comme dans le cas contrapropageant, nous avons d'abord croisé

les faisceaux à travers le trou d'un diaphragme, et nous avons ensuite ajouté la cellule, et changé la position des faisceaux tout en balayant la fréquence de battement, sans succès. Une méthode qui s'est avérée efficace pour croiser les faisceaux a été d'utiliser une "tête d'alignement", constituée tout simplement d'une tête d'aiguille fixée sur une platine de translation XYZ, voir Fig.3.5 : nous ouvrons le haut de la cellule contenant l'acétone, nous plongeons la tête d'alignement. Puis, en étudiant les signaux de transmission des lasers à travers la cellule, et en translatant la lentille de focalisation de chaque laser selon les trois directions de l'espace, nous focalisons chaque laser sur la pointe de l'aiguille. Nous retirons l'aiguille et refermons la cellule. Un signal Brillouin a rapidement pu être obtenu grâce à cette méthode.

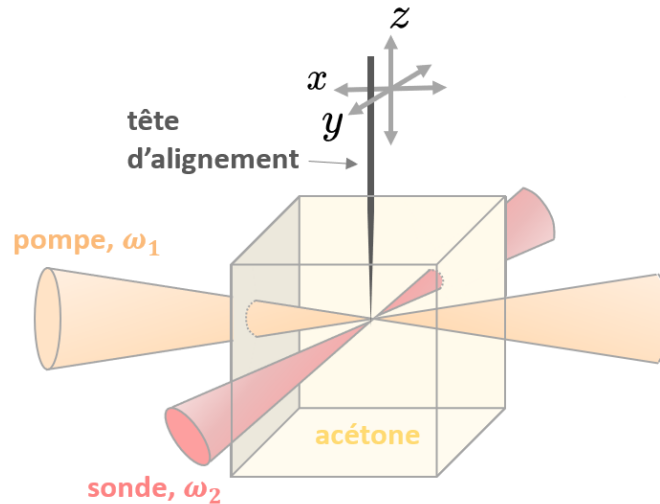


FIG. 3.5 Schéma illustrant la méthode de croisement des lasers à l'aide d'une tête d'alignement (aiguille) placée sur un support permettant de la translater dans les trois directions de l'espace.

Une fois les lasers approximativement superposés, nous avons observé un signal particulier, d'origine thermique, qui nous a grandement aidé à affiner la superposition des foyers optiques : lorsque les deux faisceaux sont proches l'un de l'autre, une augmentation ou une diminution de la composante continue du laser sonde est observée sur une échelle de temps de l'ordre de la milliseconde. Ce signal est minimisé lorsque les foyers optiques sont bien superposés. Nous nous en sommes servis pour nous assurer que les foyers optiques étaient bien superposés. On donne plus de détails sur cet effet et son origine dans la section 3.2.4. Une fois superposés, nous avons rapidement pu observer des signaux caractéristiques du phénomène de diffusion Brillouin stimulée.

3.2.3 Signaux Brillouin bruts à $\theta = 90^\circ$

Des signaux Brillouin bruts, enregistrés par la photodiode-sonde (a) de la Fig.3.3 (couplage AC) sont montrés sur la Fig.3.6 pour $\Omega \simeq -\Omega_B$, $|\Omega| \neq \Omega_B$ et $\Omega \simeq \Omega_B$. Dans le cas $\Omega \simeq -\Omega_B$ (Fig.3.6a) on s'attend à ce que l'intensité de la sonde diminue en raison de l'effet SBS. Comme on peut le voir, il y a effectivement un pic négatif sur certaines traces du signal de transmission du laser sonde. Ces pics négatifs sont la signature claire de l'effet de perte SBS : (i) ils apparaissent au

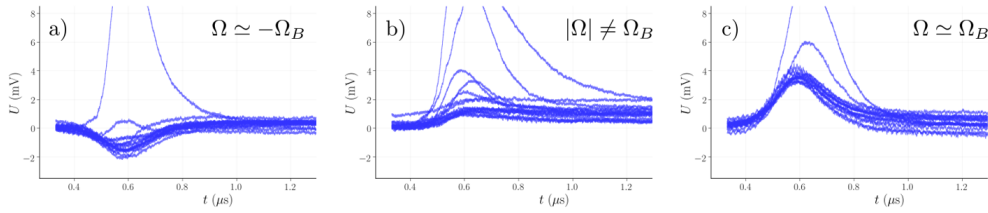


FIG. 3.6 Signal du laser sonde en transmission de la cellule d'acétone (photodiode (a) de la Fig.3.3 en couplage AC) à pression et température ambiantes. a) 15 traces obtenues à $\Omega = -2,14(1)$ GHz $\simeq -\Omega_B$; b) 15 traces obtenues à $\Omega = 2,0(1)$ GHz; c) 15 traces obtenues à $\Omega = 2,14(1)$ GHz $\simeq \Omega_B$. Le pic positif en a) et le pic négatif en c) sont des signatures de l'effet de gain (perte) Brillouin. On observe également dans chacun de ces trois cas des signaux de fond parasites provenant du laser de pompage (voir texte).

moment où les faisceaux de la pompe et de la sonde sont superposés dans la cellule expérimentale, (ii) la largeur temporelle des signaux correspond à la largeur temporelle de l'impulsion du laser de pompage (voir le profil temporel du laser de pompage donné par la courbe pleine dans la Fig.3.7(b)), (iii) leur amplitude relative à la composante DC du signal (1.7 V) est de l'ordre de 1‰ ce qui correspond à un gain Brillouin expérimental du bon ordre de grandeur (voir plus loin); enfin (iv) lorsque le décalage de fréquence des deux lasers est très éloigné de la fréquence de Brillouin ($|\Omega| \neq \Omega_B$), un tel pic négatif n'apparaît pas (voir Fig.3.6b). On observe également certains pics positifs, dont l'amplitude varie beaucoup d'une trace à l'autre. De tels signaux, observés à $|\Omega| \neq \Omega_B$ et $\Omega \simeq \Omega_B$ sont des signaux parasites provenant du laser de pompage, et discutés en section 3.2.5. Pour $\Omega \simeq \Omega_B$ (Fig.3.6c) on observe cette fois des pics positifs, dont l'amplitude est significativement plus importante que dans le cas $|\Omega| \neq \Omega_B$. De tels pics ne sont pas seulement dûs aux signaux parasites provenant du laser de pompage, et sont de nouveau caractéristiques de l'effet de gain Brillouin.

3.2.4 Signal parasite dû à la création d'une lentille thermique

Un signal Brillouin brut est représenté sur des échelles horizontales de temps et verticales de tension plus resserrées sur la Fig.3.7a (points violets clairs). Ces données ont été prises dans le cas $\Omega \simeq -\Omega_B$. On observe effectivement un pic négatif (à $t \sim 0,6$ μ s) en raison de l'effet SBS. Cependant on observe également que le signal de la sonde, initialement à une valeur constante de ~ 0 mV en raison du couplage AC de la photodiode (a), ne revient pas à cette valeur initiale après le passage de l'impulsion laser de pompe dans la cellule. Nous avons remarqué qu'un ajustement de la position verticale du laser de pompage permet de minimiser cet effet. Cependant il est difficile de s'en affranchir totalement. Dans l'acquisition des données présentées sur la Fig.3.7a, nous avons volontairement choisi une position du laser de pompage permettant de rendre cet effet plus visible que sur les traces de la Fig.3.6. Notons toutefois que cet effet est également présent, même plus légèrement, sur les traces de la Fig.3.6, et doit être corrigé pour obtenir des spectres Brillouin exploitables.

Comme on peut le voir sur la Fig. 3.7c, le profil temporel de ce signal parasite se résorbe avec un temps caractéristique de l'ordre de 1 ms. Ici, ce signal parasite est une diminution du signal sonde de l'ordre de plusieurs mV. Lorsque nous changeons la position du laser de pompage

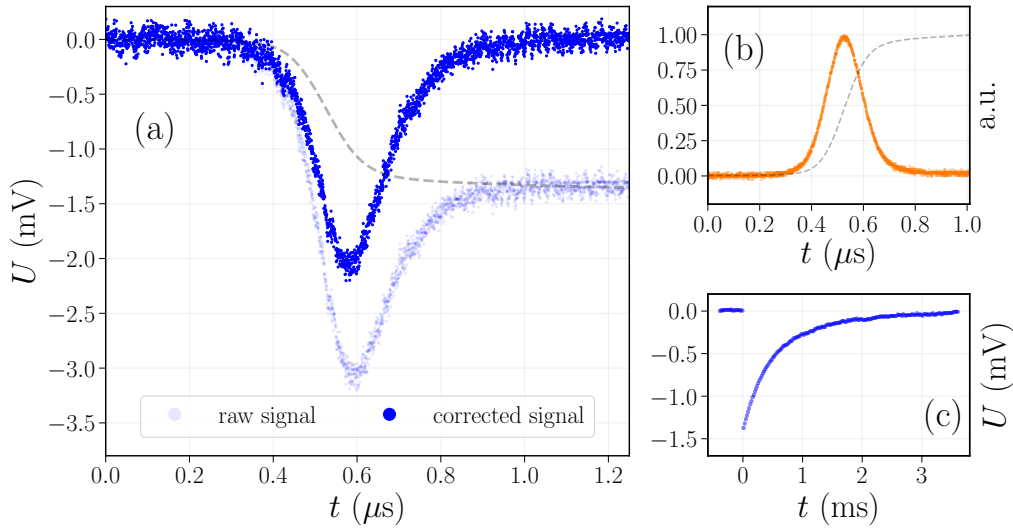


FIG. 3.7 (a) : Profil temporel des signaux de sonde bruts et corrigés (points) lorsque Ω est proche de $-\Omega_B$. En gris : allure de la variation d'intensité due à l'effet de lentille thermique; (b) : Profil temporel du laser de pompage (courbe pleine) et intégration du profil temporel (courbe en pointillés); (c) : profil temporel du signal de la sonde à l'échelle de temps ms.

ou du laser sonde, l'amplitude de cet effet change, et parfois change de signe (on observe une augmentation du signal sonde de l'ordre de plusieurs mV également). Ce type de signal apparaît quelque soit la différence de pulsation Ω entre les deux lasers. Il n'apparaît que lorsque les cols des deux faisceaux sont suffisamment proches.

Ce signal parasite semble être d'origine thermique : l'acétone, molécule organique, absorbe une partie du rayonnement infrarouge à 1064 nm. En particulier, une fraction de la puissance du laser de pompage est absorbée, et chauffe le milieu au niveau du point de focalisation. Cet échauffement provoque une modification de la densité (la densité diminue) : une lentille thermique est créée (lentille divergente). On représente schématiquement cet effet sur la Fig.3.8. Le laser pompe se propage dans une direction perpendiculaire au plan du schéma, et crée une lentille thermique cylindrique de rayon $\sim w_1$. Lorsque le laser sonde passe exactement au centre de la lentille thermique, la lentille a un effet très faible sur le signal. En revanche, si le laser sonde est translaté vers le haut (d'une distance δ par exemple), la lentille dévie le faisceau (d'un angle $\Delta\theta$), ce qui change l'injection de la photodiode dans la photodiode de détection (dont la surface active est de rayon R). Sur le schéma, un décalage du faisceau sonde d'une distance δ provoque un déplacement de Δx de la tâche lumineuse recueillie par la photodiode : il y a désinjection du faisceau sonde, d'où une diminution de l'amplitude du signal sonde, comme celle observée sur la Fig. 3.7a.

De rapides calculs d'ordre de grandeur permettent de corroborer ce scénario, où le signal parasite est d'origine thermique. Le coefficient de diffusion thermique de l'acétone $\kappa = 0,161 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, la capacité calorifique massique $C = 2150 \text{ J.K}^{-1}.\text{kg}^{-1}$, la densité $\rho = 789,9 \text{ kg.m}^{-3}$ à température ambiante [lide2004], on obtient un coefficient de diffusion thermique dans l'acétone $D = \kappa/(\rho C) = 9,5 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$. La taille de la lentille thermique est de l'ordre de $w_1 \sim 15 \mu\text{m}$. Ainsi, le temps typique de diffusion de la chaleur emmagasinée dans la lentille thermique est

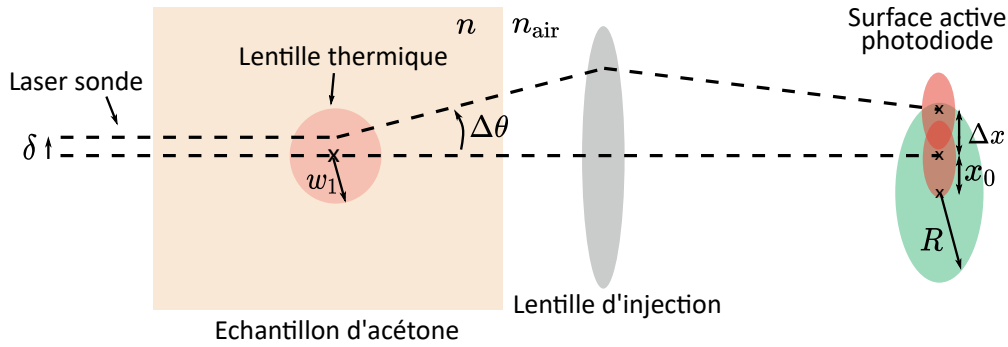


FIG. 3.8 Schéma représentant l'effet de la lentille thermique sur l'injection du faisceau du laser sonde dans la photodiode de détection : si le faisceau est décalé d'une distance δ par rapport au centre de la lentille, le faisceau est décalé d'une distance Δx par rapport à sa position initiale x_0 sur le capteur de la photodiode, ce qui résulte en une diminution ou une augmentation du signal recueilli.

$\tau_{\text{diff}} \sim w_1^2/D \sim 2,4$ ms. Cela signifie que la lentille thermique disparaît en un temps de l'ordre de la milliseconde. Cela correspond effectivement au temps de décroissance du signal typiquement observé sur la Fig. 3.7c.

De plus, l'amplitude du signal parasite (~ 1 mV, voir Fig.3.7, à comparer aux 1,7 V de la composante DC), est cohérente avec notre évaluation de l'indice de réfraction de la lentille thermique (le laser de pompage induirait une diminution locale de l'indice de réfraction de l'acétone de l'ordre de $\Delta n \sim 1 \cdot 10^{-5}$, voir plus bas).

Cet effet thermique a été une aide pour trouver rapidement un signal Brillouin : ce signal parasite apparaît dès lors que les deux faisceaux sont proches, puis est minimisé lorsque le faisceau sonde passe au centre de la lentille thermique ($\delta = 0$, voir Fig.3.8). Le chevauchement des deux lasers est alors maximal. Nous avons ainsi pu superposer les faisceaux plus aisément.

Ce signal parasite d'origine thermique a une amplitude qui varie fortement d'une impulsion laser à l'autre. Son effet doit être corrigé avant de déterminer le facteur d'amplification Brillouin. Dans ce but, on peut remarquer qu'à l'échelle de temps du signal Brillouin (170 ns) la diffusion de la chaleur peut être négligée. Alors, la variation de température dans le milieu, et donc la variation d'intensité due à la déviation du signal de la sonde par la lentille thermique, est directement proportionnelle à $f(t) = \int_{-\infty}^t I_1(t')dt'$ (voir la courbe en pointillés dans la Fig.3.7b). Un ajustement du signal brut du signal sonde par cette fonction (voir Fig. 3.7a) permet de supprimer cette composante temporelle. Le signal corrigé (Fig. 3.7a, points violets foncés) est utilisé pour déterminer le facteur d'amplification Brillouin g . Avant d'aborder explicitement la méthode par laquelle g est déterminé, mentionnons une autre source de signal de fond que nous avons dû considérer.

3.2.5 Signal parasite dû à la diffusion du laser de pompage

Même en l'absence du faisceau sonde, un signal, provenant vraisemblablement du laser de pompage, est détecté sur la photodiode-sonde (a), et fluctue d'une impulsion à l'autre du laser de pompage. Des signaux typiques en l'absence de laser sonde étaient déjà visibles sur la Fig.3.6. On montre sur la Fig.3.9a les signaux observés sur la photodiode-sonde (a) en l'absence de faisceau sonde. Un histogramme de l'intensité de ce signal diffusé est montré sur la Fig.3.9b, établi à

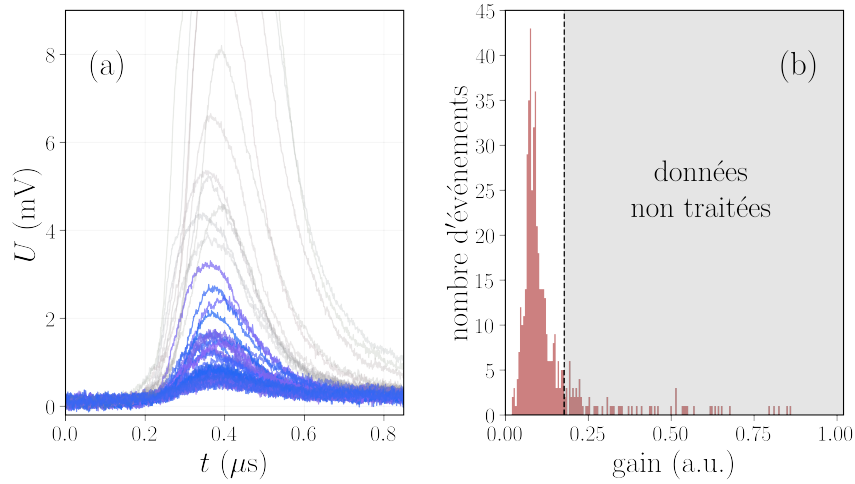


FIG. 3.9 (a) : Signaux bruts détectés avec la photodiode (a) en l’absence du faisceau laser de la sonde en raison de la diffusion du laser de pompe, les signaux gris clair correspondent aux 15% des signaux de fond de plus haute intensité et ne sont pas considérés pour déterminer le signal de gain Brillouin (voir texte) ; (b) : statistiques de l’intensité du signal de diffusion (réalisées sur un ensemble de 500 signaux), les événements à droite de la ligne pointillée correspondent aux 15% de signaux de fond de plus haute intensité, écartés du traitement.

partir d’un ensemble constitué de 500 signaux. Ces signaux stochastiques sont vraisemblablement d’origine thermique : l’échauffement hétérogène du milieu par le laser de pompage provoque des fluctuations de densité du milieu, par lesquels le laser de pompage est diffusé. Cette lumière diffusée ajoute un fond considérable (plusieurs mV) au signal Brillouin dont l’amplitude est d’environ 3 mV (voir Fig.3.7a. Nous avons vérifié que l’intensité diffusée en présence du faisceau sonde suit la même statistique. Afin de minimiser le bruit de fond qui résulte de ces signaux parasites, nous avons choisi de tronquer nos données : seuls les 85% des signaux sont traités, comme représenté sur la Fig.3.9b. Ces fluctuations sont indépendantes de la fréquence et ne contribuent qu’à un décalage global vertical des spectres Brillouin mesurés.

3.2.6 Obtention des spectres Brillouin

Pour obtenir le spectre Brillouin, on procède comme suit. L’oscilloscope est déclenché sur un signal d’horloge fourni par le laser de pompage (fréquence de répétition de 10 Hz). Nous fixons le courant de la diode laser, ce qui a pour effet de fixer la valeur de Ω . Nous enregistrons les signaux des photodiodes (a), (b) et (c) de 100 événements. Seuls les 85% d’intensités minimales du signal de la sonde (photodiode (a)) sont traités. La transformée de Fourier du signal de battement (photodiode (c)) est calculée numériquement pour obtenir la différence de fréquence entre les lasers pour chaque prise de mesure. Chaque signal sonde (photodiode (a)) est corrigé comme mentionné ci-dessus pour supprimer la contribution due à la création d’une lentille thermique. La diffusion Brillouin amplifie le signal sonde par un facteur $\exp(G) \simeq 1+G$ (avec G est de l’ordre du 2%). Le signal de gain Brillouin est alors simplement donné par l’intégrale temporelle du signal de sonde divisé par l’intégrale temporelle du signal de la pompe afin de le normaliser par rapport

aux éventuelles fluctuations d'intensité du laser pompe. On divise également les signaux bruts par l'intensité du laser sonde, qui dépend légèrement du courant d'alimentation de la diode laser. Pour chaque valeur du courant de la diode laser, nous calculons ensuite la moyenne et l'écart-type de la différence de fréquence du laser et du signal de gain Brillouin pour obtenir leurs valeurs centrales et leurs incertitudes.

3.2.7 Ordres de grandeur

3.2.7.1 Ordre de grandeur du gain

A partir de la mesure de la puissance moyenne du faisceau pompe en entrée et en sortie de l'échantillon, on détermine l'intensité moyenne au niveau du point de focalisation : $\langle P \rangle \simeq 1$ mW. Par ailleurs, la largeur temporelle du laser de pompage (FWHM) est $\tau_{\text{pulse}} = 170$ ns, et la fréquence de répétition est $f_r = 10$ Hz. On en déduit une puissance instantanée $P_{\text{inst}} = \frac{\langle P \rangle}{f_r \tau_{\text{pulse}}} \simeq 550$ W. D'autre part, le facteur d'amplification Brillouin dans l'acétone à température ambiante est $g_\infty = 0,2 \cdot 10^{-9} \text{m.GW}^{-1}$. Le facteur de gain Brillouin est donné par $G = g_\infty IL = g_\infty \frac{P_{\text{inst}}}{\pi w_1^2} 2w_1 \sim 5$ ‰, ce qui est proche du gain Brillouin obtenu expérimentalement, de l'ordre de 2 ‰ (les signaux de retour Brillouin ont une amplitude allant jusqu'à ~ 3 mV proche de la résonance, tandis que la composante continue du signal, d'amplitude 1,7 V). L'écart entre ces deux évaluations du gain Brillouin est sans doute dû aux simplifications liées au calcul du gain Brillouin (qui ne prend pas en compte le profil d'intensité gaussien dans le calcul du recouvrement des deux faisceaux, ce qui conduit à surévaluer la longueur effective d'interaction).

3.2.7.2 Ordre de grandeur de l'élévation de température

On évalue l'élévation de température dû à la focalisation du faisceau pompe de puissance instantanée $P_{\text{inst}} \simeq 550$ W dans l'échantillon d'acétone. Nous avons déterminé le coefficient d'absorption de l'acétone $\alpha_{\text{abs}}(1064 \text{ nm})$ à la longueur d'onde $\lambda = 1064$ nm et à la température de la pièce à partir de la transmittance de l'échantillon. On a $\alpha_{\text{abs}}(1064 \text{ nm}) = \ln(I_{\text{entrée}}/I_{\text{sortie}})/l_0 \simeq 0,5 \text{ m}^{-1}$ avec $I_{\text{entrée}}$ et I_{sortie} l'intensité du laser pompe en entrée et en sortie de l'échantillon, et l_0 la longueur de l'échantillon (on a pris soin de retrancher l'effet des fenêtres optiques en effectuant une mesure avec une cellule vide). En considérant un élément de fluide, la variation d'énergie interne due à l'absorption est donnée par $dU/dt = \alpha_{\text{abs}} L P_{\text{inst}}$ et $L \sim 2w$. On peut d'autre part exprimer la variation d'énergie interne de l'élément de fluide sondé : $dU = c_{p,m} \rho (2w)^3 dT$ avec $(2w)^3$ le volume de la lentille thermique (volume de recouvrement des faisceaux), $c_{p,m}$ la capacité thermique massique de l'acétone à pression constante et ρ sa densité. On prend pas en compte la diffusion thermique, négligeable à l'échelle de temps considérée ($\tau_{\text{pulse}} \sim 170$ ns). Par intégration on obtient l'élévation de température $\Delta T = \alpha_{\text{abs}} L \frac{E}{c_{p,m} \rho (2w)^3} \sim 30$ mK.

Cette élévation de température a une influence négligeable sur la vitesse du son : à pression atmosphérique on a $dv/dT \sim 4 \text{ m.s}^{-1}\text{K}^{-1}$ [Iago2009]. La variation de vitesse Δv associée à l'élévation de température est donc de $0,12 \text{ m.s}^{-1}$ (soit une variation relative de 10^{-4}), et conduit à un décalage de la fréquence Brillouin de l'ordre de 100 kHz, plus faible que l'incertitude de mesure de l'ordre du MHz.

Remarque : nous avons évoqué dans la section 2.2.1 la possibilité d'un couplage lumière-matière par électrostriction ou par **absorption**. Si ces deux processus interviennent, le gain

Brillouin est donné par : $G = (g_\infty I_1 - \alpha_{\text{abs}})L$ [damzen2003]. Typiquement dans l'expérience on a d'une part $\alpha_{\text{abs}} = 0,5 \text{ m}^{-1}$ et d'autre part $g_\infty = 0,2 \text{ m.GW}^{-1}$, $P = 500 \text{ W}$ et $w_1 = 15 \text{ }\mu\text{m}$. Donc $g_\infty I_1 = g_\infty P / (\pi w_1^2) \sim 140 \text{ m}^{-1} \gg \alpha_{\text{abs}}$. L'absorption (qui peut provoquer une dissymétrie au niveau des raies Brillouin) est donc ici négligeable et n'a pas d'influence sur les spectres mesurés.

3.2.7.3 Ordre de grandeur de la déviation du faisceau

On modélise la lentille thermique créée par le faisceau pompe par une lentille cylindrique de rayon de courbure w_1 et d'indice $n + \Delta n$, où n est l'indice optique de l'acétone et Δn le changement d'indice induit par l'élévation locale de la température. Notre sensibilité dans l'alignement des faisceaux est de l'ordre de plusieurs microns. Ainsi, si le faisceau sonde est décalé du centre du faisceau pompe de typiquement $\delta = 5 \text{ }\mu\text{m}$ (voir Fig.3.8), il sera dévié, après la cellule d'acétone, d'un angle $\Delta\theta \sim 2 \frac{n}{n_{\text{air}}} \frac{\Delta n}{n} \frac{\delta}{w_1}$. Afin d'évaluer Δn , nous utiliserons la valeur du coefficient $\frac{dn}{dT} = -5,4 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$, obtenue à la longueur d'onde 632,8 nm et à la température 30°C [beysens1977], que nous supposons rester très proche de celle attendue dans les conditions de notre expérience (1064 nm, 21°C). Pour une élévation de température $\Delta T = 30 \text{ mK}$, on obtient $|\Delta n| = 1,6 \cdot 10^{-5}$ et $\Delta\theta \sim 1 \cdot 10^{-5} \text{ rad}$, ce qui résulte en un décalage du faisceau de $\Delta x \sim 1 \text{ }\mu\text{m}$ sur la photodiode de détection. Un tel décalage (en considérant le recouvrement d'un faisceau gaussien de col $w \simeq 15 \text{ }\mu\text{m}$ sur un capteur de rayon $R = 40 \text{ }\mu\text{m}$) est suffisant pour expliquer l'ordre de grandeur des variations d'intensité typiquement observée.

3.3 Résultats expérimentaux et discussion

On représente sur la Fig.3.10 la mesure de $g(\Omega)$ de l'acétone liquide à température ambiante. Comme attendu, le gain Brillouin est négatif pour $\Omega < 0$ et positif pour $\Omega > 0$. Même avec d'importants signaux de fond inhérents à notre configuration, le rapport signal-sur-bruit du spectre Brillouin est satisfaisant. L'effet de ces fluctuations est un décalage vertical global de $g(\Omega)$ de l'ordre de 10 a.u. (unités arbitraires).

Nous avons ajusté les spectres par une fonction lorentzienne :

$$g(\Omega) = g_\infty \frac{(\Gamma_B/2)^2}{(\Omega - \Omega_B)^2 + (\Gamma_B/2)^2} + g_1 \quad (3.1)$$

avec Ω_B la fréquence angulaire centrale, Γ_B la largeur totale à mi-hauteur, g_∞ le gain au centre de la raie, g_1 une constante due principalement aux signaux parasites de fond dû à la diffusion du laser de pompage et discutés dans la section précédente. Les valeurs des paramètres d'ajustement sont données dans le Tableau 3.1. Le chi-carré réduit $\chi_{\text{red}}^2 \sim 1$ garantit que l'Éq.(3.1) est un modèle valide pour la fonction d'ajustement.

3.3.1 Fréquence Brillouin dans l'acétone

Les valeurs obtenues pour la fréquence angulaire centrale Ω_B (2,144 GHz et 2,143 GHz) peuvent être comparées à d'autres valeurs de fréquence Brillouin mesurées dans l'acétone à pression et température ambiantes. À l'aide d'un spectromètre SBG utilisant des lasers continus, Ratanaphruks *et al.* mesurent dans l'acétone à température et pression ambiante une fréquence Brillouin $\Omega_B/2\pi = 5,05 \pm 0,01 \text{ GHz}$, en utilisant des lasers de longueur d'onde 632,8 nm et un

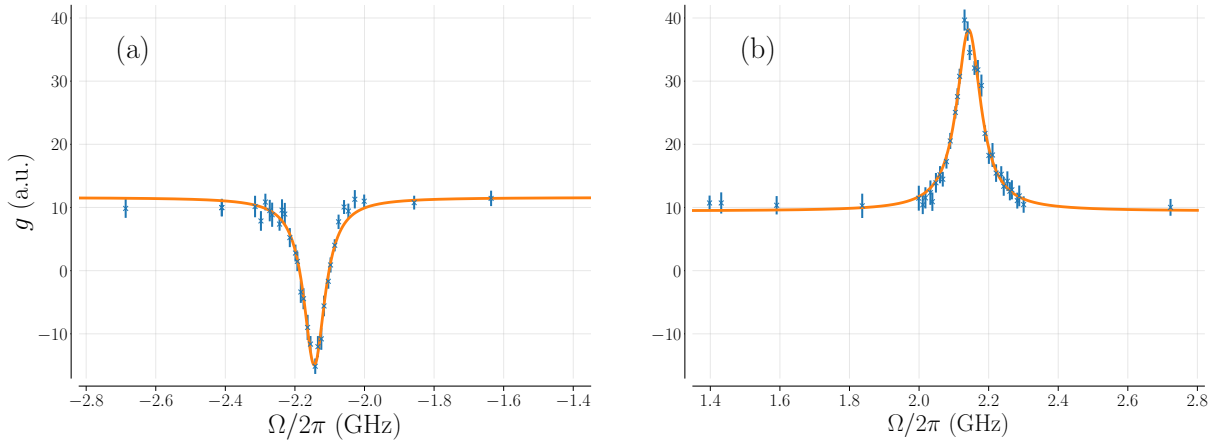


FIG. 3.10 Spectre Brillouin stimulé de l’acétone liquide à température ambiante, mesuré dans un domaine spatio-temporel confiné ($30 \mu\text{m}$, 170 ns). (a) : $\Omega < 0$; (b) : $\Omega > 0$. Croix : données expérimentales et barres d’erreur correspondantes; courbe pleine : ajustement selon l’Éq.(3.1). La longueur d’onde optique centrale des lasers de pompe et de sonde est de 1064 nm et leur angle de croisement est de $\sim 90^\circ$.

angle de diffusion de $\sim 178^\circ$ [ratanaphruks1991]. Si on utilise l’Éq.(2.2) pour transposer le résultat de Ratanaphruks *et al.* à notre longueur d’onde laser centrale (1064 nm) et à un angle de diffusion de 90° , la fréquence de Brillouin correspondante est de $\Omega_B/2\pi = 2,124 \pm 0,004 \text{ GHz}$. En procédant de la même manière avec les résultats des expériences utilisant la diffusion Brillouin spontanée ou la SBS en configuration génératrice, on trouve : $2,12 \text{ GHz}$ [pohl1970, denariez1968], $2,14 \text{ GHz}$ [cummins1966]. Eastman *et al.* [eastman1969] ont mesuré la dépendance en température de la fréquence Brillouin de l’acétone liquide. Pour $\lambda = 1064 \text{ nm}$ et $\theta = 90^\circ$, elle est de -11 MHz/K autour de 20°C . Toutes les mesures mentionnées sont en accord avec une définition de 2°C de la “température ambiante”. Une autre source de dispersion des résultats expérimentaux est la

	$\Omega < 0$	$\Omega > 0$
$ \Omega_B^{\text{exp}} /2\pi \text{ (GHz)}$	$2,144 \pm 0,001$	$2,143 \pm 0,001$
$\Gamma_B^{\text{exp}}/2\pi \text{ (MHz)}$	75 ± 4	84 ± 5
$g_1 \text{ (a.u.)}$	$11,6 \pm 0,4$	$9,4 \pm 0,5$
$ g_\infty \text{ (a.u.)}$	$26,5 \pm 0,8$	$28,7 \pm 0,9$
χ_{red}^2	$0,94$	$1,13$

TABLE 3.1 Paramètres d’ajustement (Éq.(3.1)) pour le gain Brillouin mesuré dans l’acétone liquide. χ_{red}^2 est le chi-carré réduit associé à l’ajustement.

dépendance de la fréquence de Brillouin avec l'angle de diffusion (20 MHz/° à 90° et 1064 nm). Ainsi, un angle de 91° (cohérent avec notre estimation de θ de l'ordre de quelques degrés) suffit également à expliquer le faible écart entre notre mesure et les mesures effectuées par ces différentes équipes.

3.3.2 Largeur Brillouin dans l'acétone

3.3.2.1 Largeur Brillouin obtenue et comparaison avec des expériences précédentes

Ratanaphruks *et al.* donnent pour l'acétone à température ambiante $\Gamma_B/2\pi = 260 \pm 10$ MHz [ratanaphruks1991]. Or, d'après l'hydrodynamique classique, la largeur de la raie de Brillouin a une dépendance quadratique en Ω_B [damzen2003]. La transcription de la largeur de raie Brillouin de 260 MHz à la longueur d'onde et à la géométrie de notre laser donne une largeur de raie Brillouin de 47 MHz. De même, si on considère les mesures de Γ_B par d'autres expériences, on trouve : 38 MHz [pohl1970] et 37 MHz [denariez1968]. La précision sur ces mesures est de l'ordre de plusieurs MHz, soit la résolution spectrale de leurs instruments. Ces mesures sont en désaccord assez clair avec la largeur de raie que nous mesurons, qui vaut 80 MHz (voir Tab.3.1). Ceci nous a conduit à mettre en évidence un élargissement des raies d'origine géométrique, lié à la dispersion locale du vecteur d'onde au sein de la région d'interaction.

Remarque : cet écart ne peut être dû à une erreur sur la valeur de l'angle de croisement θ : Γ_B varie seulement de quelques centaines de kilohertz lorsque θ varie de quelques degrés.

3.3.2.2 Effet lié à la divergence des faisceaux

Grubbs *et al.* ont étudié la dépendance angulaire de la largeur de raie Brillouin mesurée Γ et ont proposé la formule suivante pour en rendre compte [grubbs1992] :

$$\Gamma = \sqrt{\Gamma_{\text{laser}}^2 + \Gamma_{\text{ang}}^2 + \Gamma_B^2} \quad (3.2)$$

où Γ_B est la largeur Brillouin naturelle, $\Gamma_{\text{laser}}/2\pi \sim 3,5$ MHz est la résolution spectrale du spectromètre (principalement due, dans notre cas, à la largeur spectrale des lasers), et Γ_{ang} une contribution liée à la géométrie de propagation des lasers. Pour des faisceaux gaussiens croisés à l'angle θ , on a d'après Grubbs *et al.* $\Gamma_{\text{ang}} = 4v \cos(\theta/2)/w_{\text{eff}}$, avec v la vitesse du son et $w_{\text{eff}}^2 = (w_1 w_2)^2 / (w_1^2 + w_2^2)$, w_1 et w_2 étant les tailles des lasers. L'origine physique de cet élargissement géométrique provient de la dispersion locale des vecteurs d'ondes des lasers au niveau de la zone d'interaction. Dans notre étude, $w_{\text{eff}} = 11 \mu\text{m}$ et $\theta \simeq 90^\circ$, ceci conduit à $\Gamma_{\text{ang}}/2\pi = 50$ MHz. D'autre part, $\Gamma_{\text{laser}}/2\pi = 3,5$ MHz et $\Gamma_B/2\pi \sim 40$ MHz. On trouve ainsi, par la formule de Grubbs : $\Gamma \sim 64$ MHz. L'effet lié à la divergence des faisceaux est donc un effet qui augmente significativement la largeur des raies. Ce calcul, effectué dans le cadre de faisceau purement gaussiens, ne suffit pas à expliquer la largeur de raie mesurée (80 MHz) mais suggère que cet effet participe, au moins pour une part importante, à cet élargissement. Nos investigations expérimentales dans l'hélium tendront à confirmer l'existence de cet effet dans l'élargissement des raies Brillouin.

Conclusion

Nous avons réalisé un spectromètre Brillouin impulsif dans une géométrie de faisceau croisé $\sim 90^\circ$ permettant d'obtenir des spectres avec une résolution spatiale et temporelle de l'ordre de $30 \mu\text{m}$ et 170 ns . Nous avons pu mesurer avec précision la fréquence Brillouin de l'échantillon testé (acétone liquide à température ambiante, dont les propriétés électrostrictives sont proches de celles de l'hélium liquide à basse température), en très bon accord avec des mesures réalisées par Spectroscopie Brillouin Stimulée dans d'autres configurations. Si des traitements spécifiques des données ont été réalisés dans l'acétone (les signaux parasites observés dans l'acétone sont absents dans l'hélium), cette étude nous a également conduit à mettre en évidence un élargissement "géométrique" des raies Brillouin, inhérent à la configuration croisée des lasers du spectromètre (effet que nous rencontrerons également lors de nos mesures dans l'hélium).

Après cette première étape de conception, nous poursuivons par l'étude de l'hélium liquide stable (Chapitre 4), puis de l'hélium métastable (Chapitres 5 et 6).

4 – Spectroscopie Brillouin de l'hélium superfluide stable

Sommaire

4.1 Aspects expérimentaux	67
4.1.1 Cryostat optique	67
4.1.2 Mesure de température et de pression	69
4.1.3 Montage optique pour la spectroscopie Brillouin	69
4.1.4 Croisement des faisceaux et estimation du col des lasers	71
4.2 Spectres Brillouin de l'hélium stable	74
4.2.1 Spectres Brillouin obtenus à $T \sim 1$ K et à $P = P_{\text{sat}}$	74
4.2.2 Mesure de la vitesse du son dans l'hélium	77
4.2.3 Étude de la largeur Brillouin en fonction de la température.	77
4.3 Détermination de l'EoS de l'hélium superfluide stable à 1 K	79
4.3.1 Principe de détermination de l'EoS de l'hélium liquide stable	79
4.3.2 Mesure de la fréquence Brillouin de l'hélium stable à 1 K pressurisé	81
4.3.3 Résultats et discussion	82

Introduction

Après la présentation en section 4.1 des aspects expérimentaux liés à l'étude de l'hélium liquide (cryostat, instruments de mesure, montage optique) et la méthode de superposition des lasers Brillouin, nous présenterons en section 4.2 les spectres Brillouin obtenus dans l'hélium 4 superfluide **stable** pour des températures allant de 0,9 K à T_λ à pression de vapeur saturante. Nous déterminons la vitesse du premier son de l'hélium 4 superfluide à partir de ces spectres, et nous comparons ces résultats aux valeurs de vitesse déjà mesurée dans l'hélium stable, ce qui permet de valider notre technique de mesure. Enfin, en section 4.3, nous présentons les résultats

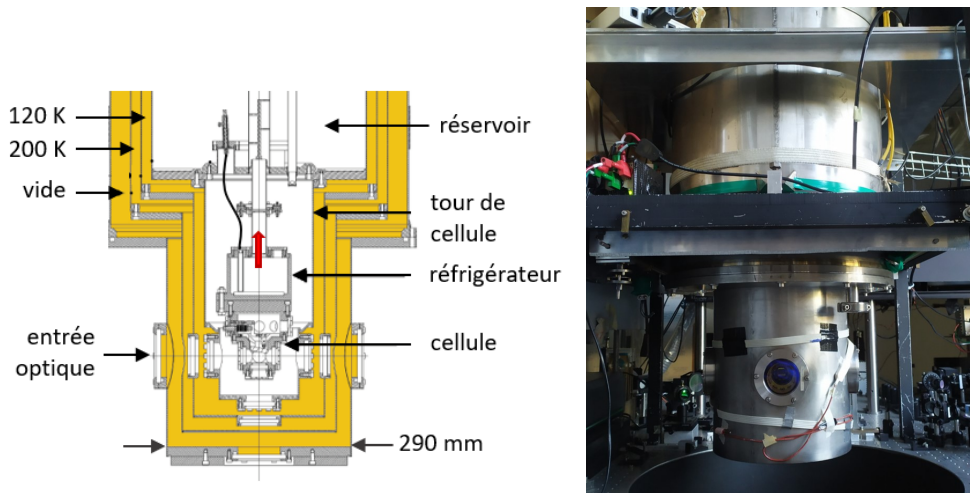


FIG. 4.1 Gauche : Schéma de la partie basse du cryostat : l'hélium liquide étudié est situé dans la cellule (image : Réf.[melich2009]). Le diamètre de la partie basse est de 290 mm. Droite : photographie récente du cryostat (mars 2022).

de mesure de la fréquence Brillouin dans l'hélium à $T \sim 1$ K pour des pressions allant de la pression de vapeur saturante ($P_{\text{sat}} \sim 10 \text{ Pa} \simeq 0$) à 10 bar. Ceci permet de déterminer l'équation d'état (EoS) de l'hélium superfluide stable.

4.1 Aspects expérimentaux

4.1.1 Cryostat optique

L'hélium est obtenu en phase liquide à l'aide du cryostat conçu par l'équipe en 2004, dont nous renvoyons au manuscrit de thèse de Mathieu Melich pour plus de détails[melich2009]. Un schéma et une photographie du cryostat sont montrés sur la Fig.4.1. Le cryostat dispose de cinq ouvertures optiques (angle d'ouverture de 25°), permettant des accès optiques à la cellule selon la direction verticale et selon deux directions orthogonales dans le plan horizontal.

Afin de garantir une isolation thermique vis-à-vis du rayonnement, les cryostats à ouverture optique sont usuellement conçus avec une "garde d'azote", qui est un compartiment rempli d'azote à pression de vapeur saturante entre la cellule centrale et la paroi extérieure du cryostat. Cette garde d'azote constitue ainsi un écran thermique à 77 K. En revanche, la présence de ce compartiment induit des vibrations (liées à l'ébullition de l'azote).

Le cryostat de l'équipe est de conception différente : il n'y a pas de garde d'azote, et l'isolation vis-à-vis des transferts thermiques radiatifs est réalisée en utilisant plusieurs enceintes intermédiaires, décrites un peu plus loin. La cellule est aussi conçue pour être pressurisée jusqu'à 35 bars, permettant d'étudier les phases solides de l'hélium.

Au centre du cryostat, au-dessus de la cellule, un **réservoir** de 29 litres contient de l'hélium liquide à 4 K utilisé pour le refroidissement du cryostat. Ce réservoir est directement relié au circuit de récupération et de liquéfaction d'hélium du département de physique de l'ENS de Paris. Le réservoir alimente, par l'intermédiaire d'un fin capillaire, une enceinte plus petite, le **réfrigérateur**, suspendue au réservoir. Le réfrigérateur peut être refroidi en-dessous de 4 K à

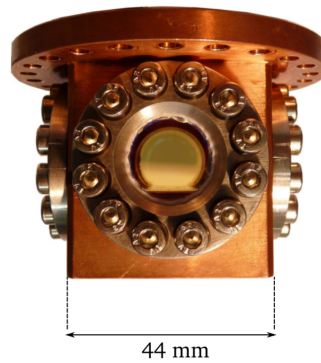


FIG. 4.2 Photographie de la cellule, compartiment situé au centre du cryostat et contenant l'hélium liquide étudié.

l'aide d'un système de pompage : l'hélium contenu dans le réfrigérateur est pompé et vaporisé par un système de trois pompes¹, entraînant ainsi une diminution de la température du réfrigérateur.

La **cellule**, qui est un compartiment indépendant, est fixée sous le réfrigérateur, et est en contact thermique avec lui. Une photographie est donnée sur la Fig.4.2. Elle contient l'hélium liquide utilisé pour les recherches expérimentales, qui contrairement à l'hélium contenu dans le réservoir, est directement issu d'une bouteille d'hélium gazeux et est préalablement filtré. Le filtrage est réalisé comme suit : avant de pénétrer dans la cellule, l'hélium gazeux qui sort de la bouteille passe par un piège à charbon actif refroidi à l'azote liquide ("piège à azote"), ce qui permet d'en éliminer les impuretés (les autres gaz éventuellement présents dans l'hélium se condensent et sont piégés par le filtre).

Les pertes thermiques par rayonnement et par conduction entre la cellule et l'extérieur sont limitées à l'aide de plusieurs écrans consécutifs. Une première enceinte autour de la cellule, le "**tour de cellule**", isole la cellule et le réfrigérateur par un premier "vide"². Cette enceinte, thermalisée à 4,2 K par le réservoir, constitue un premier écran thermique. Un vide secondaire est réalisé dans une deuxième enceinte contenant **deux écrans** en cuivre qui, doublés de plusieurs dizaines de couches de *Mylar* aluminisé froissé, constituent des écrans thermiques supplémentaires (à 120 K et 200 K)

Le refroidissement du cryostat nécessite l'utilisation de 100 litres d'hélium liquide, versés directement dans le réservoir, jusqu'à ce que le réservoir et le tour de cellule atteignent 4,2 K. Un gaz d'échange est préalablement introduit dans le tour de cellule (200 mbar de Néon à 300 K) et permet un refroidissement plus efficace de la cellule en permettant un échange thermique par conduction jusqu'à 18 K, en-dessous desquels le Néon se solidifie. La thermalisation de la cellule s'achève par la conduction thermique à travers le capillaire qui relie le réfrigérateur au réservoir.

Une fois refroidi, le cryostat a une autonomie de 60h, ce qui permet un fonctionnement en continu en remplissant le réservoir 3 fois par semaine (\simeq 35 litres d'hélium liquide par transfert). Les pertes sont principalement dues aux transferts radiatifs résiduels et à la conduction thermique le long du col auquel sont suspendus le réfrigérateur et la cellule.

1. une pompe Roots (*Adixen Roots RSV 301B*) en amont de deux pompes à deux étages 2 montées en parallèle (*Adixen 2033SD et Alcatel 2030H*)

2. L'enceinte est à la pression de vapeur saturante du néon à 4,2 K.

4.1.2 Mesure de température et de pression

Plusieurs types de thermomètres sont utilisés selon la plage de température étudiée. Des thermomètres à résistance de platine³ disposés sur les différents écrans du cryostat sont utilisés entre 400 K à 20 K et permettent un suivi de la température du cryostat lors du refroidissement. Des capteurs à résistance de carbone⁴ sont ensuite utilisés entre 20 K et jusqu'à 4,2 K. La mesure des résistances de platine et de carbone est effectuée à l'aide d'un pont de mesure *AVS 46 (R.V-Elektronikka)*. En-dessous de 4,2 K, deux résistances de Germanium⁵, fixés au fond du réfrigérateur et au fond de la cellule, sont utilisées. Leur résistance est mesurée à l'aide d'un contrôleur de température⁶, qui permet également d'asservir la température du réfrigérateur à l'aide d'une résistance chauffante et d'une boucle de rétroaction PID. L'incertitude sur la température mesurée est de l'ordre de 10 mK.

La mesure de pression est effectuée à l'aide d'un transmetteur de pression⁷ situé en amont de la ligne d'alimentation en hélium de la cellule. Ce capteur mesure à température ambiante la pression de l'hélium gazeux en équilibre hydrostatique avec l'hélium contenu dans la cellule. La différence de pression hydrostatique due à la colonne d'hélium gazeux entre le transmetteur et la cellule étant négligeable par rapport aux pressions usuelles, la valeur mesurée s'identifie à celle de la cellule. Ce manomètre peut effectuer une mesure de pression de 0 à 30 bar, avec une précision de ~ 1 mbar (données constructeur).

4.1.3 Montage optique pour la spectroscopie Brillouin

Les lasers utilisés sont identiques à ceux utilisés lors des tests dans l'acétone (et présentés en section 2.4.3), à la différence du fait que la durée d'impulsion du laser pompe a légèrement changé entre temps⁸ : la durée de l'impulsion FWHM (Full Width at Half Maximum) est $\tau_{\text{pulse}} \sim 190$ ns (au lieu de 170 ns lors de nos études dans l'acétone). Cela n'affecte que très peu nos estimations du facteur d'amplification Brillouin attendu dans l'hélium en régime transitoire. Pour le choix de la puissance utilisée pour le laser de pompage, un compromis est trouvé entre un facteur de gain Brillouin plus élevé à haute puissance, et les signaux parasites dus aux réflexions résiduelles au sein de la cellule. On choisit pour ces raisons d'utiliser typiquement une puissance instantanée de 3,5 kW pour le laser de pompage, ce qui correspond à une énergie d'environ 0,7 mJ par impulsion. Le laser sonde est utilisé à puissance maximale, soit ~ 20 mW.

Le montage optique utilisé est très similaire à celui utilisé dans l'échantillon d'acétone, à la différence du fait que les lasers sont cette fois focalisés dans la cellule au sein du cryostat, comme représenté sur la figure Fig.4.3. Les faisceaux laser pompe et sonde sont divisés en deux faisceaux secondaires. L'un de ces faisceaux secondaires est utilisé pour mesurer la différence de fréquence entre les deux lasers en les faisant battre sur la photodiode (b) (largeur de bande de 5 GHz). Une autre fraction du faisceau de pompe est captée par une photodiode rapide couplée en courant continu (photodiode (c)) afin de mesurer la puissance du faisceau de pompe.

3. *Correge PT-1000 PTFD102B Sensor Type*

4. *Allan-Bradley Carbon resistor, 22 et 100 Ω*

5. *Lakeshore GR-200A-250-0,5D*

6. *Lakeshore Temperature Controller Model 332*

7. *Keller Séries 35 X*

8. Il s'agit d'un des signes du très mauvais état de santé de notre laser, qui n'a cessé de se dégrader au cours de ma thèse...

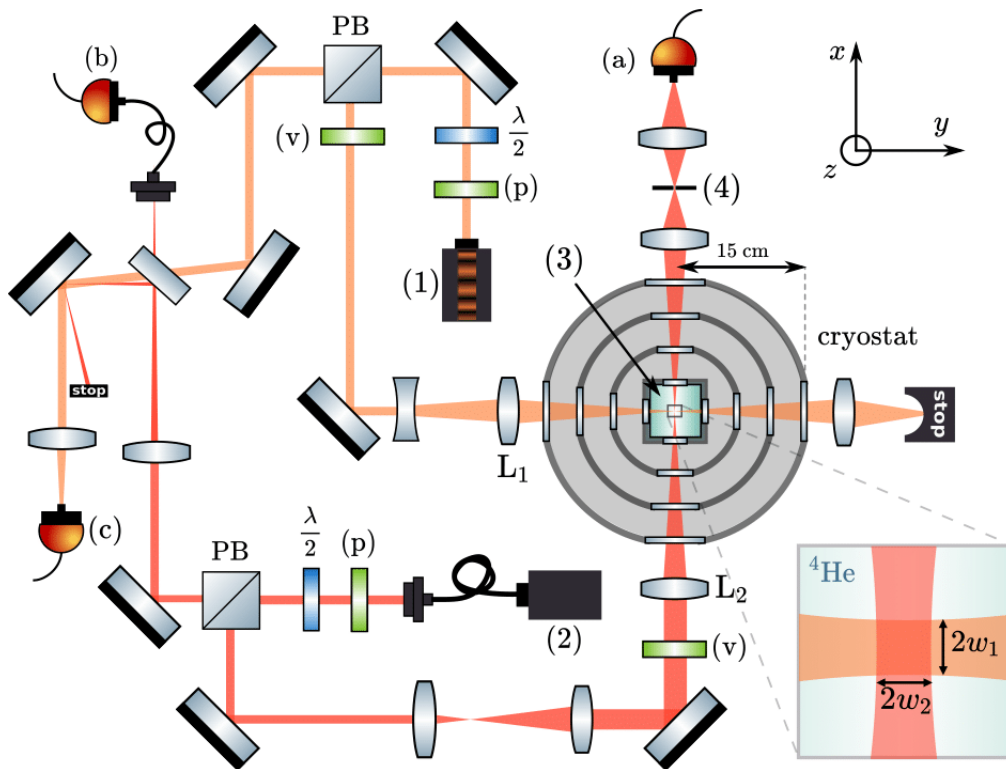


FIG. 4.3 Schéma du banc optique. (1) : Laser de pompe (Nd :YAG pulsé); (2) : Laser sonde (diode laser continue accordable en fréquence); (3) : Cellule contenant de l'hélium liquide entre 0,9 K et T_λ ; (4) sténopé ($\text{\O}50 \mu\text{m}$); (a), (b) et (c) : Photodiodes du signal de transmission de la sonde, de la pompe et du signal de battement; (p) : Polariseur linéaire; (v) : Polariseur vertical; $\lambda/2$: lame demi-onde; PB : Cube séparateur polarisant; L_1 , L_2 : lentilles de 150 mm, 200 mm.

Les deux autres faisceaux secondaires, tous deux polarisés verticalement, sont focalisés dans la cellule expérimentale et superposés à un angle de croisement $\theta \sim 90^\circ$ à l'aide de lentilles convergentes de 150 mm et 200 mm de distance focale. Les faisceaux pompe et sonde sont préalablement élargis à l'aide d'un jeu de lentilles convergentes et divergentes (représentées sur la Fig.4.3) afin de faire correspondre leurs diamètres au foyer. L'intensité de la sonde est mesurée par une photodiode (a).

Signaux parasites : Afin de réduire les signaux parasites sur la photodiode (a) dus aux réflexions résiduelles du faisceau pompe sur certains éléments du banc optique, le faisceau sonde est filtré spatialement après avoir traversé le cryostat à l'aide d'une lentille de distance focale $f' = 100 \text{ mm}$ et d'un sténopé de rayon $50 \mu\text{m}$. Contrairement aux mesures effectuées dans l'acétone, nous n'avons pas été gênés dans nos mesures par des signaux parasites stochastiques (diffusion du faisceau pompe par des hétérogénéités liées à l'échauffement du milieu).

En revanche, un autre signal parasite a été observé. La composante continue du signal du laser sonde recueillie par la photodiode-sonde (a) est de l'ordre de 7,5 V, et les signaux Brillouin attendus sont de l'ordre de la dizaine de mV. Nous avons observé dans l'hélium superfluide, une fluctuation du fond continu de la diode de l'ordre de la dizaine de mV, à des échelles de temps de l'ordre de plusieurs dizaines de μs . Ces variations lentes du signal semblent être dues à une légère déviation des faisceaux par les vibrations mécaniques du cryostat (vibrations dues aux

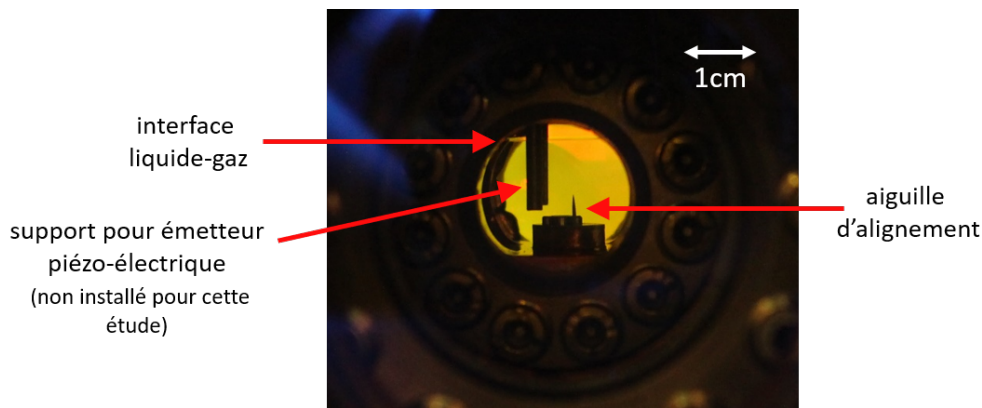


FIG. 4.4 Photographie de la cellule à travers les hublots du cryostat. À l'intérieur de la cellule, on distingue en haut du hublot le ménisque de l'interface liquide-gaz de l'hélium. Deux barres en haut à gauche servent de support pour placer un émetteur piézoélectrique au sein de la cellule. Cet émetteur n'est pas présent dans les expériences présentées dans ce chapitre, il ne sera monté que pour les expériences décrites aux Chap.5 et Chap.6 dans l'hélium métastable. Une tête d'aiguille, servant de tête d'alignement pour les lasers, et dont la base a pour diamètre $\sim 0,7$ mm, est soudée sur une pièce mécanique directement fixée au fond de la cellule.

pompes qui permettent d'atteindre des températures plus faibles que 4 K). Nous avons filtré électroniquement le signal avec un filtre passe-haut RC de fréquence de coupure de 50 kHz. Ce filtre élimine également la composante continue du signal de la sonde.

Dans l'hélium normal ($T > T_\lambda$), nous observons également des fluctuations du signal sonde, mais dont l'amplitude est beaucoup plus importante que dans le cas superfluide, si bien qu'il est difficile de s'en affranchir même avec des techniques de filtrage du signal. Ces fluctuations apparaissent lorsque le faisceau pompe est envoyé dans le cryostat, et elles perdurent pendant plusieurs minutes (même après arrêt du faisceau pompe). Nous pensons que ces fluctuations sont d'origine thermique : le faisceau pompe chauffe légèrement les hublots de la cellule contenant l'hélium. Cela chauffe le fluide, qui est mis en mouvement par convection. Ces mouvements de fluide dévient le faisceau sonde, ce qui change l'injection dans la photodiode-sonde (a). En phase superfluide, les transferts thermiques étant beaucoup plus efficaces (propagation de la chaleur par le second son), ces effets ne sont pas perceptibles. Nous nous sommes ainsi consacrés exclusivement dans la suite à l'étude de l'hélium superfluide ($T < T_\lambda$).

4.1.4 Croisement des faisceaux et estimation du col des lasers

Tête d'alignement : Une tête d'alignement constituée d'une pointe d'aiguille d'un diamètre de base de 0,69 mm a été fixée au fond de la cellule expérimentale, comme montré sur la photographie de la Fig.4.4. Elle a été utilisée à la fois pour superposer facilement les faisceaux de la pompe et de la sonde, et pour mesurer leurs diamètres respectifs. Les systèmes de lentilles utilisés pour focaliser chaque laser sont montés sur des platines de translation de telle sorte que le point de focalisation de chaque faisceau peut être déplacé dans les trois directions de l'espace. En interceptant le faisceau laser avec la tête d'alignement et en étudiant le signal de transmission, nous avons pu évaluer le diamètre du faisceau sonde en utilisant la méthode standard dite de la "lame de rasoir" [arnaud1971].

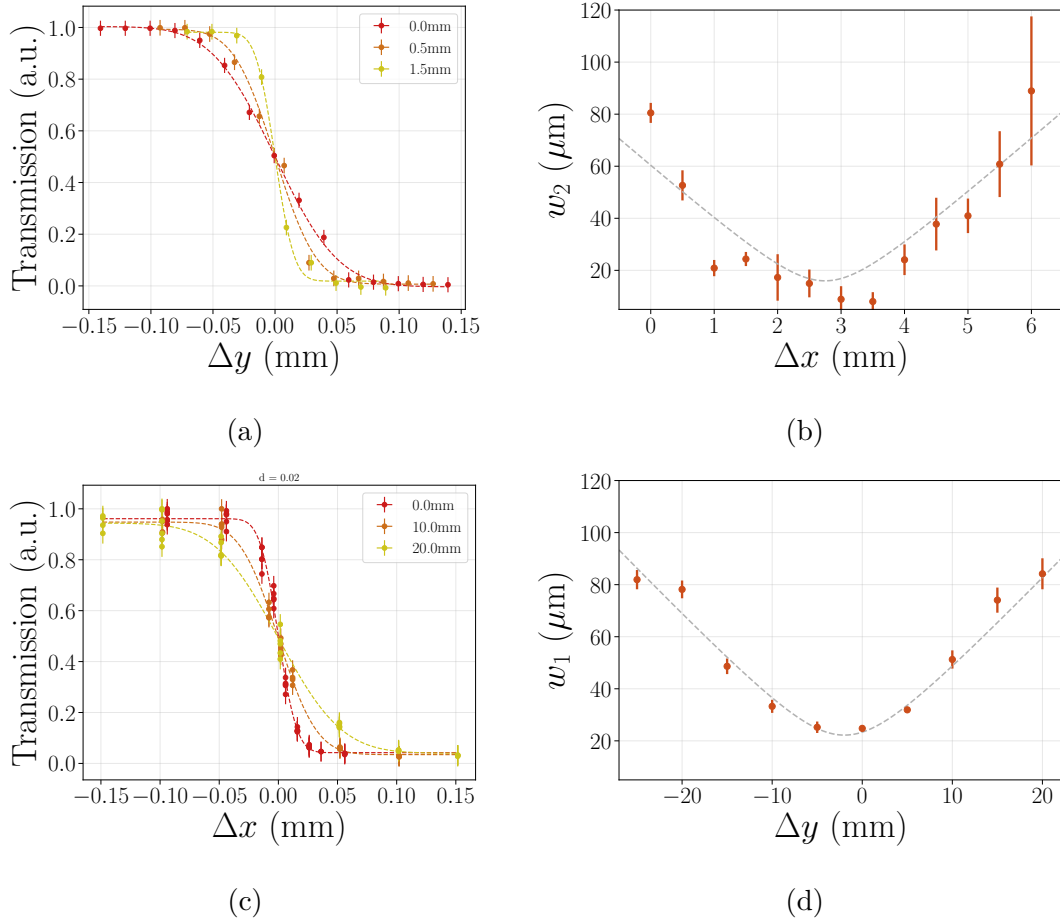


FIG. 4.5 (a) (resp. (c)) : mesure de la transmission du faisceau sonde (resp. pompe) partiellement intercepté par la tête d'alignement lors de la translation de la lentille de focalisation L_2 (resp. L_1 et la lentille divergente située en amont) selon y (resp. x). Trois courbes de l'intensité transmises sont données pour trois positions différentes Δx (resp. Δy) de la lentille L_2 (resp. de la lentille L_1 et de la lentille divergente située en amont). Les axes x et y sont donnés sur la Fig.4.3. (b) (resp. (d)) : mesure du col du faisceau sonde (resp. pompe) au sein de la cellule en fonction de la position de la lentille de focalisation (resp. la lentille divergente située en amont de la lentille de focalisation L_1) selon l'axe x (resp. y). Un ajustement (voir texte) permet de remonter au col du faisceau au foyer.

Estimation du col du faisceau sonde : La position de la lentille L_2 peut être modifiée à l'aide de platines de translation (graduées tous les 20 μm) dans les trois directions de l'espace. Le faisceau sonde se propage selon la direction x , voir Fig.4.3. On note Δx , resp. Δy , la position de la lentille selon l'axe x , resp. y . La position verticale (axe z) est fixée. À Δx fixé on translate L_2 selon la direction y . Pour certaines positions Δy , le faisceau est partiellement intercepté par la tête d'alignement. La transmission est mesurée en prenant le rapport des intensités transmise et incidente, moyennées sur plusieurs secondes pour un meilleur rapport signal-sur-bruit. Le col du laser sonde (associé à une valeur donnée de Δx) est noté $w_2(\Delta x)$. On détermine $w_2(\Delta x)$ en utilisant la formule suivante qui relie l'intensité transmise I_t en fonction de Δy :

$$I_t(\Delta y) = I_1 + I_0 \cdot \text{erf}(\sqrt{2}(\Delta y - y_0)/w) \quad (4.1)$$

où erf est la fonction d'erreur, I_0 est l'intensité incidente, I_1 un signal de fond dû à de la lumière parasite, et y_0 la position du bord de l'aiguille lorsque le faisceau est coupé de moitié. Cette formule, valide pour un faisceau gaussien intercepté par un demi-plan en négligeant la diffraction, reproduit bien nos données expérimentales et permet un ajustement satisfaisant. La valeur de $w_2(\Delta x)$ est alors déterminée pour une position Δx donnée. On répète la mesure pour différentes valeurs de Δx . Plusieurs courbes de $I_t(\Delta y)$, obtenues à trois positions Δx différentes, sont représentées sur la Fig.4.5a. Nous répétons cette mesure, et obtenons une courbe $w_2(\Delta x)$, représentée sur la Fig.4.5b. On ajuste le profil $w_2(\Delta x)$ par la formule suivante, valide pour un faisceau Hermite-Gaussien :

$$w_2(\Delta x) = w_{2,0} \sqrt{1 + M_2^2 (\Delta x - x_0)^2 / x_r^2} \quad (4.2)$$

avec $x_r = \pi w_0^2 / \lambda$ la longueur de Rayleigh du faisceau, x_0 la position de la lentille lorsque le faisceau est coupé de moitié, M_2 le facteur de qualité du faisceau, égal à 1 pour un faisceau purement gaussien.

Une étude préliminaire, par laquelle nous avons étudié le diamètre des faisceaux sonde et pompe au cours de leur propagation, nous a conduit à déterminer que ce coefficient M_2 est bien environ égal à 1 pour les faisceaux pompe et sonde avec les éléments optiques utilisés. On fixe $M_2 = 1$ lors de l'ajustement. Les paramètres d'ajustement sont alors $w_{i,0}$ et x_0 . Nous obtenons un ajustement satisfaisant pour le faisceau sonde ($\chi_{\text{red}}^2 = 8,7$), avec $w_{2,0} = 16(3) \mu\text{m}$ et $x_0 = 2,8(3) \text{mm}$. Cependant, proche de x_0 , nos points de mesures semblent répartis plutôt en-dessous de la courbe. Tout d'abord, notre résolution spatiale en y étant de 20 μm (ce qui correspond à l'écart entre deux graduations de la platine de translation) les barres d'erreur des mesures de w_2 réalisées pour $\Delta x = 3 \text{mm}$ et $\Delta x = 3,5 \text{mm}$ sont sous-évalués. De plus, la lentille de focalisation est une lentille non-correctée des aberrations sphériques, d'où l'écart à la loi donnée par l'Éq.(4.2).

Estimation du col du faisceau pompe : La même procédure est suivie pour déterminer le col du faisceau pompe au sein du cryostat. Nos degrés de liberté sont cependant différents : la lentille de focalisation L_1 permet de translater le faisceau dans les directions x et z , mais pas selon y . La translation du faisceau selon y est assurée par la lentille divergente en amont de L_1 . Δy correspond à la graduation lue sur la table de translation de cette lentille divergente. Sur la Fig.4.5(c) nous présentons la transmission du faisceau en fonction de la position Δx des lentilles divergente et de focalisation (les deux lentilles sont translattées de manière solidaire selon x). Le faisceau pompe est impulsif : la transmission est calculée en prenant le rapport de l'intégrale

du signal transmis et du signal incident sur la durée de l'impulsion. Les données sont prises pour des pas de 10 μm selon x , ce qui conduit à des erreurs plus petites sur w_1 . Les mesures de $w_1(\Delta y)$ sont présentées sur la Fig.4.5(d). L'ajustement est cette fois réalisé avec la fonction :

$$w_1(\Delta x) = w_{1,0} \sqrt{1 + M_2^2 a^2 (\Delta y - y_0)^2 / y_r^2} \quad (4.3)$$

où y_0 est la position de la lentille L_1 lorsque le faisceau est coupé à moitié, y_r est la distance de Rayleigh, $M_2 = 1$, et a est un coefficient sans unité. Le coefficient a est un coefficient multiplicatif qui relie la translation longitudinale de la lentille divergente et la translation longitudinale du foyer du faisceau laser au sein du cryostat (relation linéaire). Les paramètres d'ajustement sont $w_{1,0}$, y_0 et a . On obtient un ajustement satisfaisant des résultats ($\chi_{\text{red}}^2 = 2,9$), et on trouve $w_{1,0} = 22(2) \mu\text{m}$, $y_0 = -2,0(5) \text{ mm}$ et $a = 0,24(2) \text{ mm.mm}^{-1}$. Le coefficient a obtenu est cohérent avec des simulations de propagation gaussienne du faisceau pompe. L'ajustement semble ici plus satisfaisant que dans le cas du faisceau sonde. Cela s'explique par le fait que la lentille de focalisation du faisceau pompe est une lentille corrigée des aberrations sphériques.

Bilan : Ces mesures nous ont permis de connaître la position du foyer de chaque faisceau lumineux au sein de la cellule et de les superposer sur la pointe de la tête d'alignement. Une fois cette superposition réalisée, les faisceaux sont translatés de 100 μm vers le haut afin d'éviter toute réflexion résiduelle sur l'aiguille. Leur volume de recouvrement est d'environ $(2w_{1,0})(2w_{2,0})^2 \sim 35^3 (\mu\text{m})^3$. C'est l'échelle spatiale sur laquelle les propriétés acoustiques de l'hélium 4 liquide seront sondées.

4.2 Spectres Brillouin de l'hélium stable

4.2.1 Spectres Brillouin obtenus à $T \sim 1 \text{ K}$ et à $P = P_{\text{sat}}$

Résultats expérimentaux : Les spectres SBS sont obtenus comme suit. Pour différentes valeurs du courant d'alimentation du laser sonde, correspondant à différentes valeurs de $\Omega = \omega_1 - \omega_2$, la composante AC de l'intensité temporelle du signal sonde est enregistrée par la photodiode (a). Trois enregistrements à $T = 0,98 \text{ K}$ sont représentés sur la Fig.4.6. Sur la Fig.4.6a, on a $\Omega \sim \Omega_B$ et un pic positif d'une durée de 190 ns est détecté. Ce pic est la signature de l'effet d'amplification Brillouin et correspond au transfert d'énergie du champ haute fréquence (en l'occurrence la pompe de pulsation ω_1) vers le champ à basse fréquence (en l'occurrence la sonde de pulsation ω_2). Le transfert d'énergie ne se produit naturellement que lorsque les faisceaux pompe et sonde interagissent, *i.e.* pendant la durée d'impulsion $\tau_{\text{pulse}} \sim 190 \text{ ns}$. La figure 4.6c correspond à $\Omega \approx -\Omega_B$. Dans ce cas, l'énergie est transférée de la sonde (champ haute fréquence) à la pompe (champ basse fréquence), ce qui conduit à un pic négatif. Dans la Fig.4.6b, les lasers sont très désaccordés de la fréquence de Brillouin ($|\Omega| \neq \Omega_B$), seul un petit signal parasite provenant des réflexions du faisceau de pompe dans la cellule est détecté. L'amplitude de ce signal de fond est indépendante de Ω et se traduit simplement par un décalage vertical global des spectres Brillouin.

Gain Brillouin expérimental : Les signaux Brillouin typiquement obtenus ont une amplitude de l'ordre de la dizaine de mV, et le fond continu du signal sonde a une valeur de 7,5 V. Le gain Brillouin mesuré expérimentalement est donc $G_{\text{exp}} \sim 1$ à 2 %. On peut comparer

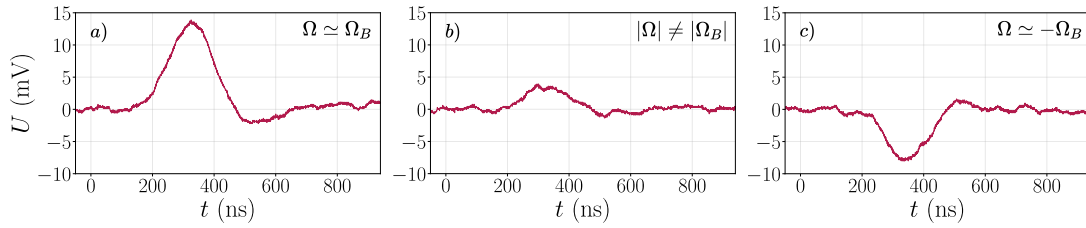


FIG. 4.6 Enregistrements du signal de la sonde de la photodiode à couplage AC (a) à $T = 0,98$ K dans le cas : a) $\Omega \approx \Omega_B$, b) $\Omega \neq \Omega_B$, c) $\Omega \approx -\Omega_B$. Le pic positif en a) et le pic négatif en c) sont des signatures de l'effet de gain (perte) SBS. Le petit pic positif en b) est un signal de fond et est indépendant de Ω .

cette valeur de gain à celle attendue à partir de notre estimation du facteur d'amplification Brillouin de l'hélium à 1 K, établie au Chap.2. À 1 K, on s'attend à $\Gamma_B/2\pi \simeq 0,4$ MHz (voir section 2.4.1), *i.e.* $\tau_{\text{ph}} \simeq 0,35$ μs . D'autre part on a $\tau_{\text{pulse}} = 190$ ns (durée FWHM des impulsions du laser pompe). On a donc $\tau_{\text{ph}}/\tau_{\text{pulse}} \simeq 1,9$. Pour un tel rapport $\tau_{\text{ph}}/\tau_{\text{pulse}}$, on s'attend à $g_{\text{eff}}/g_{\infty} = 0,24$ (2.3.3). D'autre part, à 1 K nous avons estimé $g_{\infty} \simeq 3,6$ m.GW $^{-1}$ (voir section 2.4.2). Cela conduit à $g_{\text{eff}} = 0,85$ m.GW $^{-1}$. Le gain attendu est ensuite donné par $G = g_{\text{eff}} I_1 L$ avec L la longueur de la zone d'interaction et I_1 l'intensité du laser pompe. Les lasers sonde et pompe sont croisés à 90° , avec un col au foyer $w \sim 20$ μm . On a donc $L \sim 2w$ et $I_1 \sim P_1/(\pi w^2)$ avec P_1 la puissance du laser pompe. Dans les expériences de diffusion Brillouin stimulée, nous n'utilisons qu'une fraction de la puissance maximale (3,5 kW) du laser pompe : $P_1 = 1,8$ kW. (Des puissances plus élevées n'augmentent par le rapport signal-sur-bruit de la mesure, car les signaux parasites de fond dus à la diffusion du laser pompe sont d'amplitude proportionnelle à la puissance du laser pompe). On obtient alors $G \sim 5\%$. Le gain attendu est donc beaucoup plus élevé que celui mesuré dans nos expériences. Nous n'avons pas trouvé la raison pour laquelle un tel écart est observé. L'élargissement des raies Brillouin de l'hélium dû à la dispersion locale des vecteurs d'onde des deux lasers (que nous discuterons plus loin) peut expliquer, au moins pour une partie, le fait que le gain observé soit beaucoup plus faible qu'attendu.

Détermination du facteur d'amplification Brillouin : Nous définissons le facteur d'amplification Brillouin expérimental $g(\Omega)$ en unités arbitraires comme l'intégrale temporelle de ces signaux divisée par l'intensité de la pompe afin de la normaliser par rapport aux fluctuations d'intensité du laser : $g(\Omega) \propto (\int U(t)dt)/U_p$ avec $U(t)$ le signal temporel du faisceau sonde après passage à travers la cellule, et U_p l'amplitude du signal du faisceau pompe. En appliquant cette définition aux différents signaux obtenus pour diverses valeurs de Ω , on obtient plusieurs points de mesures $(\Omega, g(\Omega))$. On calcule ensuite une valeur moyenne de $g(\Omega)$ par tranche de largeur 1 MHz (inférieure à la résolution spectrale de 3,5 MHz du battement des lasers). Les barres d'erreur sont données par l'écart-type associé au jeu de données moyennées. Deux spectres Brillouin de l'hélium 4 liquide à $T=0,98$ K (pression de vapeur saturante) sont présentés dans la Fig.4.7 pour $\Omega < 0$ et $\Omega > 0$.

Largeur des raies Brillouin : La largeur de raie est de l'ordre de 10 MHz (FWHM). Ceci est beaucoup plus grand que la largeur de raie Brillouin naturelle, donnée par $\Gamma_B = 1/\tau_{\text{ph}}$ où τ_{ph} est la durée de vie du phonon. À environ 1 K, Berberich *et al.* ont mesuré $\Gamma_B/2\pi \sim 2,4$ MHz

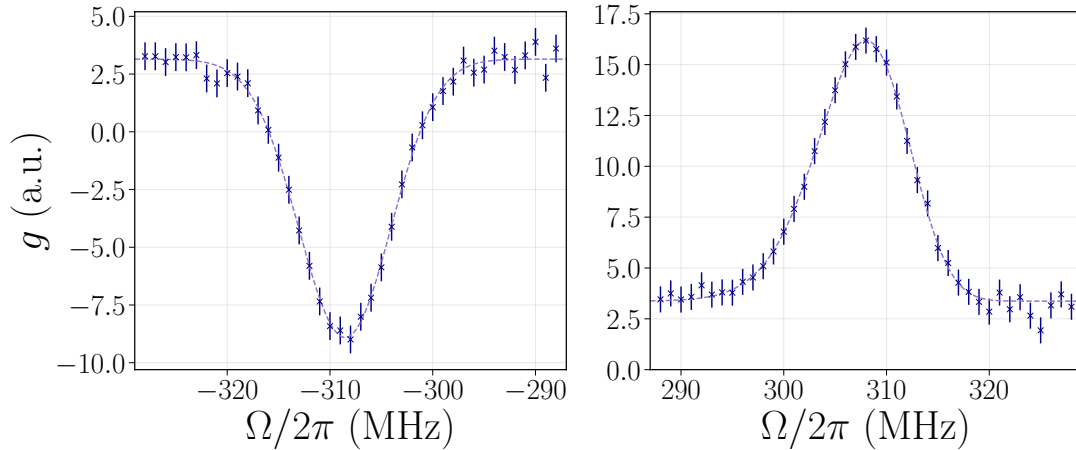


FIG. 4.7 Spectres Brillouin de l'hélium 4 liquide à $T=0,98$ K (pression de vapeur saturante) pour $\Omega < 0$ (gauche) et $\Omega > 0$ (droite). Les points de données ont été ajustés par une fonction asymétrique (voir texte).

pour $\Omega_B/2\pi \sim 700$ MHz [berberich1976]. En faisant l'hypothèse raisonnable d'une dépendance quadratique de l'atténuation du son avec la fréquence (cf sous-section 2.4.1), on peut convertir cette valeur de Γ_B à la valeur attendue dans nos conditions expérimentales (phonons excités à environ $\Omega_B/2\pi \sim 300$ MHz). On trouve $\Gamma_B/2\pi \sim 0,4$ MHz, ce qui est largement inférieur à la largeur de raie observée de 10 MHz. Pour comprendre cette largeur, il faut également prendre en compte la largeur spectrale des lasers $\Gamma_{\text{laser}} = 3,5$ MHz et la contribution $\Gamma_{\text{ang}} = 4v \cos(\theta/2)/w_{\text{eff}}$ (cf Éq.(3.2)) due à la dispersion des vecteurs d'onde dans la zone d'interaction, avec θ l'angle de croisement des lasers et $w_{\text{eff}}^2 = (w_1 w_2)^2 / (w_1^2 + w_2^2)$. Dans notre configuration avec $\theta \sim 90^\circ$ et $w_{\text{eff}} = 13 \mu\text{m}$, on trouve $\Gamma_{\text{ang}}/2\pi \sim 8,3$ MHz. On rappelle l'É.(3.2) : $\Gamma = \sqrt{\Gamma_{\text{laser}}^2 + \Gamma_{\text{ang}}^2 + \Gamma_B^2}$. On a alors $\Gamma/2\pi \sim 9$ MHz, proche de ce que nous observons réellement.

Forme des raies Brillouin : Étant donné que $\Gamma_{\text{laser}}, \Gamma_{\text{ang}} \gg \Gamma_B$ et que le spectre des lasers est gaussien, nous avons initialement ajusté les spectres par un profil gaussien de fréquence angulaire centrale Ω_{B+} (Ω_{B-}) et de FWHM Γ_+ (Γ_-), où \pm désigne la partie positive ($\Omega > 0$) et la partie négative ($\Omega < 0$) du spectre. Ce faisant, nous avons toutefois observé une différence systématique dans les valeurs obtenues pour Ω_{B+} et Ω_{B-} . Elle est typiquement de l'ordre de $(\Omega_{B+} - \Omega_{B-})/2\pi \sim 1$ MHz, ce qui est assez important compte-tenu des barres d'erreur sur chaque ajustement indépendant ($\Delta\Omega_{B\pm}/2\pi \sim 0,2$ MHz). Une analyse attentive des ajustements gaussiens montre qu'ils ne parviennent pas à déterminer précisément la fréquence centrale puisque la forme de la raie est légèrement asymétrique. De meilleurs résultats peuvent être obtenus par un ajustement par un profil gaussien asymétrique, tel qu'utilisé couramment dans les expériences de spectroscopie [stancik2008]. On réalise un ajustement par une gaussienne de largeur à mi-hauteur :

$$\Gamma(\Omega) = \frac{2\Gamma_0}{1 + \exp(a(\Omega - \Omega_B))} \quad (4.4)$$

où le paramètre a est un paramètre qui quantifie l'asymétrie des raies. Grâce à cette méthode, nous avons observé que la fréquence centrale est bien repérée par l'ajustement. Il demeure malgré tout une différence systématique entre les valeurs de $\Omega_{B+}/2\pi$ et $\Omega_{B-}/2\pi$, de l'ordre de 0,4 MHz,

ce qui est de l'ordre des barres d'erreur. Les raisons physiques liées à cette asymétrie des raies pourraient être intéressantes à explorer, mais cela n'entre pas directement dans la ligne de notre travail.

4.2.2 Mesure de la vitesse du son dans l'hélium

Nous avons mesuré les spectres Brillouin de l'hélium 4 superfluide à sa pression de vapeur saturante pour des températures comprises entre 0,96 K et 2,17 K. Nous définissons la pulsation de Brillouin mesurée comme : $\Omega_B = (\Omega_{B+} + \Omega_{B-})/2$.

En utilisant l'Éq.(2.2) $\Omega_B = 2n\omega \frac{v}{c} \sin(\theta/2)$, la mesure de $\Omega_B(T)$ donne la vitesse du son à la pression de vapeur saturante à condition que θ et l'indice de réfraction $n(T)$ soient connus. L'indice de réfraction est calculé à partir des valeurs tabulées de la densité à la pression de vapeur saturante [donnelly1998] et à l'aide de la formule de Lorentz-Lorenz, donnée par :

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = \frac{4\pi}{3} \frac{\alpha}{M} \rho \quad (4.5)$$

où M est la masse molaire de ${}^4\text{He}$ (4,0026 g/mole [ncbi2020]) et $\alpha = 0,1236(3) \text{ cm}^3/\text{mole}$ (obtenue à partir de la Réf.[harris1970]) est la polarisabilité molaire de l'hélium à $\lambda = 1064 \text{ nm}$ que nous supposons indépendante de la pression pour l'hélium 4 liquide à 1 K [abraham1970]. Dans la limite $n \sim 1$, qui est une très bonne approximation pour l'hélium liquide, cette relation devient simplement :

$$n^2(\rho) = 1 + \beta\rho \quad (4.6)$$

$$\text{avec } \beta = \frac{4\pi\alpha}{M}.$$

La valeur de θ a été déterminée à partir d'un point de mesure de Ω_B à $T = 0,96 \text{ K}$ et $P = P_{\text{sat}}$ et à partir de la valeur tabulée correspondante de la vitesse du son ($237,9(1) \text{ m.s}^{-1}$ à P_{sat} et à $0,96 \text{ K}$ [donnelly1998]). Cela donne $\theta = 84,1(1)^\circ$. D'autre part, nous avons mesuré la longueur d'onde des lasers avec un lambdamètre étalonné : $\lambda_0 = 1064,46(2) \text{ nm}$. On peut ainsi calculer v :

$$v(T) = \frac{\lambda}{4\pi} \frac{\Omega_B(T)}{n(T) \sin(\theta/2)} \quad (4.7)$$

La Fig.4.8 montre la vitesse du premier son déduite de nos mesures SBS à pression de vapeur saturante entre 0,87 K et 2,17 K. On y reporte également les valeurs tabulées de v [donnelly1998] ainsi que des mesures de v effectuées par diffusion Brillouin spontanée [st.peters1970, pike1969]. Comme on peut le voir sur la figure, toutes ces mesures sont en accord, avec un écart relatif de l'ordre de 0,2%.

4.2.3 Étude de la largeur Brillouin en fonction de la température.

La largeur des spectres Brillouin est représentée sur la Fig.4.9. Nous montrons les largeurs de raie $\Gamma_+/2\pi$ et $\Gamma_-/2\pi$ mesurées à fréquence positive (points bleus) et à fréquence négative (points rouge). Nous comparons ces résultats à la largeur attendue d'après la formule de Grubbs (Éq.(3.2)) (trait plein noir). Les incertitudes associées, qui proviennent de l'incertitude sur la détermination des cols des lasers w_1 et w_2 , sont matérialisées par les deux courbes en pointillé gris (la zone entre

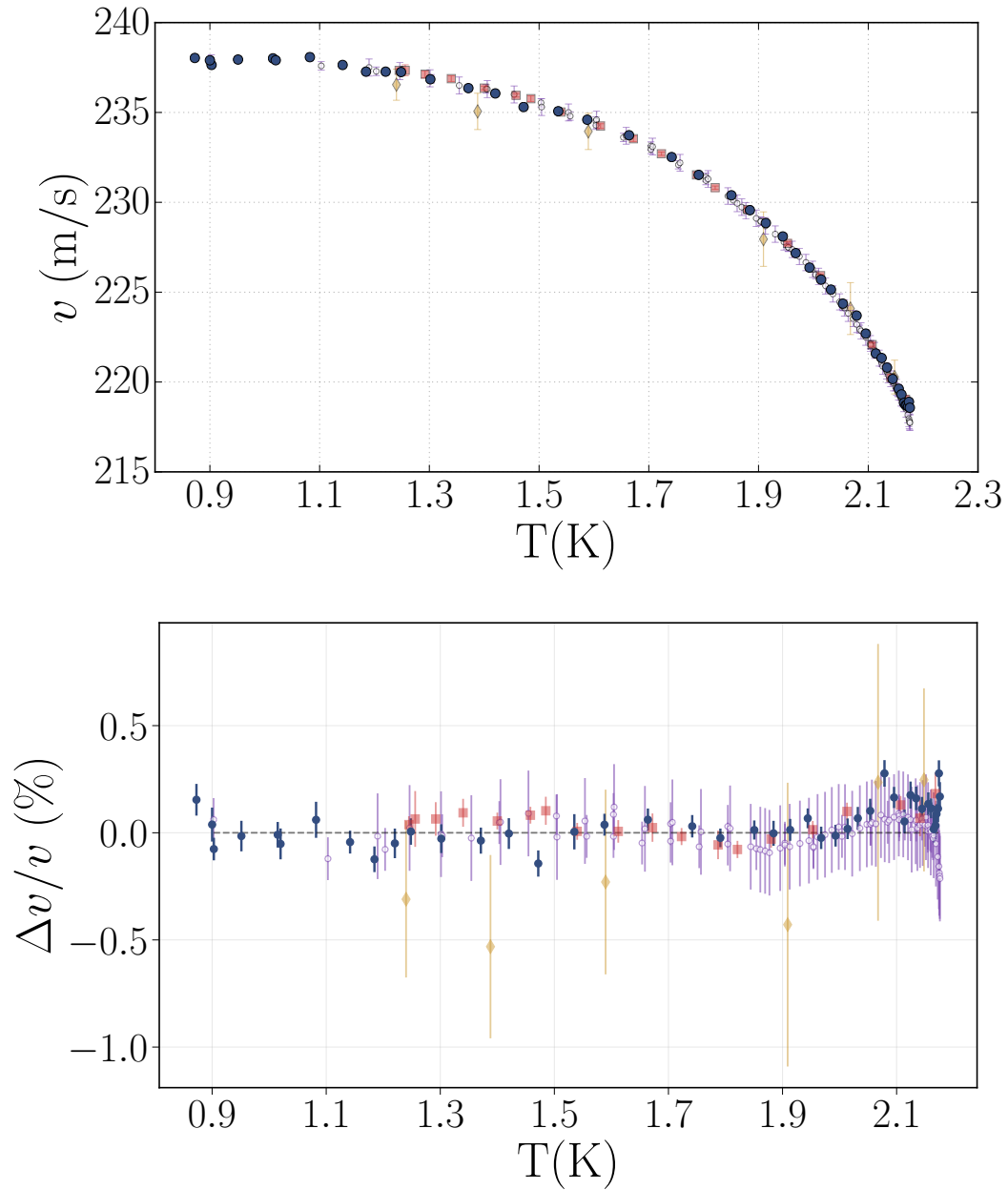


FIG. 4.8 Haut : Vitesse du premier son dans l'hélium 4 superfluide en fonction de la température. Cercles pleins : nos mesures, effectuées par Spectroscopie Brillouin Stimulé (les barres d'erreur sont plus petites que les symboles). Cercles ouverts : valeurs tabulées de v [donnelly1998]. Carrés et diamants : mesures effectuées par spectroscopie Brillouin spontanée, Réfs. [st.peters1970] et [pike1969] respectivement. Bas : les valeurs tabulées de v [donnelly1998] sont interpolées par un polynôme d'ordre 3. On représente les écarts relatifs des mesures de la figure du haut par rapport à cette fonction d'interpolation.

ces deux courbes correspond à un intervalle de confiance à 1σ). En jaune, nous représentons la contribution due à la largeur géométrique seule, et en rouge clair la contribution supplémentaire lorsqu'on prend également en compte la largeur spectrale des lasers. La contribution due à la

largeur naturelle des raies Brillouin est négligeable. Ainsi, on ne peut pas extraire d'information sur le temps de vie des phonons (*i.e.* sur l'atténuation du son dans l'hélium) à partir de la mesure des largeurs de raie.

Nos points sont majoritairement dans l'intervalle de confiance à 1σ de la courbe théorique. Cependant, ces points sont situés majoritairement au-dessus de la courbe théorique. Nous remarquons que cet écart est supprimé en prenant une valeur $w_{\text{eff}} = 12,1 \mu\text{m}$, ce qui est compatible avec la barre d'erreur obtenue sur w_{eff} : $w_{\text{eff}} = 13(2) \mu\text{m}$. De plus, nous pouvons observer que la tendance de nos points suit celle de la courbe théorique (lente décroissance jusqu'aux environs de T_λ). Cette dépendance avec la température provient majoritairement de la dépendance de la vitesse du son avec la température.

Il semble que l'augmentation rapide de la largeur des raies proches de T_λ , non prévue en ne prenant en compte que l'élargissement géométrique et la largeur des lasers, soit due à une augmentation de la largeur de raie Brillouin. Cela est cohérent avec le fait que l'absorption du son subit une augmentation importante proche de T_λ [eselson1974].

Toutes ces considérations semblent conforter l'idée que l'élargissement observé n'est pas seulement dû à la résolution spectrale de l'expérience, mais qu'un élargissement d'origine géométrique intervient.

4.3 Détermination de l'EoS de l'hélium superfluide stable à 1 K

4.3.1 Principe de détermination de l'EoS de l'hélium liquide stable

Dans l'hélium 4 superfluide, la vitesse du premier son v est donnée par la formule suivante, qui prend en compte le couplage avec le second son [wilks1967] :

$$v = \sqrt{\gamma\chi_T/\rho} \left(1 + \frac{1}{2}(\gamma - 1)v_{20}^2/(v_0^2 - v_{20}^2) \right) \quad (4.8)$$

avec $\chi_T = \rho(\partial P/\partial\rho)_T$ la compressibilité isotherme, $\gamma = c_P/c_V$ le rapport entre les capacités thermiques à pression constante et volume constant, v_0 et v_{20} les vitesses des premier et second son calculées à partir des équations de propagation du son linéarisées de l'hélium 4, en négligeant les termes de couplage entre le premier et le second son. À 1 K, on a $|\gamma - 1| < 0,0004$ pour P entre 0 et 10 bars [brooks1977]. D'autre part à $T = 0,96$ K, $v_0 \simeq v_1 = 237,9 \text{ m.s}^{-1}$ et $v_{20} \simeq v_2 = 19,66 \text{ m.s}^{-1}$ [donnelly1998]. Le terme de couplage est de l'ordre de $1,4 \cdot 10^{-6}$ en relatif par rapport au premier terme. Il est donc raisonnable de le négliger.

Remarque : il n'y a que proche de T_λ (2 K par exemple) et à pression élevée (10 bars) que $\gamma - 1$ devient significativement plus élevé (de l'ordre de 0,5, cf [brooks1977]). Même avec de telles valeurs, l'importance du second terme n'est que de 2‰ environ.

En négligeant le terme de couplage entre le premier et le second son, on a pour l'hélium superfluide jusqu'à 10 bars :

$$v^2 = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho} \right)_S = \gamma^2 \left(\frac{\partial P}{\partial \rho} \right)_T \quad (4.9)$$

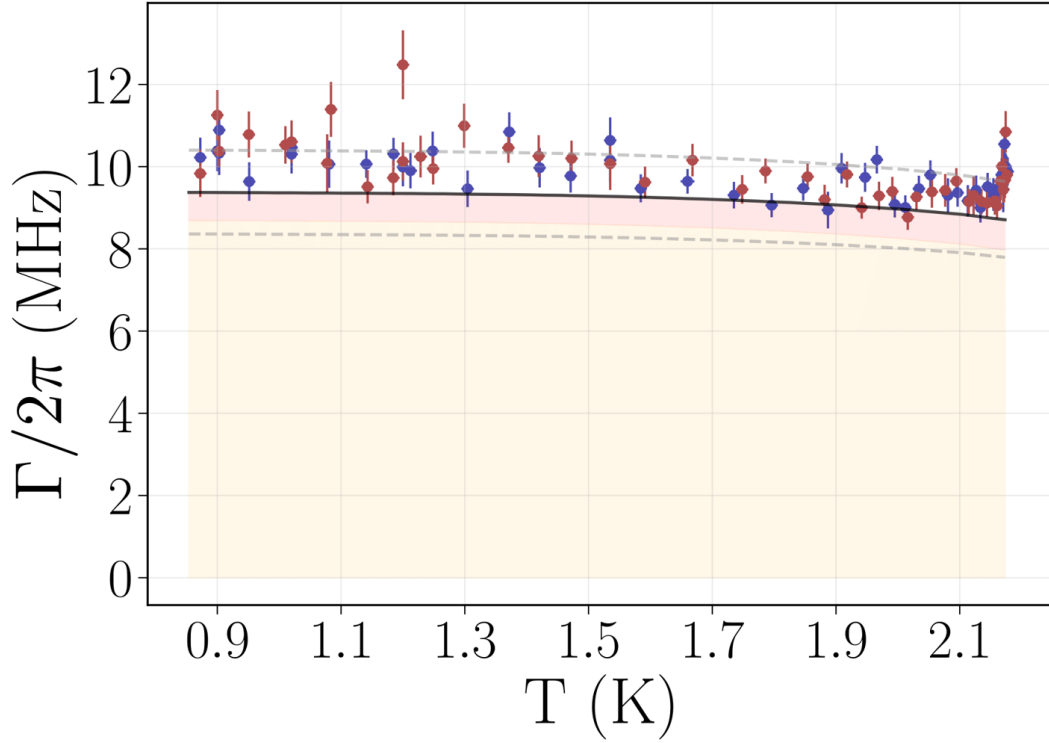


FIG. 4.9 **Points** : largeur de raie (FWHM) des spectres mesurés dans l'hélium par spectroscopie Brillouin stimulée entre 0,87 K et T_λ , pour $\Omega > 0$ (en **bleu**) et $\Omega < 0$ (en **rouge**). La largeur de raie Brillouin attendue d'après la formule de Grubbs (**trait plein noir**) est décomposé en deux contributions : en **jaune** la contribution à la largeur de raie en ne prenant en compte que l'élargissement géométrique, donné par $\Gamma_{\text{ang}}/2\pi = 4v \cos(\theta/2)/(w_{\text{eff}})$, et en **orange** la contribution supplémentaire due à la largeur spectrale des lasers. La contribution due à la largeur naturelle Brillouin est négligeable devant les deux autres. Les deux courbes en **traits pointillés gris** matérialisent la barre d'erreur de la courbe en trait plein noir, provenant majoritairement de l'incertitude sur les cols des deux lasers w_1 et w_2 .

Soit $v \simeq v_T$ avec v_T la vitesse du son isotherme définie comme $v_T \equiv \sqrt{(\partial P/\partial \rho)_T}$. La vitesse du son v est donc proportionnelle à la dérivée de la pression P par rapport à la densité ρ à température fixée. D'autre part, la vitesse du son v apparaît directement dans l'expression de la fréquence Brillouin : $f_B \equiv \Omega_B/2\pi = 2n \frac{v}{\lambda} \sin(\theta/2)$ (Éq.(2.2)). L'indice de réfraction n , qui dépend de ρ , et donc de P , intervient également dans l'expression de f_B . En incluant l'Éq.(4.9) et l'Éq.(6.2) dans l'Éq.(2.2) et en intégrant à température constante T à partir d'un état initial connu (ρ_0, P_0) jusqu'à un état final (ρ, P) , on obtient :

$$\int_{\rho_0}^{\rho} \frac{d\rho'}{n(\rho')^2 \sin^2(\theta(\rho')/2)} = \frac{4}{\lambda_0^2} \int_{P_0}^P \gamma^2(P') \frac{dP'}{f_B^2(P')} \quad (4.10)$$

Les variations de θ avec la pression P peuvent être estimées grâce aux lois de Snell-Descartes de la réfraction : $\theta(\rho) = \frac{n(\rho_0)}{n(\rho)}(\theta_0 - \pi/2) + \pi/2$ où $n(\rho)$ est donné par l'Éq.(6.2). Sur le domaine de pression exploré les variations relatives de θ sont inférieures à 0,01%, bien plus petites que la précision avec laquelle nous pouvons déterminer θ_0 (0,1%). Ainsi, on prend $\theta(\rho) = \theta_0$.

4.3.3 Résultats et discussion

L'intégration de l'Éq.(4.10) se fait comme suit. Le membre de gauche est intégré analytiquement :

$$\int_{\rho_0}^{\rho} \frac{d\rho'}{(1 + \beta\rho') \sin^2(\theta_0/2)} = \frac{1}{\sin^2(\theta_0/2)} \ln \left(\frac{1 + \beta\rho}{1 + \beta\rho_0} \right) \quad (4.13)$$

Pour le membre de droite, nous avons préalablement ajusté les données $1/f_B^2(P)$ par une fonction polynomiale en P . Un polynôme d'ordre 3, noté $h(P) = a_0 + a_1P + a_2P^2 + a_3P^3$, donne un ajustement satisfaisant (avec un chi-carré réduit $\chi_{\text{red}}^2 = 1,6$). L'ajustement n'est pas significativement meilleur pour des polynômes d'ordre supérieur. Les valeurs des coefficients trouvés sont $a_0 = 1,0546(7) \cdot 10^{-5} \text{ MHz}^{-2}$, $a_1 = -6,92(5) \cdot 10^{-7} \text{ MHz}^{-2} \cdot \text{bar}^{-1}$, $a_2 = 4,2(1) \cdot 10^{-8} \text{ MHz}^{-2} \cdot \text{bar}^{-2}$, $a_3 = -1,28(7) \cdot 10^{-9} \text{ MHz}^{-2} \cdot \text{bar}^{-3}$. L'EoS est ainsi donnée par :

$$\ln \left(\frac{1 + \beta\rho}{1 + \beta\rho_0} \right) = \left(\frac{4}{\lambda_0^2} \beta \sin^2(\theta_0/2) \right) \int_{P_0}^P h(P') dP' \quad (4.14)$$

En plus des coefficients a_i mentionnés ci-dessus, nous avons utilisé la valeur tabulée de pression $P_0 = 10,4(5) \text{ Pa}$ à $T = 0,960(5) \text{ K}$ [donnelly1998], et $\alpha = 0,1236(3) \text{ cm}^3/\text{mole}$ [harris1970]. Pour chaque valeur de pression P , on calcule $\rho(P)$ à partir de l'Éq.(4.14).

Évaluation des incertitudes : Afin d'évaluer l'incertitude sur notre détermination de la fonction $\rho(P)$, nous avons utilisé une méthode de Monte-Carlo. Nous avons généré, à partir de nos mesures, $N = 5000$ jeux de données où, pour une pression donnée, nous faisons varier aléatoirement la fréquence Brillouin autour de la valeur mesurée expérimentalement selon une distribution gaussienne d'écart-type correspondant à l'incertitude typique sur les mesures. Pour chaque jeu de données ainsi généré aléatoirement, on ajuste $1/f_B^2(P)$ par un polynôme d'ordre 3 dont on détermine les coefficients. Simultanément, tous les paramètres de l'Éq.(4.14) sont également variés aléatoirement en fonction de leurs propres incertitudes. On calcule le membre de gauche de l'Éq.(4.14) de P_0 à une valeur choisie de pression P^* et on résout l'équation pour déterminer la densité $\rho(P^*)$ correspondant à ce jeu de données. L'opération est répétée pour les N jeux de données et l'écart-type des N valeurs obtenues pour $\rho(P^*)$ définit notre barre d'erreur sur $\rho(P^*)$. On répète cette opération en faisant varier P^* de 0 à 10 bar (l'intervalle de pression étudié [0, 10 bar] est séquencé en 3000 éléments).

Résultats : Nos résultats sont présentés sur la Fig.4.10 avec d'autres équations d'états de l'hélium 4 liquide obtenues par d'autres méthodes. Les barres d'erreur des différentes mesures sont imperceptibles à l'échelle du graphique. Boghosian *et al.* ont mesuré la constante diélectrique de l'hélium 4 liquide en fonction de la pression par mesure de la fréquence de résonance d'un oscillateur à relaxation rempli d'hélium liquide [boghosian1966]. En supposant la validité de la relation Clausius-Mosotti pour la plage de pression et de température étudiée, ils ont pu convertir la mesure de la constante diélectrique de l'hélium liquide en une mesure de densité. L'incertitude sur leur mesure de $\rho(P)$ est d'environ 0,1%. Abraham *et al.* ont mesuré, en fonction de la pression, la variation du temps de propagation d'une onde sonore se déplaçant sur une distance de $\sim 1 \text{ cm}$. En supposant que la propagation était isotherme, ils ont pu déterminer l'équation d'état en intégrant la vitesse du son isotherme v_T en fonction de la pression [abraham1970]. Ils ont effectué leurs mesures à $T = 0,1 \text{ K}$ et $T = 0,5 \text{ K}$ et ont obtenu le même résultat dans la limite de la précision de leur mesure (0,01%). Dans cet intervalle de pression et de température, on a

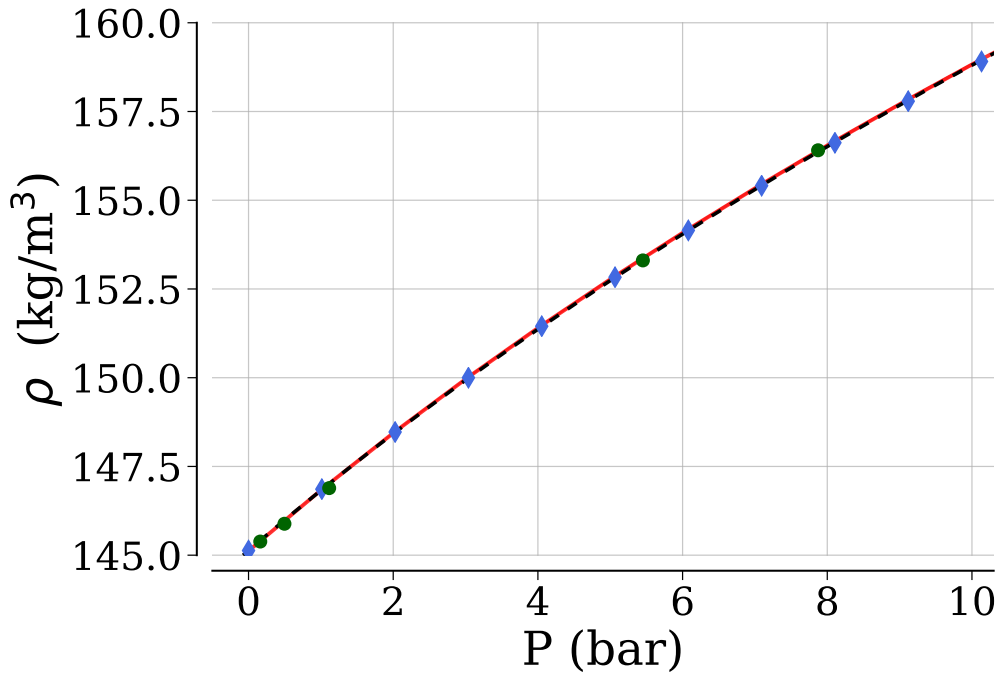


FIG. 4.10 Équation d'état de l'hélium 4 liquide. Ligne rouge solide : EoS issue de nos mesures (à $T = 0,96$ K), diamants bleus : Réf.[[abraham1970](#)] (expériences, 0,1 K et 0,5 K), points verts : Réf.[[boghosian1966](#)] (expériences, 1 K), trait noir pointillé : Réf.[[dalfovo1995](#)] (théorie, 0 K)

$v \simeq v_T$ (car $\gamma = 1$ en très bonne approximation, comme détaillé précédemment). On peut donc comparer nos mesures de vitesse du son v aux mesures de vitesse du son isotherme d'Abraham *et al.*, comme représenté sur la Fig.4.10. Nos mesures sont en accord avec celles d'Abraham *et al.*, bien qu'ayant été effectuées sur des échelles spatiales et temporelles de plusieurs ordres de grandeur inférieures. L'équation d'état théorique de l'hélium 4 liquide à $T = 0$ K calculée par Dalfovo *et al.* [[dalfovo1995](#)] est également présentée sur la Fig.4.10. Dalfovo *et al.* calculent l'EoS de l'hélium liquide en utilisant une méthode fonctionnelle de densité. Comme indiqué en section 1.2.1, rappelons que d'autres méthodes de calcul ont été utilisées pour calculer l'EoS dans la limite de $T \rightarrow 0$ [[boronat1994](#), [bauer2000](#)] et ces méthodes sont toutes en accord avec celle de Dalfovo à 1 % près, mais ne fournissent pas une forme analytique explicite de l'EoS. L'accord entre les différentes mesures et la théorie de Dalfovo *et al.* montre que l'EoS de l'hélium 4 liquide semble être relativement indépendante de la température entre 0 et 1 K [[maris2002](#)].

Écart relatif à la théorie : Pour quantifier davantage l'accord relatif entre ces résultats, nous avons calculé et tracé sur la Fig.4.11 la valeur de $(\rho_m - \rho_d)/\rho_d$ où ρ_m est la valeur de densité d'une mesure donnée et ρ_d la valeur correspondante de la théorie de Dalfovo *et al.* [[dalfovo1995](#)]. Nous n'avons attribué aucune incertitude aux valeurs de ρ_d (aucune incertitude n'est fournie par la Réf.[[dalfovo1995](#)]). Les variations relatives de nos résultats par rapport à la théorie sont représentées en rouge. La région en rouge clair correspond à l'intervalle de confiance à $\pm 1\sigma$ sur nos mesures. On constate que tous les résultats sont cohérents à moins de 0,1%. Si l'on se concentre uniquement sur notre travail et celui d'Abraham *et al.*, on voit que les deux courbes suivent la même tendance par rapport à la théorie et que la différence entre les valeurs centrales ne dépasse pas 0,03%, ce qui correspond à un accord de moins de 2σ entre les deux. Nous observons qu'en

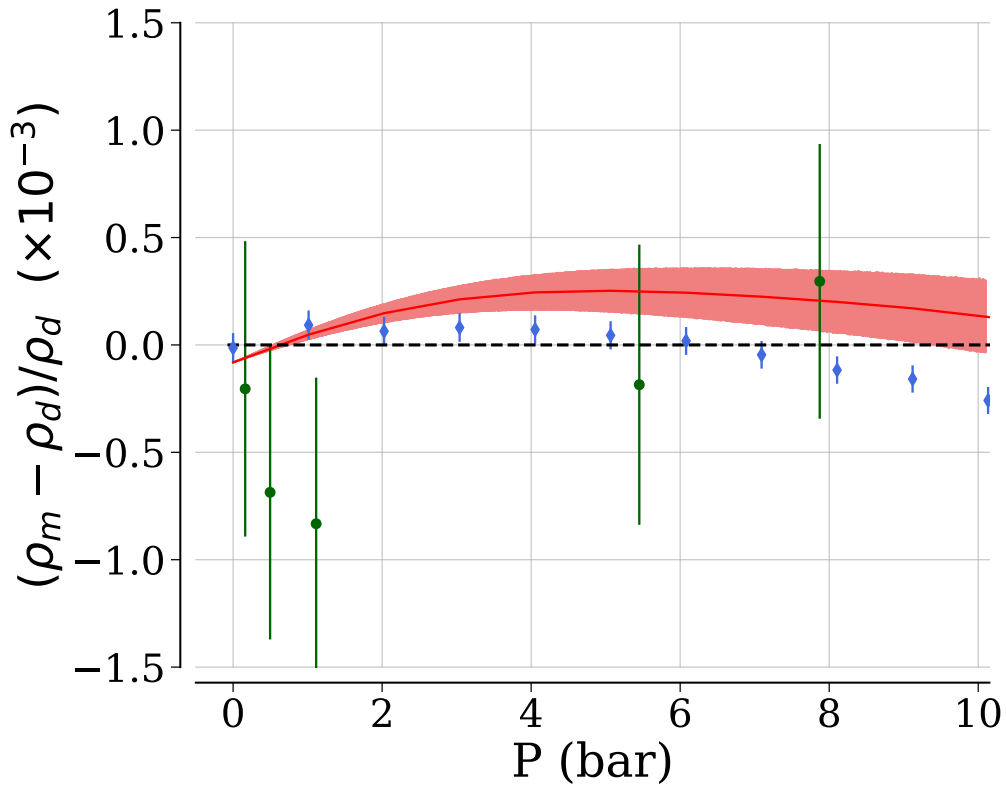


FIG. 4.11 Variations relatives $(\rho_m - \rho_d)/\rho_d$ entre les différentes mesures (ρ_m) et la théorie de Dalfovo *et al.* (ρ_d), voir le texte. Ligne rouge : ce travail, diamants bleus : Ref. [abraham1970], cercles verts : Ref. [boghossian1966]. La ligne zéro en pointillés bleus correspond à la théorie de Dalfovo *et al.* [dalfovo1995].

fixant $\theta_0 = 83,95^\circ$ (qui est une valeur cohérente à 2σ avec notre estimation de θ_0) la ligne rouge passe par toutes les barres d'erreur du travail d'Abraham *et al.*. L'écart entre nos résultats et les valeurs mesurées par Abraham *et al.* peut également provenir d'une dépendance en température de l'EoS (les mesures d'Abraham *et al.* ont été effectuées à 0,1 et 0,5 K, tandis que les nôtres ont été effectuées à 1 K).

Ces résultats montrent que notre mesure optique de l'équation d'état de l'hélium 4 superfluide stable est d'une précision satisfaisante.

Vitesse du son en fonction de la densité : De même que précédemment (section 4.2), les mesures de f_B nous permettent, à partir de la connaissance de θ et de l'indice de réfraction n de l'hélium, de déterminer la vitesse du son. L'indice de réfraction dépend de la densité ρ ($n = 1 + \beta\rho$, relation de Lorentz-Lorenz). On peut utiliser l'EoS $\rho(P)$ que nous venons de calculer pour déterminer l'indice de réfraction n . Ceci permet de déterminer la vitesse du son v . La Fig.4.12 représente l'évolution de la vitesse du son en fonction de la pression dans l'hélium. Les barres d'erreur sont incluses dans les points de mesure. Comme détaillé précédemment, $v \simeq v_T$ dans nos conditions expérimentales d'étude de l'hélium. On représente les points de mesure de la vitesse du son isotherme v_T d'Abraham *et al.* [abraham1970] à 0,1 K et 0,5 K, ainsi que l'ajustement des mesures d'Abraham par la fonction $v_T(P) \propto (P - P_1)^{1/3}$ proposé Maris[maris1989], avec P_1 une constante. Il y a un écart systématique entre nos points de mesure et ceux d'Abraham *et al.*, de

l'ordre de $0,5 \text{ ms}^{-1}$. Ceci est probablement dû à la légère dépendance de la vitesse du son avec la température entre 0 et 1 K, qui est de $0,3 \text{ m.s}^{-1}.\text{K}^{-1}$ [donnelly1998]. On représente également des valeurs de vitesse du son obtenues récemment par Learn *et al.* [?]. Les écarts relatifs par rapport aux mesures d'Abraham sont plus importants. Cela peut être dû au fait que Learn *et al.* ne mesurent pas directement la vitesse du son mais sa primitive : Learn *et al.* mesurent la permittivité diélectrique ϵ_r en fonction de la pression P . En utilisant la relation de Clausius-Mossoti, ils déterminent l'équation d'état $\rho(P)$, à partir de laquelle ils calculent la vitesse du son.

Remarque au sujet de la dispersion du son : Les effets éventuels de dispersion du son doivent être pris en compte pour remonter à l'équation d'état $P(\rho)$. Plusieurs expériences de diffusion Brillouin ont été menées (voir Réfs. [winterling1968, woolf1966, st.peters1970, pike1970]), à des fréquences plus élevées (550 – 750 MHz) et à des températures légèrement plus élevées ($1,2 \text{ K} < T < 2,17 \text{ K}$). Aucune dispersion n'est observée par rapport à des mesures de vitesse du son effectuées à basse fréquence (12 MHz) par mesure du temps de vol d'une impulsion acoustique se propageant au sein de l'hélium liquide [whitney1967]. Même si les expériences de diffusion Brillouin menées à haute fréquence dans l'hélium ont été réalisées à des températures légèrement plus élevées que la nôtre, elles ont été réalisées au niveau du maximum d'atténuation du son à ces fréquences, qui correspond également au maximum attendu pour la dispersion du son. Il est attendu que le maximum de dispersion à 300 MHz soit à une température légèrement inférieure à 1,5 K. Ainsi ces mesures suggèrent l'absence de dispersion dans l'hélium aux fréquences ultrasonores et à la température que nous étudions ($\sim 300 \text{ MHz}$, 1 K).

Largeur des raies Brillouin en fonction de la pression

L'élargissement des raies dû à la configuration géométrique du croisement des lasers, largement dominant dans notre cas comme nous l'avons vu dans la section précédente, est d'environ 8-10 MHz (de 0 à 10 bar). Nous représentons sur la Fig.4.13 la largeur des raies, non pas en fonction de la pression P , mais en fonction de la fréquence Brillouin f_B (qui varie de 307 MHz à 390 MHz pour P entre 0 et 10 bars). Nous ajustons ensuite les données par la formule de Grubbs (cf Éq.(3.2)) :

$$\Gamma/2\pi = \sqrt{(\Gamma_{\text{laser}}/2\pi)^2 + (\Gamma_{\text{ang}}/2\pi)^2 + (\Gamma_B/2\pi)^2} = \sqrt{a + bf_B^2} \quad (4.15)$$

où $a = (\Gamma_{\text{laser}}/2\pi)^2 + (\Gamma_B/2\pi)^2 \simeq (\Gamma_{\text{laser}}/2\pi)^2$ est fixé à 3,5 MHz. Seul b est laissé comme paramètre libre, et vaut en théorie $b = (\lambda f_B / (\pi w_{\text{eff}} \tan(\theta/2)))$. Comme évoqué précédemment, on a fait ici l'hypothèse d'une dépendance quadratique de l'atténuation du son avec la fréquence (cf sous-section 2.4.1). L'ajustement est satisfaisant ($\chi_{\text{red}}^2 = 2,1$ et il y a une bonne répartition des points de part et d'autre de la courbe de tendance), et nous trouvons un coefficient $b = 0,0314(2)$ ce qui permet de remonter à un col effectif $w_{\text{eff}} = 12,0(1) \mu\text{m}$ en accord avec notre estimation de $w_{\text{eff}} = 13(2) \mu\text{m}$, et également en accord avec l'estimation réalisée à partir des données $f_B(T)$ qui conduisaient à une estimation de $w_{\text{eff}} \simeq 12,1 \mu\text{m}$.

Cette nouvelle étude de la largeur des raies Brillouin conforte l'hypothèse de l'élargissement des raies due à la géométrie croisée de notre spectromètre. S'affranchir de cet élargissement et diminuer la résolution spectrale $\Gamma_{\text{laser}}/2\pi$ nous permettrait d'étudier les coefficients d'atténuation du son de l'hélium superfluide. Nous avons, en parallèle de ce travail de thèse, initié un projet

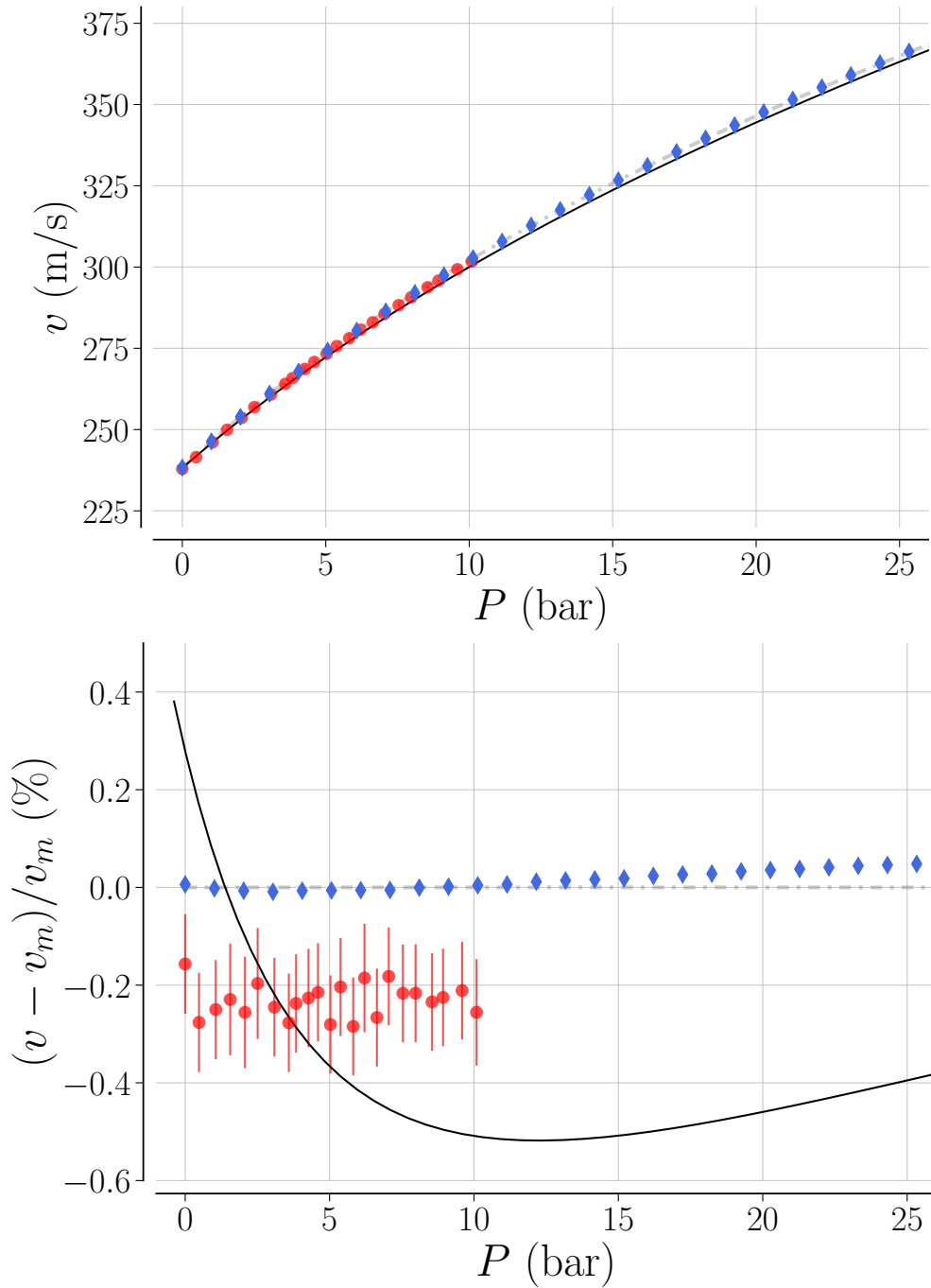


FIG. 4.12 Haut : vitesse du son dans l'hélium liquide en fonction de la pression. Points rouges : données issues de nos mesures de la fréquence Brillouin de l'hélium stable à $T = 0,96$ K. Diamants bleus : vitesse du son isotherme v_T , Réf.[[abraham1970](#)], $T = 0,1$ K et $0,5$ K. Courbe en pointillés gris : ajustement des données de la Réf.[[abraham1970](#)] par la fonction $v_m(P) \propto (P - P_1)^{1/3}$ [[maris1989](#)]. Courbe en trait plein noire : vitesse du son déduite des mesures de permittivité diélectrique de l'hélium liquide de la Réf.[[learn2022](#)]. Bas : écarts relatifs des valeurs de vitesse du son par rapport à la fonction $v_m(P)$.

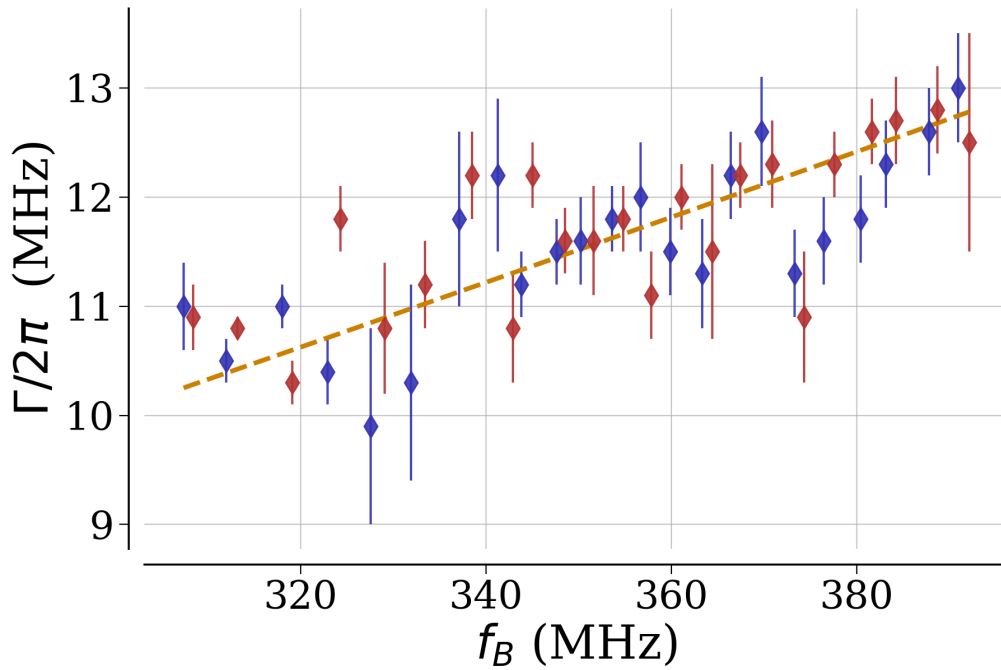


FIG. 4.13 **Diamants** : largeur (FWHM) des spectres mesurés dans l'hélium par spectroscopie Brillouin stimulée entre 0 et 10 bars, pour $\Omega > 0$ (en bleu) et $\Omega < 0$ (en rouge). **Trait pointillé orange** : Résultat de l'ajustement par la formule de Grubbs, en négligeant la largeur naturelle des raies et en fixant la largeur spectrales des lasers à 3,5 MHz (voir texte).

pour effectuer de la spectroscopie Brillouin à partir d'un seul laser source impulsif, séparé en deux faisceaux (un des faisceaux est décalé en fréquence par un modulateur acousto-optique), focalisé dans l'hélium en configuration contra-propageante ($\theta \sim 180^\circ$). Ce projet, initié dans le cadre du stage de Licence 3 d'Elisa Radjabou (étudiante à Sorbonne Université), est en cours de développement.

Conclusion

Nous avons obtenu les premiers spectres Brillouin par spectroscopie Brillouin stimulée dans l'hélium 4 superfluide stable. Cette technique de spectroscopie pompe/sonde permet de mesurer optiquement la vitesse du premier son de l'hélium 4 liquide en utilisant une puissance optique modérée et des taux d'acquisition rapides. Notre configuration spécifique (angle de croisement du laser de $\sim 90^\circ$), ainsi que la courte durée de l'impulsion de pompe et la focalisation des lasers, nous permettent de sonder la vitesse du son dans un domaine spatio-temporel restreint ($35 \mu\text{m}$ et 190 ns).

D'autre part, nous avons mesuré l'équation d'état de l'hélium 4 liquide. Notre mesure est en très bon accord (0,1%) avec les mesures précédentes de l'EoS effectuées à des échelles de longueur et de temps supérieures de plusieurs ordres de grandeur.

Ces résultats valident l'utilisation de cette technique de spectroscopie Brillouin dans l'hélium liquide. La voie est alors ouverte pour l'exploration de l'hélium liquide métastable. Les deux prochains chapitres y seront consacrés.

5 – Spectroscopie Brillouin Stimulée de l'hélium superfluide métastable

Sommaire

5.1	Techniques expérimentales	89
5.1.1	Production des états métastables	89
5.1.2	Montage optique pour la Spectroscopie Brillouin Stimulée dans l'hélium métastable	91
5.1.3	Superposition des faisceaux lasers	93
5.2	Acquisition et traitement des données	94
5.2.1	Résultats préliminaires	95
5.2.2	Mise en place d'un protocole pour focaliser les faisceaux laser sur la région métastable	96
5.3	Résultats	96
5.3.1	Mesure de l'évolution de la fréquence Brillouin dans l'hélium métastable	96
5.3.2	Estimation de l'effet du moyennage sur les valeurs des fréquences Brillouin mesurées à $P < 0$	98
5.3.3	Mesure de la probabilité de création de bulles de cavitation	98
5.3.4	Propriétés de l'hélium au seuil de déstabilisation	100
5.3.5	Comparaison de nos résultats avec les mesures effectuées dans l'hélium stable	104
5.3.6	Instant de création des bulles de cavitation	105
5.3.7	Mesures de f_B au-delà du seuil de déstabilisation ($V > V^*$)	108
5.3.8	Estimations des pressions de cavitation dans les oscillations (A) et (C)	110
5.3.9	Interprétation des résultats	110

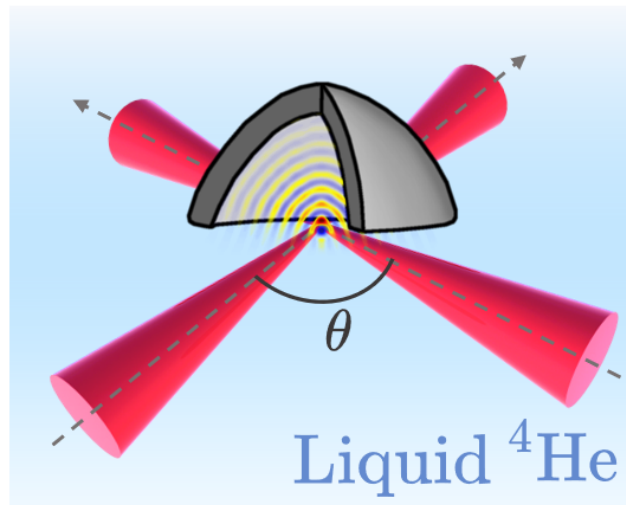


FIG. 5.1 Schéma de principe l'expérience. Un émetteur acoustique piézoélectrique permet de focaliser des ondes acoustiques de 1,14 MHz dans l'hélium liquide ($T \sim 1$ K). Les états métastables sont produits au foyer acoustique pendant les phases de décompression de l'onde sonore. Un spectromètre Brillouin stimulé composé de deux faisceaux laser croisés (faisceau de pompage impulsionnel et faisceau sonde accordable en fréquence) est utilisé pour mesurer les fréquences Brillouin au cours du temps au foyer acoustique du liquide. θ est l'angle de croisement entre les lasers ($\theta \sim 90^\circ$).

Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons les premières mesures de fréquence Brillouin dans les états métastables de l'hélium superfluide. Les états métastables sont créés acoustiquement, par la focalisation d'une onde ultrasonore (voir schéma de principe sur la Fig.5.1). La durée typique de ces états est inférieure à ~ 500 ns, et la taille typique de la région métastable est de l'ordre de $\sim 100 \mu\text{m}$. Le spectromètre à gain Brillouin stimulé que nous avons développé (voir Chapitres 3 et 4) est capable de mesurer les fréquences Brillouin de l'hélium superfluide sur une telle fenêtre spatiale et temporelle.

5.1 Techniques expérimentales

5.1.1 Production des états métastables

Les états métastables (pression négative) dans l'hélium superfluide sont créés par une méthode similaire à celle initiée par Nissen *et al.* [nissen1988], puis utilisée par Maris *et al.* [xiong1991] et Caupin & Balibar [caupin2001](voir sous-section 1.2.1). Cette méthode consiste à focaliser une onde sonore à l'aide d'un émetteur piézoélectrique. Nous présentons ici quelques caractéris-

tiques de l'émetteur utilisé. On pourra consulter les thèses de mes prédécesseurs Fabien Souris [souris2015] et An Qu [qu2017] pour plus de détails.

L'amplitude de l'onde sonore au foyer acoustique est maximisée en choisissant un émetteur piézoélectrique de forme hémisphérique, permettant de créer une onde sonore sphérique dans l'hélium. Une céramique hémisphérique *401-type PZT* du fabricant *Morgan Technical Ceramics* est utilisée. Son diamètre interne est de 12 mm, et son épaisseur est de 2 mm. La fréquence de résonance du premier mode en épaisseur est ~ 1 MHz. Les faces internes et externes de la céramique sont polies et revêtues d'un dépôt d'argent. La céramique est également rapée sur sa partie équatoriale, permettant d'avoir accès optiquement au foyer acoustique de l'onde (la forme de la céramique n'est donc pas exactement une demi-sphère mais une portion de coquille sphérique). Le foyer acoustique est ainsi situé légèrement en-dessous de la câle, à une distance $\sim 0,40$ mm du bas de celle-ci. L'ouverture angulaire disponible est donc $\theta \sim 0,067$ rad (voir la section 2.4.3).

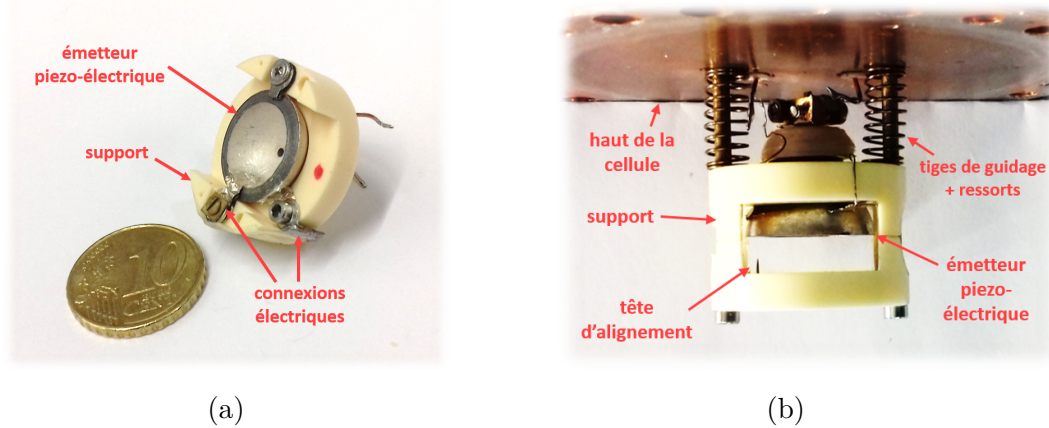


FIG. 5.2 (a) : Photographie de la câle piézoélectrique et de son support ; (b) : Photographie de la câle piézoélectrique maintenue sur la partie haute de la cellule expérimentale.

Le support de la céramique est réalisé en PVC, et épouse la forme de la céramique, comme montré sur les Fig.5.2(a) et Fig.5.2(b). Deux supports sont visibles sur la photographie de la Fig.5.2(b) afin de se donner la possibilité d'exciter les modes acoustiques par deux câles montées l'une en face de l'autre. Tout au long de ma thèse nous n'avons cependant travaillé qu'avec une seule câle piézoélectrique.

Quatre câbles électriques sont connectés à la câle piézoélectrique, une paire sur chaque face. Un fil de chaque paire sert à l'excitation en tension de la câle piézoélectrique, et l'autre paire sert à la mesure de la tension aux bornes de l'émetteur. L'excitation de l'émetteur piézoélectrique est pilotée par un amplificateur radiofréquence (*RITEC GA 2500A Gated RF Pulse Amplifier*, gain 390) alimenté par un générateur de fonctions arbitraires (AFG, *Tektronix AFG 3022*). La séquence temporelle de l'expérience est présentée en Fig.5.3. L'AFG est déclenché par un signal TTL de fréquence de répétition 10 Hz provenant du laser de pompage impulsionnel. Le signal d'excitation consiste en une salve de tension sinusoïdale de quatre oscillations d'une amplitude crête à crête V (contrôlée avec une précision relative de l'ordre de 10^{-4}) à la fréquence de résonance de l'émetteur piézoélectrique f_{ac} . Au cours d'une séquence, le délai t_d entre l'impulsion de déclenchement et le début du signal d'excitation de l'AFG peut être modifié.

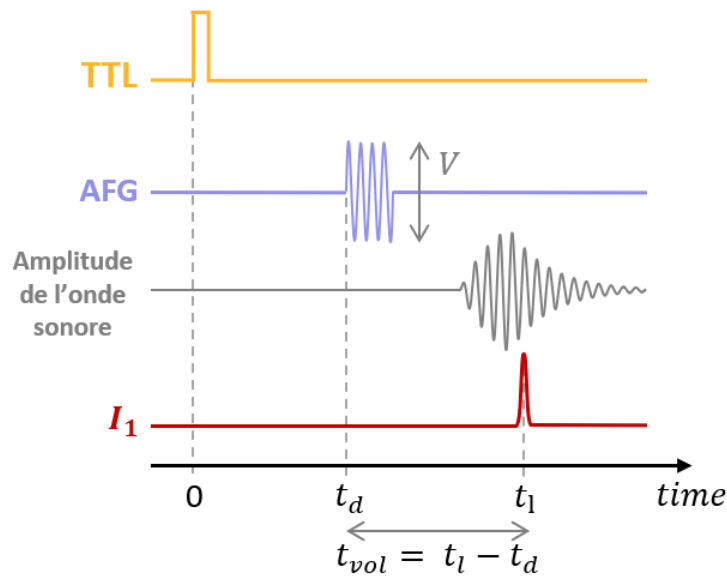


FIG. 5.3 Séquence temporelle de l'expérience. Jaune : Signal d'horloge TTL 10 Hz délivré par le laser de pompage impulsif, Bleu : tension d'excitation de l'émetteur piézoélectrique (amplitude V , fréquence $f_{ac} \sim 1$ MHz), Gris : allure de l'amplitude de l'onde sonore au niveau du foyer acoustique, Rouge : Intensité du laser de pompage I_1 .

Comme montré sur la Fig.5.2(b), nous avons incorporé une tête d'alignement au support de la câle piézoélectrique, éloignée du foyer acoustique de quelques millimètres afin de ne pas perturber la propagation de l'onde sonore. Comme pour l'étude de l'hélium liquide stable, cette tête d'alignement sert de repère pour le croisement des faisceaux lasers, qui, une fois superposés, peuvent être déplacés dans les trois directions de l'espace jusqu'au foyer acoustique de l'onde sonore. Si une telle méthode a fait ses preuves dans les tests préalables effectués dans l'acétone et dans l'hélium stable (cf Chap.3 et Chap.4), nous n'en avons finalement pas eu l'usage dans l'hélium métastable : nous avons pu nous servir de la bulle créée par cavitation dans l'hélium pour superposer les deux faisceaux lasers, comme présenté en section 5.1.3.

5.1.2 Montage optique pour la Spectroscopie Brillouin Stimulée dans l'hélium métastable

Le montage optique utilisé pour étudier l'hélium métastable est similaire à celui effectué pour l'étude de l'hélium stable (voir Fig.4.3, Chap.4). Nous avons ajouté quelques optiques, permettant de faire une image du centre de la cellule. On utilise à cet effet un laser Nd :YAG impulsif ($\lambda = 532$ nm, durée des impulsions de 8 ns) qui traverse le cryostat au niveau de l'onde sonore. Le diamètre du faisceau est large (~ 1 cm). On fait ensuite l'image du centre de la cellule sur une caméra CCD (grandissement de 2,5). La mise au point est effectuée sur les bulles créées par cavitation. De telles images sont présentées sur la Fig.5.4 pour différents délais d'arrivée des impulsions du laser Quantel CFR200. Ce même laser sera utilisé pour effectuer les mesures interférométriques de la densité des états métastables (voir Chapitre 6).

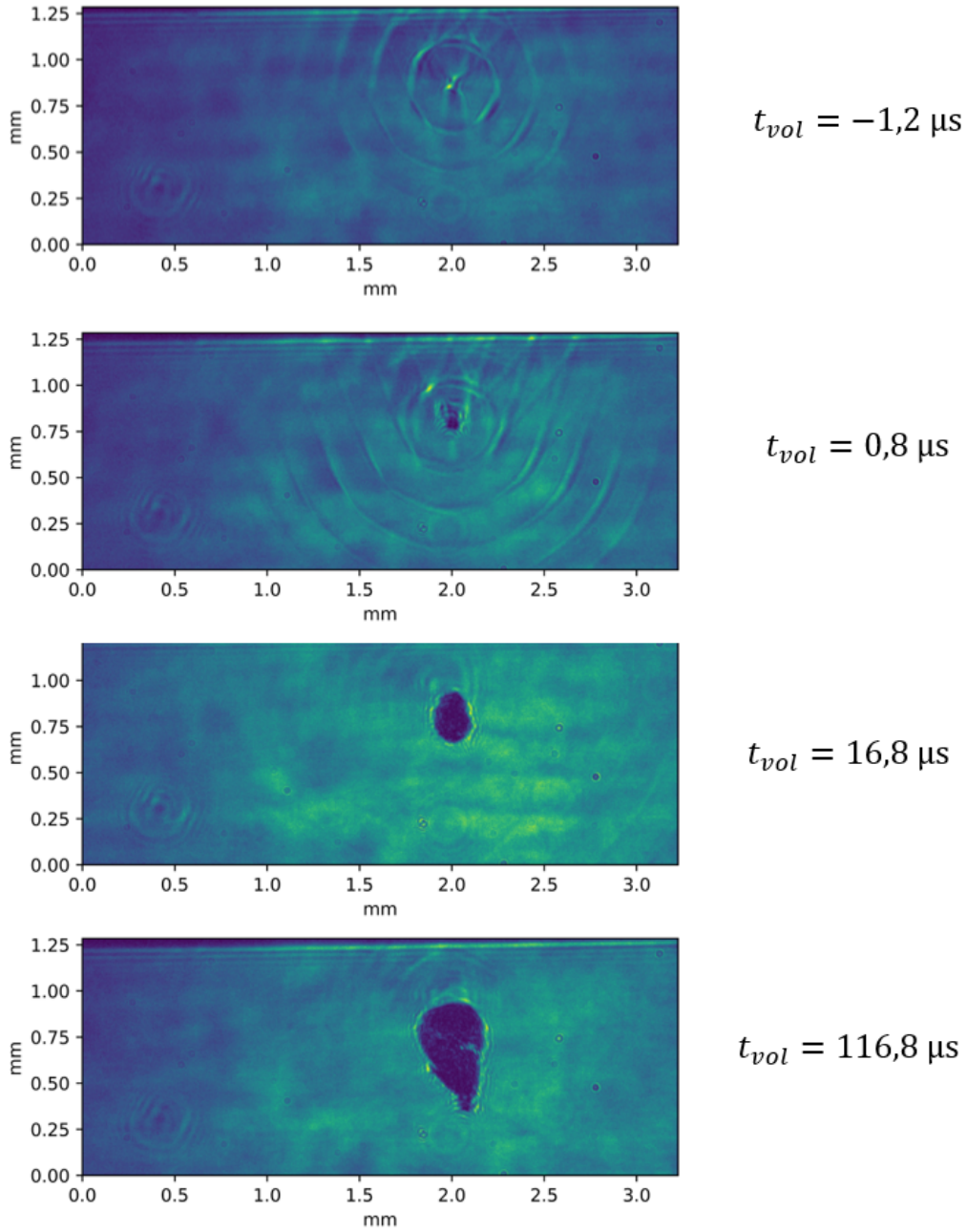


FIG. 5.4 Photographies prises en transmission à travers le cryostat avec le laser Quantel CFR200 à différents temps t . L'instant $t_{vol} = 0$ correspond à l'instant où l'amplitude de l'onde sonore est maximale au niveau du foyer acoustique. La photographie prise à $t_{vol} = -1,2 \mu\text{s}$ est donc prise avant que le maximum d'amplitude de l'onde sonore soit atteint. Les tâches bleu foncé observée aux temps $t_{vol} > 0 \mu\text{s}$ sont les ombres des bulles de cavitation créées.

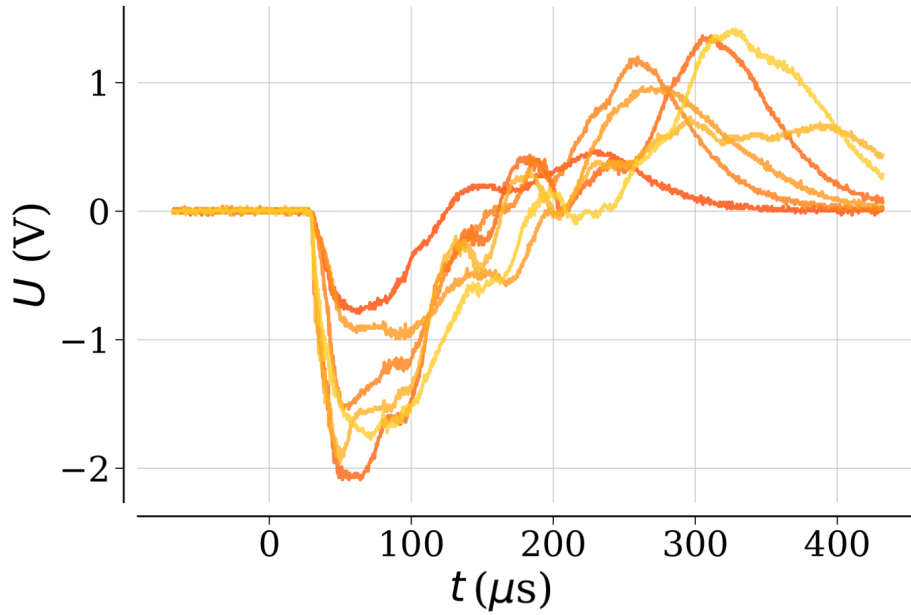


FIG. 5.5 Évolution du signal de transmission (en mode AC) du laser sonde à travers le cryostat lorsque le faisceau intercepte une bulle de cavitation. Plusieurs traces, correspondant à différentes bulles créées, sont ici représentées dans des couleurs différentes. La variation brutale de tension autour de $t_{\text{vol}} \sim 30 \mu\text{s}$ est due à la diffusion de la lumière du laser par une bulle de cavitation.

5.1.3 Superposition des faisceaux lasers

À $T \sim 1 \text{ K}$, pour des tensions d'alimentation V de l'émetteur piézoélectrique supérieures à 540 mV (valeur AFG avant amplification), une bulle de cavitation est créée dans l'hélium, voir Fig.5.4. Cette bulle se situe au niveau du foyer acoustique de l'onde sonore. Les bulles créées se dilatent jusqu'à atteindre un rayon de plusieurs centaines de μm , puis s'effondrent en une durée de vie typique d'environ 1 ms [qu2016] (bien plus longue que la durée totale de l'onde acoustique), de sorte qu'elles diffusent fortement la lumière et peuvent être facilement détectées par les lasers Brillouin. Pour focaliser les lasers sur le foyer acoustique de l'onde sonore, il s'est avéré efficace de les superposer directement sur le foyer de création des bulles de cavitation.

La figure 5.5 représente la tension de la photodiode de détection du laser sonde Brillouin après traversée du cryostat (acquisition en mode AC) pour $V = 560 \text{ mV}$. Le signal varie abruptement à partir de $t_{\text{vol}} \sim 30 \mu\text{s}$. Cela correspond à l'arrivée de la bulle sur la trajectoire du faisceau sonde, ce qui le diffuse fortement et change l'injection du faisceau sonde dans la photodiode de détection. Je détaille dans l'annexe B le protocole que nous avons mis en place pour s'assurer de la superposition des faisceaux Brillouin et du foyer acoustique.

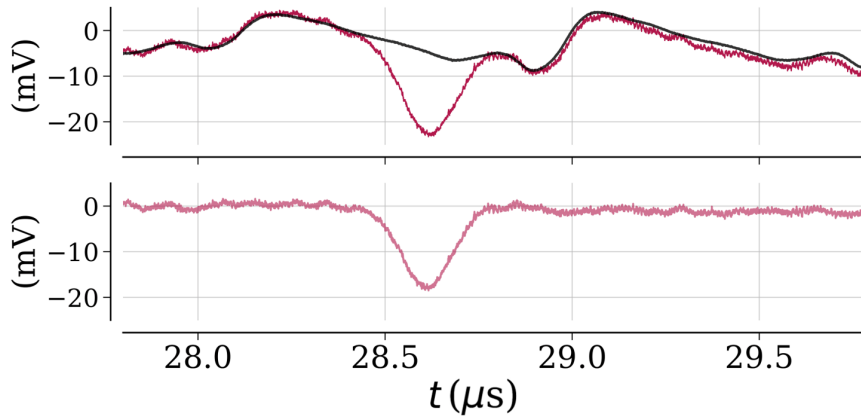


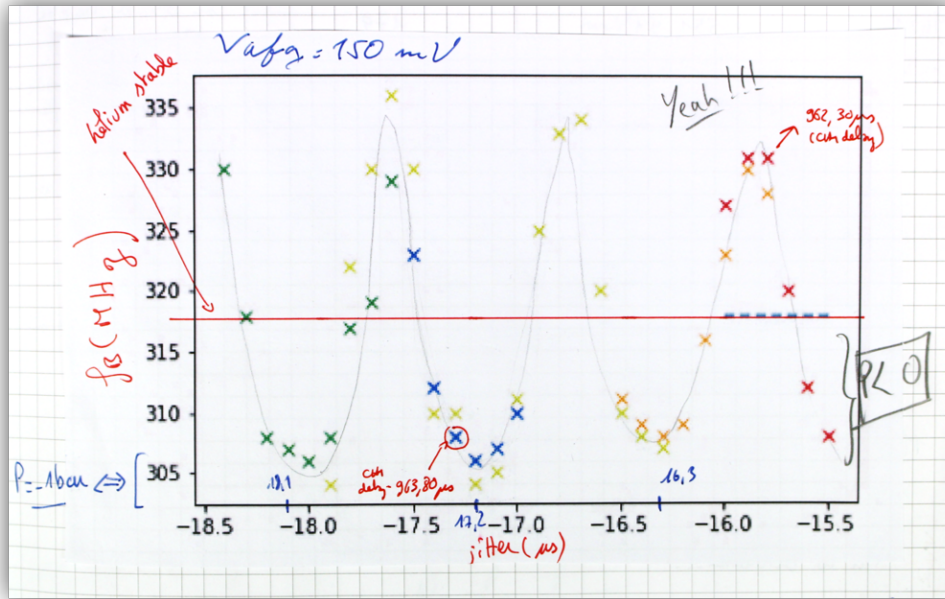
FIG. 5.6 Haut : rouge : signal du laser sonde recueilli en transmission du cryostat pour une différence de fréquence entre les lasers $f = f_2 - f_1$ proche de $-f_B$; noir : moyenne sur 100 traces du signal du laser sonde recueilli en transmission du cryostat lorsque le faisceau pompe est bloqué avant l'entrée dans le cryostat. Bas : Signal correspondant à la soustraction des courbes rouge et noir de la figure du haut.

5.2 Acquisition et traitement des données

Une fois les faisceaux superposés sur le foyer de création des bulles de cavitation, l'acquisition des données se déroule comme suit. Le laser de pompage émet une impulsion lumineuse d'une durée de τ_{pulse} à un instant $t_l \sim 994 \mu\text{s}$ après l'impulsion de déclenchement. La valeur réelle de t_l dans un cycle donné est déterminée par l'enregistrement et l'ajustement du profil temporel d'intensité I_1 de l'impulsion du laser de pompage. Pendant l'intervalle de temps τ_{pulse} , les lasers pompe et sonde interagissent avec le liquide et le profil d'intensité temporelle du laser de sonde I_2 est également enregistré.

Le temps de vol (ToF pour "Time of Flight"), durée de parcours de l'onde acoustique de la partie interne de l'émetteur piézoélectrique jusqu'au foyer acoustique, est donné par $t_{\text{vol}} = t_l - t_d$, voir Fig.5.3 . En faisant varier le délai t_d entre l'impulsion de déclenchement et l'excitation de l'AFG, on construit un tableau de données $(t_{\text{vol}}, f, I_2(t))$.

Nous montrons en haut de la Fig.5.6 un exemple de trace temporelle $I_2(t)$ pour $t_{\text{vol}} = 28,6 \mu\text{s}$, $f_2 - f_1 = -294,5 \text{ MHz}$, $T = 1 \text{ K}$ et $P = P_{\text{sat}}$. Le signal peut être décomposé en deux parties : une partie du signal correspond au signal Brillouin (seulement présent lors $|f_2 - f_1| \sim f_B$), une autre partie est un signal variant sur des échelles de temps $\sim 1 \mu\text{s}$, toujours de la même forme (à t_d fixé) quelque soit la valeur de $f_2 - f_1$. Ce dernier signal est dû à la variation de la densité du liquide, provoquée par le passage de l'onde sonore, qui change l'injection dans la photodiode de mesure de $I_2(t)$. On s'affranchit de ce signal de fond de la manière suivante : nous prenons 100 traces temporelles en bloquant le faisceau pompe en entrée du cryostat (aucun signal Brillouin n'est alors créé). Nous effectuons la moyenne de ces 100 traces (en noir sur la Fig.5.6). Puis nous retranchons cette moyenne au signal $I_2(t)$, et obtenons une courbe corrigée (courbe du bas, Fig.5.6). Le gain Brillouin g est ensuite obtenu comme dans l'étude des états stables : nous prenons l'intégrale du signal, et nous le normalisons par l'intensité du faisceau pompe. En faisant varier le temps de vol t_{vol} et la différence de fréquence $f = f_2 - f_1$ on obtient un jeu de données $(t_{\text{vol}}, f, g(t_{\text{vol}}, f))$.



8

FIG. 5.7 Photographie du cahier de laboratoire montrant la courbe de la première mesure de la fréquence Brillouin en fonction du temps proche du foyer acoustique, le jeudi 17 mai 2021. Abscisse : t_{vol} (en μs).

On échantillonne ces données dans le temps par intervalle $\delta t = 100$ ns. Ce choix est dû au fait que le laser de pompage que nous utilisons émet les impulsions laser avec une fluctuation temporelle de l'ordre de $1 \mu\text{s}$, ce qui est loin de la stabilité constructeur annoncée pour ce type de laser (~ 1 ns). Cette défaillance manifeste est compensée par un post-traitement numérique adapté, où nous sélectionnons *a posteriori* les données correspondant à chaque temps de vol dans un intervalle de 100 ns. On obtient alors le spectre Brillouin $g(f, t_{\text{vol}})$ sur chacun de ces intervalles temporel.

De la même manière que dans le chapitre précédent, nous ajustons chacune de ces courbes obtenues à un temps de vol donné par une fonction gaussienne. Nous pouvons en extraire la valeur correspondante de la fréquence Brillouin $f_B(t_{\text{vol}})$. Ainsi nous sommes capables d'enregistrer l'évolution temporelle des variations locales de la fréquence Brillouin pendant le passage de l'onde sonore.

5.2.1 Résultats préliminaires

Des résultats préliminaires dans l'hélium superfluide à $T = 0,96$ K et pour une tension d'alimentation $V = 150$ mV sont présentés sur la Fig.5.7. Il s'agit d'une photographie de notre cahier de laboratoire qui laisse transparaître l'enthousiasme de cette première mesure. La fréquence Brillouin f_B est mesurée en fonction du temps (origine du temps arbitraire). La ligne rouge correspond à la valeur de la fréquence Brillouin dans l'hélium stable à pression de vapeur saturante (absence d'onde sonore). Tous les points de mesure en-dessous de cette ligne correspondent à des mesures dans les états métastables de l'hélium. Une rapide évaluation à partir de l'équation d'état théorique donnée par l'Éq.(1.6) permet d'évaluer la pression au niveau des minima, de l'ordre de

–1 bar. Ces premiers résultats encourageants nous ont conduit à affiner la superposition des faisceaux laser sur la région métastable.

5.2.2 Mise en place d'un protocole pour focaliser les faisceaux laser sur la région métastable

Nous présentons en détail en annexe B deux méthodes pour focaliser les lasers sur la région métastable. La méthode la plus rapide, utilisée pour tous les résultats présentés dans ce qui suit, consiste à créer une bulle de cavitation et à focaliser chaque laser sur la bulle de cavitation. Un protocole d'alignement est alors suivi avant chaque campagne de mesure : (1) on crée des bulles de cavitation et chaque faisceau est focalisé sur le foyer acoustique où sont créées les bulles ; (2) dans l'hélium stable (pas d'onde sonore) on se place à la résonance Brillouin ($\Omega = \Omega_B$) et on maximise le gain Brillouin en traduisant le faisceau pompe dans la direction verticale. Ceci assure un recouvrement optimal des lasers. Les lasers sont alors focalisés sur le foyer acoustique avec une précision inférieure à 20 μm . Ce protocole prend une quinzaine de minutes pour être effectué.

5.3 Résultats

5.3.1 Mesure de l'évolution de la fréquence Brillouin dans l'hélium métastable

Une fois le foyer acoustique de l'onde sonore repéré de manière précise, nous avons pu effectuer des mesures de la fréquence Brillouin au cours du temps. La figure 5.8 montre l'évolution temporelle des fréquences Brillouin au foyer acoustique pour deux valeurs différentes de l'amplitude de la salve de tension générée par l'AFG. Chaque point de mesure $f_B(t)$ provient de l'ajustement du spectre Brillouin correspondant au temps t_{vol} . La fonction d'ajustement est une fonction gaussienne : un ajustement par un profil gaussien asymétrique, comme effectué au chapitre précédent, n'améliore pas la qualité de l'ajustement, notamment en raison du nombre de points plus faibles ($N = 150$) pour chaque spectre. Un spectre est montré dans l'encart de la Fig.5.8. Pour ce spectre : $f_B = -281,9(3)$ MHz, $\Gamma = 12,8(7)$ MHz (et $\chi_{\text{red}}^2 = 10$).

La ligne pointillée horizontale de la figure principale correspond à la valeur de la fréquence Brillouin $f_B^0 = 317,8(3)$ MHz à l'équilibre thermodynamique ($P = P_{\text{sat}}$, $T = 0,96$ K, $V = 0$ mV). Lorsque $f_B(t) > f_B^0$, l'hélium liquide au foyer acoustique explore des états stables du liquide de pression et de densité plus élevées. Au contraire, lorsque $f_B(t) < f_B^0$, le liquide explore ses états métastables ($P < P_{\text{sat}}$).

À faible tension de commande ($V = 150$ mV), l'évolution temporelle des fréquences Brillouin est sinusoïdale, ce qui est attendu car l'onde sonore se propage linéairement dans le liquide. En revanche, lorsque V augmente (amplitude de l'onde sonore plus importante) la propagation du son devient fortement non-linéaire. C'est ce que l'on observe sur la courbe correspondant à $V = 540$ mV (V est alors de seulement quelques mV en-dessous du seuil auquel les premières bulles de cavitation apparaissent, à $V^* = 547$ mV). L'effet de la non-linéarité est un aplatissement des creux de l'onde, et une accentuation des crêtes. Ceci est un phénomène bien connu pour l'hélium liquide, des simulations de la propagation des ondes sonores, effectuées par Appert *et*

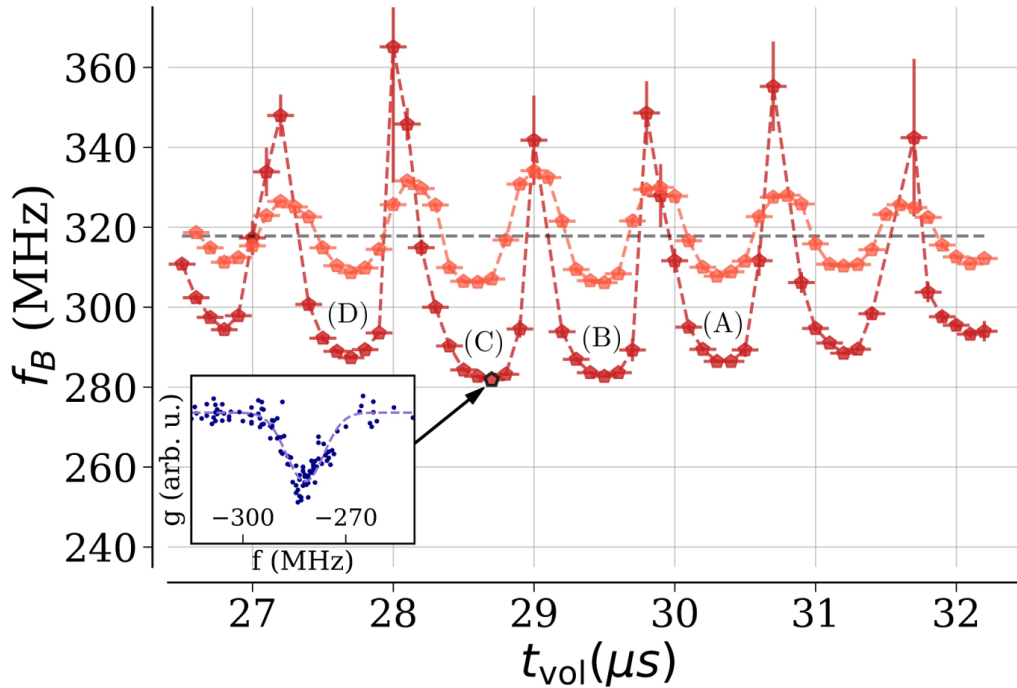


FIG. 5.8 Évolution temporelle des fréquences Brillouin f_B de l'hélium liquide au foyer acoustique. La température et la pression du bain d'hélium (sans onde acoustique) sont respectivement $T = 0,96$ K et $P_0 = P_{\text{sat}}(0,96$ K). Points orange : mesures obtenues pour la tension de commande $V = 150$ mV. Points rouges : mesures obtenues pour la tension de commande $V = 540$ mV. Les traits pointillés rouges et orange servent à mieux visualiser les données. Ligne pointillée horizontale : valeur statique de la fréquence Brillouin $f_B^0 = 317,8(3)$ MHz. (A), (B), (C), (D) marquent les différentes oscillations négatives locales de la fréquence Brillouin. Encart : Spectre Brillouin obtenu pour $V = 540$ mV à $t = 28,7$ μs ; points : données, ligne en pointillés : ajustement par une fonction gaussien.

al. [appert2003], ont mis en lumière cet effet.¹ À $V = 540$ mV, l'évolution temporelle de f_B est alors très abrupte pour les fréquences Brillouin supérieures à f_B^0 : ces pics de fréquence étroits sont moyennés dans le temps (à une échelle temporelle de $\sqrt{\tau^2 + \delta t^2} \sim 220$ ns) et dans l'espace ($2w = 40$ μm), et sont ainsi mal résolus par notre spectromètre. Dans toute la suite, nous nous intéresserons aux valeurs de fréquence Brillouin au sein des creux de l'onde, c'est-à-dire dans les états métastables du fluide, où les effets de moyennage sont moins prononcés.

1. L'origine de ces non-linéarités, selon Appert *et al.*, a pour principale origine la non-linéarité de l'équation d'état $P(\rho)$ de l'hélium. Une contribution, plus faible, à la non-linéarité provient de la dérivée advective qui intervient dans l'équation d'Euler.

5.3.2 Estimation de l'effet du moyennage sur les valeurs des fréquences Brillouin mesurées à $P < 0$

On estime les effets de moyennage dus à la durée des impulsions du laser de pompage (220 ns FWHM) et à la taille des faisceaux pompe et sonde au niveau du point de focalisation ($w \sim 20 \mu\text{m}$).

Pour estimer les effets dus au **moyennage spatial**, on fait l'hypothèse raisonnable que la fréquence Brillouin varie sur des échelles spatiales similaires aux échelles de variation de la densité. Nous représentons sur la Fig.5.9(a) la variation spatiale attendue pour f_B à partir du profil spatial de densité, mesuré par Qu *et al.* [qu2015]. Sur la figure est également représentée la fonction de moyennage en unités arbitraires, qui est une distribution gaussienne de demi-largeur $\sigma = 20 \mu\text{m} \sim w$ (avec w le col des lasers). Le résultat de la convolution du profil de densité par la fonction de distribution gaussienne est représenté par la courbe en pointillés rouge de la figure Fig.5.9(a). La différence entre les deux courbes est de moins de 1% en $r = 0$. On en déduit que l'effet du moyennage spatial sur la fréquence Brillouin est de moins de 1%.

Le **moyennage temporel** a un effet légèrement plus important. Pour l'estimer, on suppose pour simplifier que la fréquence Brillouin au foyer acoustique varie de manière sinusoïdale :

$$f_B(t) = f_B^0(1 + \delta(t)) \quad (5.1)$$

où $\delta(t) = \delta_0 \cos(2\pi ft)$ avec $f = 1,14 \text{ MHz}$ est la fréquence des ondes sonores focalisées par l'émetteur piézoélectrique, et $\delta_0 = (f_{B\text{max}} - f_{B\text{min}})/2f_B^0$ l'amplitude relative de la variation de $f_B(t)$. Les impulsions du laser pompe sont quasi-gaussiennes temporellement, de largeur à mi-hauteur $\tau_{\text{pulse}} = 190 \text{ ns}$ dans le domaine temporel. En raison du taux d'échantillonnage $\delta t = 100 \text{ ns}$ du protocole d'acquisition des données, la fonction de probabilité de la densité de moyennage temporel a une demi-largeur effective $\sigma_t = \sqrt{\tau_{\text{pulse}}^2 + \delta t^2}/2 = 110 \text{ ns}$. La distribution gaussienne, de demi-largeur σ_t , par laquelle est convolué le signal, est représentée en noir sur la Fig.5.9(b). La courbe rouge en pointillés correspond au résultat de la convolution de $f_B(t)$ par cette distribution gaussienne. La différence entre les courbes moyennées et non moyennées est d'environ 3% de la valeur de f_B ($\sim 320 \text{ MHz}$). En fait, cet effet de moyenne est très probablement inférieur à 3% : la propagation du son étant non-linéaire, les creux de la courbe $f_B(t)$ sont plus plats que dans le cas sinusoïdal considéré ici. Les effets de moyennage temporel sont donc en réalité moins prononcés que ceux estimés ici.

Une autre estimation, basée sur la déconvolution de nos jeux de données $f_B(t)$ par une distribution gaussienne temporelle de largeur à mi-hauteur σ_t conduit à un résultat analogue, avec un effet du moyennage de l'ordre de 2%.

L'ensemble des effets des moyennages spatiaux et temporels conduit à une surestimation de la fréquence Brillouin de moins de 3%.

5.3.3 Mesure de la probabilité de création de bulles de cavitation

En augmentant la tension V , on explore de plus en plus les états métastables de l'hélium, jusqu'à l'apparition d'une bulle de cavitation, liée à la déstabilisation de ces états. Cette bulle grossit pour atteindre un rayon typique d'une centaines de μm , puis s'effondre après un temps

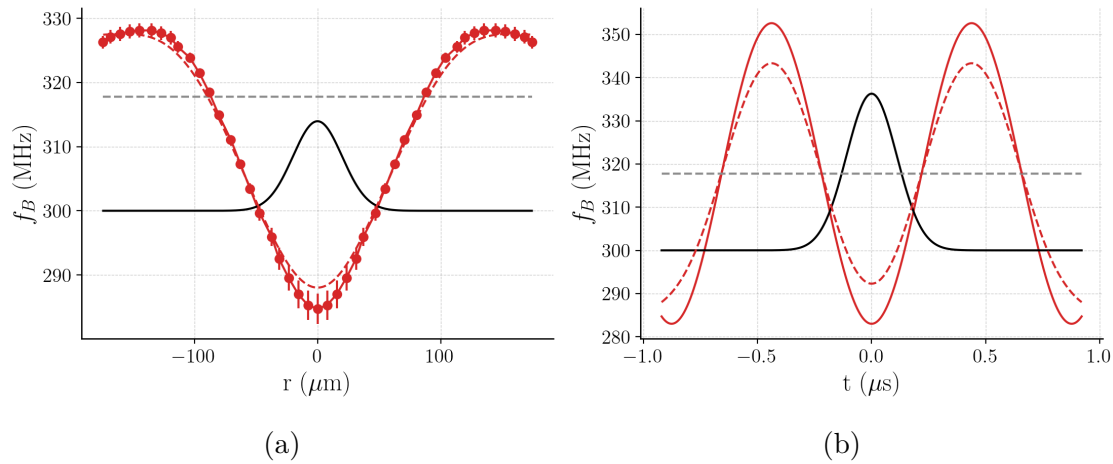


FIG. 5.9 (a) : Effet du moyennage spatial de la fréquence Brillouin. Points et courbe rouges en trait plein : allure spatiale attendue de la fréquence Brillouin, obtenue à partir des mesures de densité de la référence [qu2015] (les données à $r < 0$ sont ajoutés car on a la symétrie $\rho(-r) = \rho(r)$). Pour convertir les mesures de densité en fréquence Brillouin, on fait l'hypothèse de la dépendance linéaire de f_B en ρ , voir Éq.(5.4). Courbe grise en pointillé : fréquence Brillouin statique f_B^0 (pas d'onde acoustique). Courbe noire en trait plein : fonction de moyennage dont la demi-largeur à $1/e$ $w = 20 \mu\text{m}$ est donnée par les tailles des lasers Brillouin. Courbe rouge en pointillés : fréquence Brillouin moyennée. (b) : Effet du moyennage temporel de la fréquence Brillouin. Courbe rouge en trait plein : allure du profil de fréquence Brillouin en fonction du temps, en faisant l'hypothèse d'une variation sinusoïdale. Courbe grise en pointillé : fréquence Brillouin statique f_B^0 (pas d'onde acoustique). Courbe noire en trait plein : fonction de moyennage dont la demi-largeur à mi-hauteur est $\sigma_t = 110 \text{ ns}$ (voir texte). Courbe rouge en pointillé : fréquence Brillouin moyennée.

de vie typique de l'ordre de 1 ms[qu2016] (durée de vie bien plus longue que la durée totale de l'onde sonore). Comme évoqué au paragraphe 5.1.3, ces bulles peuvent être aisément détectées.

La déstabilisation des états métastables est un processus stochastique activé par les fluctuations thermiques du milieu. À partir des traces temporelles obtenues par la photodiode de détection du faisceau sonde, nous pouvons mesurer la probabilité de cavitation Σ en fonction de V . Ces mesures sont effectuées en prenant des séries de 200 traces à V fixé et en comptant le nombre d'évènements de cavitation par série de mesure. Le résultat de ces mesures est présenté sur la Fig.5.10.

Nous avons vu dans la section 1.1.3 la dépendance de la probabilité de cavitation Σ en fonction de la barrière énergétique ΔE (voir Éq.(1.4)). En notant ΔE^* la valeur de la barrière énergétique telle que $\Sigma(\Delta E^*) = 1/2$, on peut réécrire :

$$\Sigma = 1 - \exp(-\ln 2 \exp(-(\Delta E - \Delta E^*)/k_B T)) \quad (5.2)$$

On remarque sur la Fig.5.10 que la probabilité de cavitation passe de 0 à 1 pour une tension V variant de 535 mV à 555 mV, soit une variation relative de tension faible, de $\sim 4\%$. On développe alors ΔE proche de V^* au premier ordre en V , et on écrit ainsi :

$$\Sigma = 1 - \exp(-\ln 2 \exp(-\zeta(V - V^*))) \quad (5.3)$$

avec $\zeta = \frac{1}{k_B T} \frac{d\Delta E}{dV}(V = V^*)$ [lambare1998].

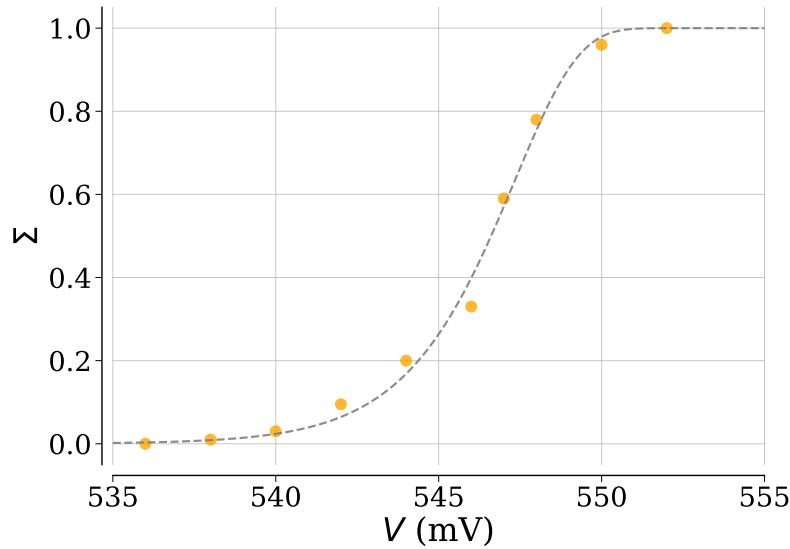


FIG. 5.10 Probabilité de cavitation Σ en fonction de la tension V à $T = 0,97$ K et $P = P_{\text{SVP}}$. La ligne en pointillé correspond à l'ajustement par la formule Éq.(5.3).

Cette fonction d'ajustement est satisfaisante pour rendre compte de la statistique de cavitation (voir Fig.5.10) et permet de déterminer $V^* = 546,6(1)$ mV.

Nous appelons “**seuil de déstabilisation**” le seuil d'apparition des premières bulles de cavitation à $V = V^*$. Il est volontaire de notre part de ne pas appeler ce seuil “seuil de cavitation” car, comme nous le verrons plus loin, des seuils de cavitation différents sont à considérer en fonction de l'oscillation de l'onde sonore considérée ((A), (B), (C) ou (D)), voir Fig.5.8.

5.3.4 Propriétés de l'hélium au seuil de déstabilisation

Mesure de la fréquence Brillouin au seuil de déstabilisation : Nous avons effectué plusieurs mesures de $f_B(t_{\text{vol}})$ jusqu'au seuil de déstabilisation de l'hélium liquide, atteint pour $V^* = 546,6(1)$ mV. La valeur minimale **absolue** de fréquence Brillouin obtenue juste avant le seuil est $f_B^* \equiv \min(f_B(t_{\text{vol}}))_{\Sigma=1/2} = 283 \pm 2$ MHz, où l'incertitude est obtenue en prenant l'écart-type des différentes mesures effectuées à ce minimum.

Estimation de la densité au seuil de déstabilisation : À partir de la mesure de f_B^* et de l'équation d'état (EoS) théorique de l'hélium liquide métastable, il est possible d'estimer la densité locale correspondante $\rho^* \equiv \min(\rho(t_{\text{vol}}))_{\Sigma=1/2}$ en résolvant $f_{B_{th}}(\rho^*) = f_B^*$ où $f_{B_{th}}(\rho)$ est la fréquence Brillouin attendue théoriquement. Afin de calculer $f_{B_{th}}(\rho)$, nous utilisons l'équation $f_B = 2n \frac{v}{\lambda_0} \sin(\theta/2)$. La théorie de Dalfovo *et al.* fournit la fonction $v(\rho)$ dans le domaine métastable. L'indice de réfraction peut être calculé en utilisant la relation de Clausius-Mossoti $n^2(\rho) = 1 + \frac{4\pi\alpha}{M}\rho$. L'angle $\theta = 87,6(1)^\circ$ est déterminé à partir de notre mesure de f_B^0 et des valeurs connues de n et v à la pression de vapeur saturante[donnelly1998]. Nous résolvons donc $f_{B_{th}}(\rho^*) = f_B^*$ et trouvons $\rho^* = 0,1406(4)$ g/cm³. Les effets de moyennage spatial et temporel conduisent à une erreur sur ρ^* inférieure à 1%.

Cette valeur est en nette contradiction avec les résultats obtenus précédemment par l'équipe par mesure de densité[qu2015] et qui ont conduit à une densité au seuil de déstabilisation de

0,1338(2) g/cm³. Ceci suggère que l'EoS de Dalfovo *et al.* pourrait ne pas décrire correctement le comportement de l'hélium 4 superfluide métastable au voisinage du seuil de déstabilisation à $T \sim 1$ K. Un tel écart peut trouver son origine dans l'effet de la température sur l'EoS, qui pourrait être plus important que ce qui a été proposé dans la Réf.[maris2002].

Estimation de la pression au seuil de déstabilisation : La densité de l'hélium métastable au seuil de déstabilisation, définie de la même manière que la fréquence Brillouin au seuil de déstabilisation comme $\rho^* \equiv \min(\rho(t_{\text{voi}}))_{\Sigma=1/2}$, a été mesurée par Qu *et al.* [qu2015] : $\rho^* = 133,8(2)$ kg.m⁻³. La mesure de f_B^* et la connaissance de ρ^* permet d'estimer la pression P^* au seuil de déstabilisation. Cette estimation est basée sur l'observation suivante : on remarque une dépendance linéaire du minimum absolu de la fréquence Brillouin avec V (comme présenté plus loin sur la Fig.5.16). Or, lors des mesures de densité de l'équipe effectuées précédemment[qu2015], il a également été observé une dépendance linéaire du minimum absolu de ρ en V . Nous pouvons donc supposer une dépendance linéaire de la fréquence Brillouin f_B du liquide (métastable) avec la densité². On écrit ainsi :

$$f_B = a\rho + b \quad (5.4)$$

avec a et b deux paramètres constants. Afin de calculer ces paramètres, nous utilisons deux valeurs connues du couple (f_B, ρ) .

Le premier point de référence que nous choisissons est l'état d'équilibre thermique ($T = 0,96$ K, pression de vapeur saturée, absence d'onde acoustique $V = 0$). Nous avons mesuré $f_B^0 = 317,8$ MHz et la densité correspondante est tabulée $\rho_0 = 145,1$ kg.m⁻³[donnelly1998].

Pour le deuxième point de référence, nous choisissons les valeurs de f_B^* et ρ^* au seuil de cavitation, mesurées respectivement pendant ce travail de thèse et le travail de thèse de mon prédécesseur Qu An. Ces deux mesures sont indépendantes, et ont été effectuées à plusieurs années d'intervalle. Dans ces deux expériences, l'émetteur piézoélectrique est alimenté par une salve de 4 oscillations. La seule différence est la fréquence de répétition à laquelle est créée l'onde sonore : 10 Hz dans notre cas, contre 20 Hz dans les expériences de Qu *et al.* Aussi, les valeurs actuelles de tension au seuil de déstabilisation sont de l'ordre de 550 mV, tandis qu'elles étaient de l'ordre de 505 mV lors des travaux de mon prédécesseur. Une telle variabilité de V^* n'est pas surprenante : les câbles électriques entre le générateur RF et le transducteur piézoélectrique, ainsi que les connexions électriques (et les résistances de contact associées) ont été modifiés entre les deux mesures, ce qui a pu modifier le rapport entre la tension d'alimentation V fournie par l'AFG et la tension effectivement présente aux bornes de l'émetteur piézoélectrique. La tension V n'est donc pas un paramètre de référence commun aux deux expériences. En revanche, le seuil de cavitation peut servir de point de référence. Il est important de noter que ces deux mesures de f_B^* et de ρ^* , qui correspondent aux minima absolus de f_B et de ρ , ont bien été obtenues aux mêmes instants (oscillation (C)).

À partir des couples (ρ_0, f_B^0) et (ρ^*, f_B^*) et de l'Éq.5.4 nous trouvons $a = 3,1$ MHz.m³.kg⁻¹ et $b = -129$ MHz⁻¹.

2. Une telle dépendance linéaire est par ailleurs attendue d'après l'EoS proposée par Maris, voir Éq.(1.6) : cette équation prédit que la vitesse du son est linéaire en ρ . D'autre part l'indice de réfraction varie peu sur les domaines de densité typiquement explorés. On donc a $f_B \propto v \propto \rho$ d'après cette EoS.

En raisons des effets de moyennage évoqués précédemment qui interviennent dans la mesure de la fréquence Brillouin³, 283 MHz est en réalité une limite supérieure pour f_B^* . Une limite inférieure pour f_B^* correspond à une réduction de 3 % de la quantité menant à 274,5 MHz. Cela change les paramètres a et b en $a' = 3,8 \text{ MHz m}^3/\text{kg}$ et $b' = -238 \text{ MHz}$. Ces changements n'ont qu'un impact modeste sur la détermination de la pression de déstabilisation, comme nous le verrons plus loin.

Pour estimer P^* , on écrit :

$$\left. \frac{\partial P}{\partial \rho} \right|_S = v^2 = K \frac{f_B^2}{n^2} = K \frac{(a\rho + b)^2}{n^2} \quad (5.5)$$

avec $K = \frac{\lambda_0^2}{4 \sin^2(\theta/2)}$. La valeur de K est déterminée à partir de la mesure de la fréquence Brillouin à l'équilibre thermique $f_B^0 = 317,8(3) \text{ MHz}$, et des valeurs de l'indice de réfraction $n_0 = 1,028$ et de la première vitesse du son $v_0 = 237,9 \text{ m.s}^{-1}$ tabulées[donnelly1998]. On trouve $K = 0,592(1) \mu\text{m}^2$. En utilisant la relation de Lorentz-Lorenz ($n^2(\rho) = 1 + \beta\rho$ avec $\beta = 3,87 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3/\text{kg}$) l'Éq.(5.5) peut être intégrée analytiquement à entropie constante de l'état initial (P_i, ρ_i) à l'état final (P_f, ρ_f) :

$$\begin{aligned} P_f - P_i &= \int_{P_i}^{P_f} dP = \int_{\rho_i}^{\rho_f} K \frac{(a\rho + b)^2}{1 + \beta\rho} d\rho \\ &= \left[\frac{1}{2\beta^3} \{ a\beta\rho(4b\beta + a(\beta\rho - 2)) + 2(a - b\beta)^2 \ln(1 + \beta\rho) \} \right]_{\rho_i}^{\rho_f} \end{aligned} \quad (5.6)$$

Nous prenons comme état initial l'état d'équilibre thermique de la pression de vapeur à 0,96 K ($P_i = P_0 = 10 \text{ Pa}$, $\rho_i = \rho_0 = 145,1 \text{ kg.m}^{-3}$) et comme état final ($P_f = P^*$, $\rho_f = \rho^* = 133,8 \text{ kg.m}^{-3}$). Ce faisant, en utilisant les valeurs de a et b trouvés précédemment, on obtient $P^* = -5,7 \text{ bar}$. En utilisant les valeurs a' et b' obtenues à partir de la limite inférieure de la fréquence Brillouin minimale au seuil de cavitation, on trouve $P^{*'} = -5,6 \text{ bar}$. Il s'agit d'un changement modeste de la valeur de la pression au seuil de cavitation, que nous prenons en compte en écrivant :

$$P^* = -5,7(1) \text{ bar} \quad (5.7)$$

Remarque : il n'est pas surprenant d'avoir $P^* < P^{*'}$. En effet, la fréquence de Brillouin est une mesure de la compressibilité du liquide. À une variation donnée de la densité $\rho^* - \rho_0$, si f_B^* est plus faible (274,5 MHz au lieu de 283 MHz), le liquide devient plus compressible, et il est plus difficile de faire varier la pression.

Comparaison de notre estimation de P^* avec celle obtenue par Qu et al. à partir de l'EoS théorique : Une estimation de P^* a été effectuée par Qu *et al.* [qu2015] à partir de la mesure de ρ^* et de l'EoS théorique de l'hélium métastable[maris2002]. Dans la Réf.[maris2002] il est montré que la ligne d'entropie constante dans le plan $P - T$ passant par le point $(P_{\text{svp}}(T), T = 1 \text{ K})$ est presque verticale pour $-6 \text{ bar} < P < P_{\text{sat}}(1 \text{ K})$. Nous reproduisons les isentropes de l'hélium calculées dans la Réf.[maris2002] sur la Fig.5.11. Ainsi,

3. Comme nous le verrons au chapitre suivant, les effets de moyennage sur la mesure de densité sont négligeables.

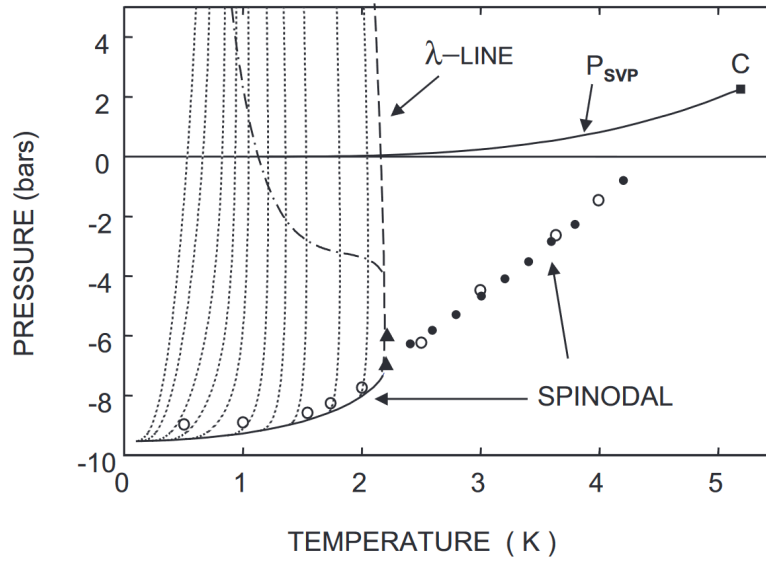


FIG. 5.11 Figure issue de la Réf.[maris2002] : diagramme de phase de l'hélium. La ligne lambda (courbe en pointillés) et la spinodale (courbe pleine) pour la phase superfluide sont calculées comme décrit dans la Réf.[maris2002], à partir de la théorie de la fonctionnelle de la densité développée par Dalfovo *et al.* [dalfovo1995] et de la théorie de Landau où les propriétés thermodynamiques de l'hélium à température finie sont obtenues à partir de la contribution de chacune des excitations élémentaires du fluide. Les courbes en pointillés sont des lignes d'entropie constante pour des entropies de 0,001; 0,002; 0,005; 0,01; 0,02; 0,05; 0,1; 0,2; 0,5; 1,0 et $2 \text{ J.g}^{-1}.\text{K}^{-1}$. La courbe en pointillés est une ligne de densité minimale où le coefficient de dilatation thermique est nul. La spinodale pour le liquide normal (cercles pleins) est issue de l'estimation faite dans la Réf.[hall1997]. La spinodale issue du calcul de Monte Carlo de Bauer *et al.* (Réf. [bauer2000]) est indiquée par les cercles ouverts, et les triangles pleins sont leurs résultats pour la ligne lambda. La courbe indiquant la pression de vapeur saturante P_{svp} et l'emplacement du point critique sont les valeurs expérimentales standard.)

selon cette théorie, la température pendant l'expansion adiabatique du liquide reste presque constante jusqu'au seuil de déstabilisation que nous estimons. Par conséquent, dans cette gamme de pression et en négligeant tout effet thermique lié à la dissipation du son, les vitesses du son adiabatique et isotherme sont approximativement égales. Dans cette approximation, la prédiction de la théorie est que l'EoS à 1 K est essentiellement la même que celle à 0 K. Il est alors possible d'utiliser l'équation d'état théorique disponible à 0 K afin de convertir la mesure de la densité ρ^* au seuil de déstabilisation de la Réf.[qu2015] en une valeur de pression. La valeur obtenue est $P^* = -5,1 \text{ bar}$, en désaccord avec notre estimation de P^* . Un tel désaccord motive une détermination expérimentale précise de l'EoS des états métastables de l'hélium superfluide, par mesure simultanée de la densité et de la fréquence Brillouin. Cette étude fera l'objet du chapitre suivant.

5.3.5 Comparaison de nos résultats avec les mesures effectuées dans l'hélium stable

On trace sur la Fig.5.12 la relation $v(\rho)$ ($T \sim 1$ K) obtenue à pression positive (voir Chap.4) et notre estimation de celle-ci à pression négative dans le cadre des approximations mentionnées dans la section précédente (voir Éq.5.5) : Du côté des pressions positives ($\rho \geq \rho_0 = 145,1 \text{ kg.m}^{-3}$),

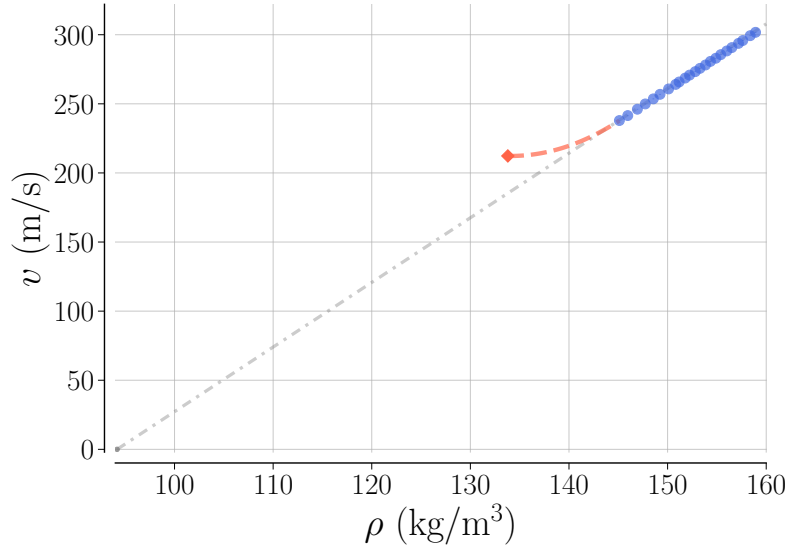


FIG. 5.12 Vitesse du premier son dans l'hélium liquide en fonction de la densité à $T \sim 1$ K. Points bleus : états stables ($P > 0$, voir Chap.4; losange rouge : résultat présenté dans ce chapitre; ligne pointillée : fonction d'ajustement quadratique pour $v(\rho)$ à $P < 0$ (voir texte); ligne pointillée : théorie (ref.[maris2002]).

la vitesse du son est une fonction linéaire de la densité, de coefficient de proportionnalité $\frac{\partial v}{\partial \rho}|_{P>0} \simeq 4,6 \text{ m}^4.\text{s}^{-1}.\text{kg}^{-1}$. Si on considère une relation linéaire à $P < 0$ entre les points de données $(\rho_0, v(\rho_0))$ et $(\rho^*, v(\rho^*))$, on trouve que la pente doit changer en $\frac{\partial v}{\partial \rho}|_{P<0} \simeq 2,8 \text{ m}^4.\text{s}^{-1}.\text{kg}^{-1}$ en passant de $P > 0$ à $P < 0$.

On peut objecter que la dérivée $\frac{\partial v}{\partial \rho}$ doit être continue en $\rho = \rho_0$. Pour éviter ce problème, on utilise une fonction d'ajustement hypothétique $v(\rho)$ quadratique en ρ dans le domaine métastable, passant par les points $(\rho_0, v(\rho_0))$ et $(\rho^*(\Sigma = 1/2), v(\rho^*(\Sigma = 1/2)))$ et avec la pente $\frac{\partial v}{\partial \rho}|_{P>0}$ au point $(\rho_0, v(\rho_0))$, voir la courbe en pointillés rouges sur la Fig. 5.12. Ce faisant, l'intégration du profil quadratique $v(\rho)$ conduit à $P_{quad}^* = -5,5$ bar, non loin de P^* et toujours en nette contradiction avec les estimations précédentes rapportées.

Le désaccord entre notre mesure et l'EoS disponible de l'hélium 4 superfluide métastable déjà mentionné peut être clairement vu sur la Fig.5.12. La courbe en pointillés grise correspond à l'EoS à 0 K de la réf.[maris2002]. Dans la gamme de pression explorée dans la présente expérience, l'EoS théorique à 1 K est essentiellement la même que celle à 0 K. On voit que la valeur de la vitesse du son que nous obtenons dans le domaine de pression négative s'écarte de l'attente de la théorie. Il faut noter que notre mesure suggère que la courbe réelle $v(\rho)$ dans le domaine métastable doit montrer un point d'inflexion pour se replier vers zéro à la limite spinodale où la vitesse du son doit diminuer drastiquement ($v = \gamma v_T$ et $v_T \rightarrow 0$ à la spinodale).

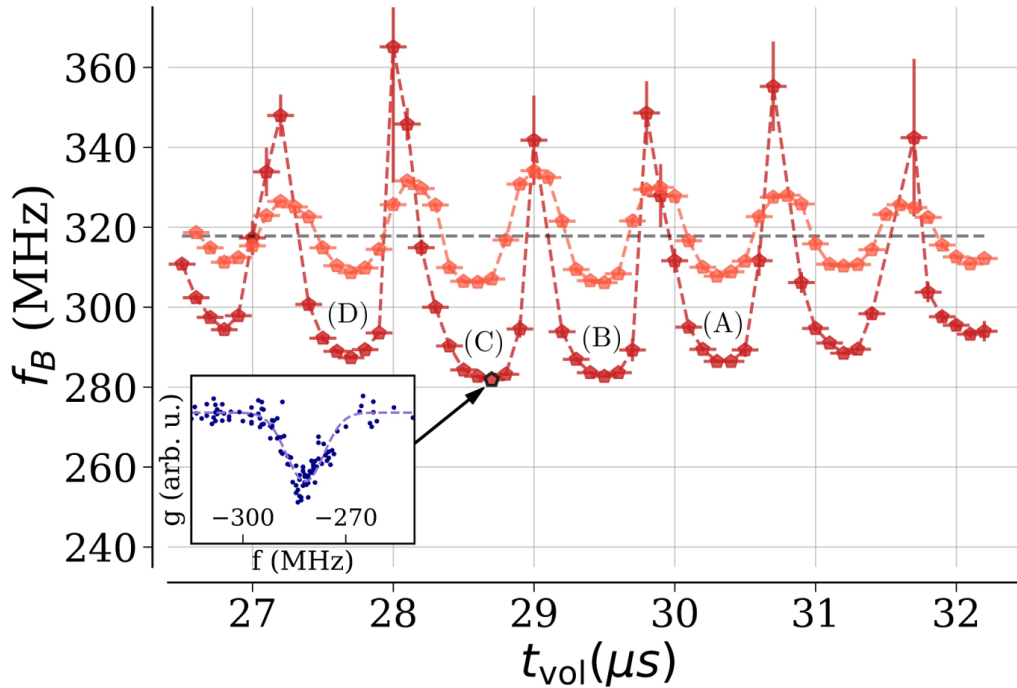


FIG. 5.13 Nous reproduisons ici la Fig.5.8 par commodité pour le lecteur. Évolution temporelle des fréquences Brillouin (f_B) au foyer acoustique. Cercles orange : tension de commande $V = 150$ mV, Cercles rouges : $V = 540$ mV. Les lignes de liaison ponctuelles sont des guides pour l'œil. Ligne pointillée horizontale : valeur statique de la fréquence Brillouin $f_B^0 = 317,8(3)$ MHz. (A), (B), (C), (D) marquent les différentes oscillations négatives locales de la fréquence Brillouin. Encart : Spectre Brillouin obtenu pour $V = 540$ mV à $t = 28,7$ μ s, croix : données, ligne pleine : ajustement gaussien (voir Chap.4).

5.3.6 Instant de création des bulles de cavitation

Notre dispositif nous permet de repérer l'instant t_{vol} auquel se nucléent les premières bulles de cavitation. Le temps auquel la bulle est créée est déterminé par une mesure résolue en temps (\sim ns) du signal de diffusion des lasers par la bulle (l'apparition de la bulle se traduit par une réduction très significative des signaux de transmission des faisceaux pompe et sonde, comme montré sur la Fig.5.5). De manière inattendue, la déstabilisation de l'hélium n'a pas lieu à l'instant t_{vol} correspondant au minimum absolu de $f_B(t_{vol})$ (oscillation (C) sur la Fig.5.8, que nous reproduisons en Fig.5.13 par commodité). La déstabilisation a lieu ~ 2 μ s plus tard, c'est-à-dire deux oscillations plus loin, au niveau d'un autre minimum local de $f_B(t_{vol})$ (oscillation (A)). Au fur et à mesure que V augmente, le moment de la nucléation de la bulle saute d'une période à la précédente.

La Fig.5.14 permet de visualiser ce phénomène. Sur cette figure est représentée le signal recueilli par la photodiode de détection du signal Brillouin après le cryostat. Avant d'être injecté dans la photodiode, le faisceau laser sonde est filtré spatialement, en étant focalisé à travers un sténopé de diamètre 100 μ m afin de s'affranchir des signaux parasites dûs au laser pompe. Le

passage de l'onde sonore, qui modifie l'indice de réfraction de l'hélium, dévie légèrement le faisceau sonde, mais cela n'a qu'une incidence faible sur le signal de détection lorsque la diode est bien injectée à travers le sténopé. On obtient en général des signaux typiques comme celui représenté en violet sur la Fig.5.14 obtenue pour $V = 530$ mV, qui est le signal de fond retranché lors des mesures de gain Brillouin (comme expliqué en sous-section 5.2). Cependant, il est possible de désinjecter volontairement le faisceau sonde lors de son passage à travers le sténopé : le faisceau sonde est alors intercepté par le bord du sténopé, et les fluctuations d'indice de l'hélium dues au passage de l'onde sonore ont alors un effet beaucoup plus notable sur le signal de transmission du laser sonde. On obtient, pour la même tension $V = 530$ mV, le signal représenté en bleu⁴ sur la Fig.5.14. Ainsi, à $V = 550$ mV $> V^*$, la première bulle apparaît sur l'oscillation à $t_0 \sim 30,7$ μ s (qui correspond à l'oscillation (A) de la Fig.5.8). En augmentant la tension de cavitation jusqu'à $V = 600$ mV, on remarque que l'instant t_0 auquel apparaît la bulle saute de l'oscillation (A) à l'oscillation précédente (oscillation (B) : $t_0 \sim 29,8$ μ s). Puis, en continuant d'augmenter la tension V , on observe de nouveau un saut de t_0 de l'oscillation (B) à l'oscillation (C) ($t_0 \sim 28,9$ μ s pour $V = 700$ mV). Enfin, il n'a pas été possible d'explorer des amplitudes de tension au-delà de $V = 1$ V, tension limite à partir de laquelle la câle piézoélectrique peut être endommagée de manière irréversible. Mais quelques bulles ont parfois été observées dans l'oscillation (D) de la Fig.5.8 aux alentours de $t \sim 28$ μ s pour $V \geq 950$ mV.

On représente sur la Fig.5.15 l'évolution du temps d'apparition de la bulle en fonction de l'amplitude de la salve de tension générée par l'AFG.

Remarque 1 : pour être détectée, la bulle doit atteindre une taille de l'ordre du diamètre (ou de l'ordre d'une fraction du diamètre) des faisceaux lasers au niveau du foyer acoustique (~ 15 μ m). Il existe donc un délai entre le temps de création de la bulle et le temps de détection. Un ordre de grandeur d'un tel délai est donné par le rapport du diamètre des faisceaux lasers (ou d'une fraction de leur diamètre) avec la vitesse du son dans l'hélium (ou une fraction de la vitesse du son) qui doit correspondre typiquement à la vitesse d'expansion de la bulle. Cela conduit à un délai typique de l'ordre de 0,1 μ s, bien plus faible que la période de l'onde acoustique et qui ne suffit pas à expliquer le délai de 2 μ s observé. Cet ordre de grandeur est cohérent avec la mesure de t_0 : une observation attentive montre un décalage de quelques fractions de microseconde entre t_0 et le temps correspondant au minimum de l'oscillation dans laquelle la bulle est créée.

Remarque 2 : une question peut se poser : pourquoi ce phénomène inattendu (apparition de la bulle de cavitation 2 μ s après le minimum absolu de l'enveloppe de l'onde sonore) n'a-t-il pas été observé lors des expériences de mesure du profil de densité au foyer de l'onde acoustique effectuées par l'équipe il y a quelques années[qu2015] ? En 2015, le temps auquel la bulle est créée n'avait pas été directement étudié par l'équipe. La mesure du seuil de cavitation avait été obtenue en détectant les bulles après un temps d'expansion de 10 μ s (qui correspond à un rayon de 100 μ m pouvant être aisément détecté par une caméra).

Remarque 3 : qu'en est-il des expériences effectuées par d'autres équipes ? Plusieurs études de la cavitation dans l'hélium résolues en temps ont été menées par l'équipe de S. Balibar. Dans la

4. Remarquons au passage qu'un tel signal contient des informations sur les variations de l'indice de réfraction induites par l'onde sonore. Mais la forme de ce signal dépend beaucoup de la manière dont le faisceau est désinjecté du sténopé, et rend difficile toute mesure quantitative. Cependant, cela illustre qualitativement le phénomène de saut temporel dans l'apparition des bulles de cavitation lorsque V augmente.

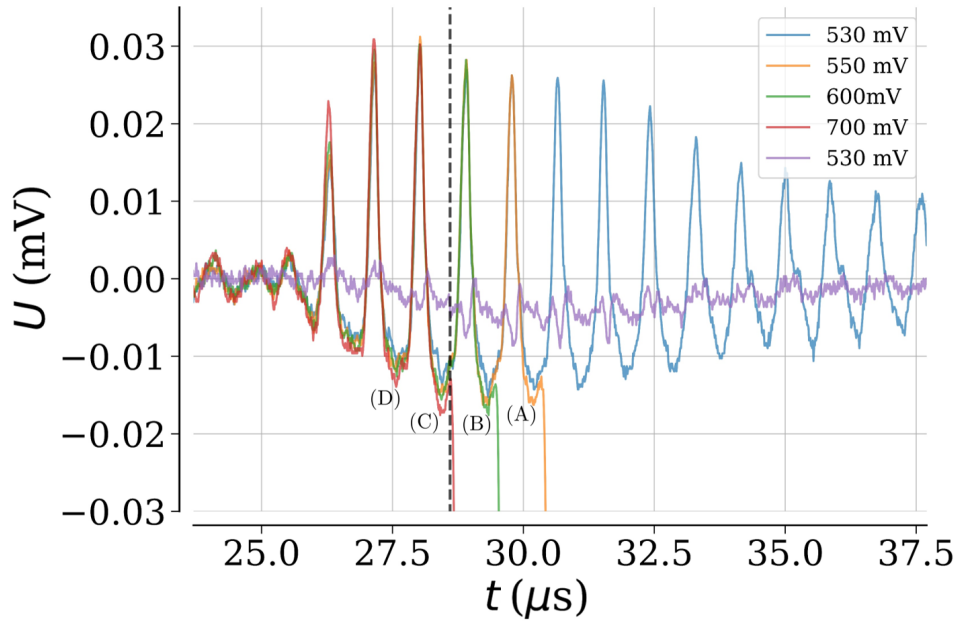


FIG. 5.14 Profil temporel du signal de transmission du faisceau sonde à travers le cryostat. En violet : profil temporel typiquement obtenu lorsque le faisceau sonde est bien injecté à travers le sténopé situé avant la photodiode de détection (voir Fig.4.3), pour une tension d'alimentation de l'émetteur piézoélectrique d'amplitude $V = 530$ mV. Autres couleurs : profil temporel du signal de transmission du faisceau sonde lors d'un désalignement volontaire à travers le sténopé, obtenu pour différentes tensions d'alimentation V . Le trait noir correspond à $t_{\text{vol}} = 28,6$ μs , soit le temps auquel nous avons mesuré la fréquence Brillouin la plus petite.

Réf.[chavanne2002], l'équipe de S. Balibar étudie la cavitation dans l'hélium proche d'une plaque de verre à l'aide d'un émetteur piézoélectrique hémisphérique alimenté par des salves d'excitation de 6 oscillations. La pression statique du bain d'hélium est de 2,04 bar et sa température est de 0,2 K. L'amplitude de l'onde sonore est déterminée à partir du coefficient de réflectivité de la lumière à l'interface entre la plaque et l'hélium. Pour des amplitudes sonores élevées, des variations abruptes sont observées, caractéristiques de l'apparition de bulles de cavitation. De manière inattendue⁵, proche de la plaque de verre l'hélium cavite à des amplitudes sonore bien moins élevées, de l'ordre de -2,7 bar. Dans ces conditions, il est observé que la cavitation a lieu au minimum absolu de l'amplitude de l'onde sonore. Cependant, il est difficile de comparer ces observations avec les nôtres dans la mesure où la barrière de nucléation ait pu être abaissée par autre chose que par la présence de vortex.

Dans une étude menée par Werner *et al.* [werner2004] (équipe de S. Balibar), la cavitation est étudiée lorsque la pression statique de l'hélium est proche de la pression de solidification (~ 25 bar) et pour des températures inférieures à 1 K. La cavitation semble avoir lieu au minimum de l'amplitude de l'onde sonore. Lorsque V_c augmente, on observe bien un saut du temps auquel la bulle de cavitation apparaît, d'une oscillation à l'oscillation précédente. La détermination du

5. Ce résultat est inattendu car l'hélium mouille parfaitement le verre : il n'existe *a priori* pas de sites de nucléation, comme des poches de gaz piégées à l'interface.

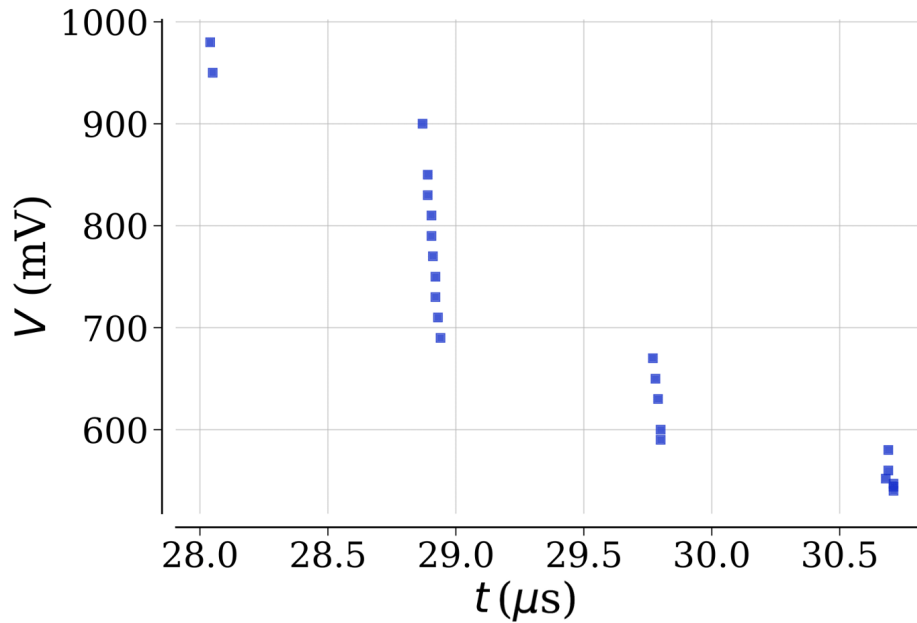


FIG. 5.15 Temps auquel est détecté la bulle pour différentes valeurs d'amplitude de tension V . Le temps de départ de la bulle est déterminé à partir du signal de transmission du faisceau sonde à travers le cryostat.

temps d'apparition de la bulle est effectuée à partir d'une évaluation du temps mis par l'onde sonore pour atteindre le foyer acoustique. Une calibration bien plus précise du temps de vol sera effectuée dans l'étude de Ishiguro *et al.* [ishiguro2006] (équipe de S. Balibar également), où un émetteur piézoélectrique de forme sphérique est cette fois utilisé. L'origine des temps est calibrée à partir d'une détermination précise du rayon de l'émetteur, basée sur l'étude des échos de l'onde sonore sur les parois de la sphère. Dans cette nouvelle étude, le résultat semble identique : à des pressions statiques proche de la pression de solidification de l'hélium (et à une température de 0,6 K) la cavitation semble avoir lieu au minimum de l'amplitude de l'onde sonore.

5.3.7 Mesures de f_B au-delà du seuil de déstabilisation ($V > V^*$)

Pour $V > V^*$, il est encore possible de mesurer les fréquences Brillouin dans les oscillations précédant celle dans laquelle la bulle s'est nucléée. Pour V légèrement supérieur à V^* , la nucléation a lieu dans l'oscillation (A) mais on peut continuer à faire des mesures avant l'instant d'apparition de la bulle, et en particulier dans les oscillations (B), (C), (D) où l'hélium est encore entièrement liquide. Des mesures sont présentées sur la Fig.5.16. Les points de données bleus, jaunes, rouges et gris correspondent respectivement aux mesures de f_B effectuées dans les minima locaux associés aux oscillation (A), (B), (C), (D) sur la Fig.5.8. Les différents symboles correspondent à des campagnes de mesure indépendantes. De la ligne bleue à la ligne jaune, la bulle se forme dans l'oscillation (A), mais il est possible de continuer à faire des mesures dans les autres oscillations.

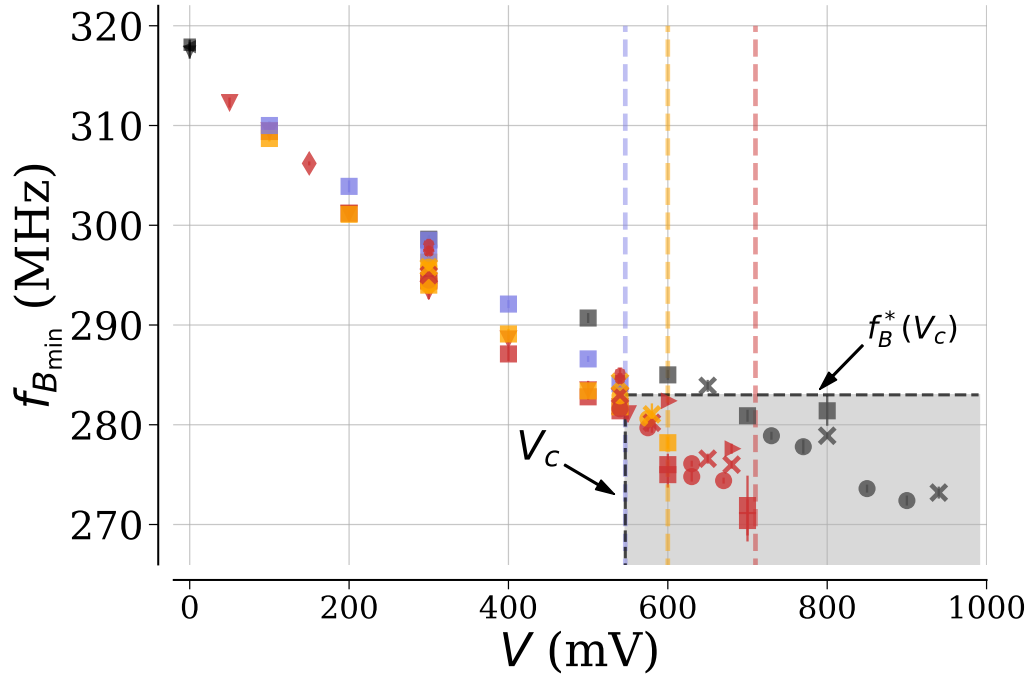


FIG. 5.16 Les minima temporels locaux des fréquences de Brillouin $f_{B_{min}}$ en fonction de la tension de commande de l'AFG notée V . Symboles bleu, jaune, rouge, gris : fréquence Brillouin minimale de l'oscillation (A), (B), (C), (D) respectivement (voir Fig.5.8). Les différents symboles (croix, carrés, losanges, cercles, triangles) correspondent à différentes campagnes de mesure. Lignes pointillées verticales : voir texte.

De la ligne jaune à la ligne rouge, elle se forme dans l'oscillation (B) et au-dessus de la ligne rouge elle se forme dans l'oscillation (C).

Pour $\Sigma = 1/2$ (*i.e.* $V = V^*$), le minimum absolu f_B^* de $f_B(t)$ est atteint dans l'oscillation (C) et correspond à une réduction d'environ $\sim 11\%$ de la fréquence Brillouin de l'état stable f_B^0 .

Discussion autour la définition du seuil de cavitation : Dans la zone grisée de la Fig.5.16, où la probabilité de détection des bulles est de 1, les fréquences Brillouin mesurées sont inférieures à f_B^* . Cela remet en question la façon dont le seuil de cavitation est communément défini dans les expériences où les états métastables sont créés acoustiquement. Dans un scénario simple où la pression diminuerait de façon quasi-statique, on pourrait penser que les bulles se nucléent lorsque le minimum absolu de f_B (ou de ρ ou de P) est atteint. Or ce n'est pas le cas. C'est pourquoi nous nous sommes jusqu'à maintenant gardés de parler de "pression de cavitation" et avons appelé P^* la pression de **déstabilisation** du liquide. Mais la pression P^* que nous avons estimée correspond à la pression dans l'oscillation (C) au moment où les premières bulles se nucléent dans l'oscillation (A). La pression P^* ne correspond donc pas à une pression de cavitation à proprement parler. Il convient à partir de maintenant de distinguer la pression du fluide dans l'oscillation (A) de la pression du fluide dans l'oscillation (C) (où f_B et ρ atteignent leur minimum absolu).

On notera $P_c^{(A)}$ le minimum local de pression dans l'oscillation (A) pour des tensions V juste en-dessous du seuil auquel la cavitation a lieu dans l'oscillation (A). On note de même $P_c^{(C)}$ le minimum local de pression dans l'oscillation (C) pour des tensions V juste au-dessous du seuil auquel la cavitation se produit dans l'oscillation (C). On continue de noter P_c la valeur théorique de pression de cavitation statique attendue dans l'hélium.

5.3.8 Estimations des pressions de cavitation dans les oscillations (A) et (C)

Pression de cavitation $P_c^{(A)}$ atteinte dans l'oscillation (A) : La cavitation a d'abord lieu dans l'oscillation (A). La fréquence de Brillouin minimale atteinte dans l'oscillation (A) est de 286 MHz. En utilisant notre extrapolation linéaire $f_B(\rho)$ et l'Éq.(5.7), nous pouvons estimer la pression correspondante. Nous trouvons $P_c^{(A)} = -5,3$ bar.

Cette valeur est en nette contradiction avec celle rapportée dans la réf.[caupin2001] ($-10 < P_c < -8$ bar pour $T_{\text{cell}} \sim 1$ K). Elle est également en contradiction avec les estimations théoriques de la pression de cavitation homogène à 1 K : $P_c \sim -7$ bar [xiong1991, guilleumas1993, jezek1993].

Pression de cavitation $P_c^{(C)}$ atteinte dans l'oscillation (C) : Il est dès lors intéressant, en poursuivant les mesures de f_B pour $V > V^*$, de chercher le minimum absolu pouvant être atteint pour la pression. Un tel minimum est atteint dans l'oscillation (C), qui correspond au minimum absolu de l'enveloppe des variations de f_B . On a déjà vu que, tandis que la cavitation a lieu dans l'oscillation (A) pour $P_c^{(A)} = -5,3$ bar, l'hélium reste stable dans l'oscillation (C) où la pression est plus faible ($P^{(C)} = P^* = -5,7$ bar). D'après la Fig.5.16, juste avant le seuil de cavitation dans l'oscillation (C) (trait pointillé rouge) f_B vaut 271 MHz. Cette valeur correspond également au minimum absolu de f_B dans l'onde sonore. Convertie en valeur de pression à l'aide de l'Éq.(5.7), on trouve une pression associée $P_c^{(C)} = -7,4$ bar. Il est intéressant de noter que cette valeur est proche des estimations théoriques de la pression de cavitation homogène à 1 K ($P_c \sim -7$ bar [xiong1991, guilleumas1993, jezek1993]).

Plusieurs pistes sont envisagées pour interpréter la raison pour laquelle la cavitation n'a pas d'abord lieu au minimum absolu de $f_B(t)$, ainsi que les valeurs obtenues pour $P_c^{(A)}$ et $P_c^{(C)}$.

5.3.9 Interprétation des résultats

Effet possible de la variation de température du liquide : Une explication possible est que la température de l'hélium 4 liquide au foyer augmente en fonction du temps pendant l'exposition à l'onde sonore. En effet, il y a atténuation du son à 1 MHz et à 1 K[jeffers1965], ce qui peut modifier la température. La nucléation se produirait lors de l'oscillation (A) plutôt que l'oscillation (C), car la température atteinte pendant l'oscillation (A) serait plus élevée que pendant l'oscillation (C). Pour une tension plus élevée, les effets thermiques sont plus prononcés, le taux de chauffage du liquide est plus important, et la cavitation se déclenche de plus en plus tôt. La valeur $P_c^{(A)} = -5,3$ bar trouvée dans l'oscillation (A), correspond à la valeur théorique de la pression de cavitation à 1,5 K[xiong1991, guilleumas1993, jezek1993]. Ainsi, nous devons invoquer une élévation de température de $\sim 0,5$ K pour que les effets thermiques rendent compte de cette valeur de pression de cavitation.

De tels effets thermiques ont déjà été évoqués dans les études de Lambare *et al.* [lambare1998] (équipe de S. Balibar et F. Caupin) : la tension d'alimentation $V = V^*$ nécessaire pour la création des bulles de cavitation est étudiée en fonction de la température. De légères variations de $V^*(T)$ (variations relatives $\sim 1\%$) autour de 0,8 K ont été interprétées comme pouvant provenir de l'échauffement du liquide au niveau du foyer acoustique.

Il est difficile d'estimer quantitativement le rôle joué par ces effets thermiques dans le processus de cavitation à partir de la seule mesure de $f_B(t)$. Mais cette piste motive une mesure simultanée de $\rho(t)$ et $f_B(t)$ à différentes températures, avec notamment pour objectif de comparer l'équation d'état obtenue à pression positive par rapport à celle attendue (des écarts à l'équation d'état à pression positive pourront alors être interprétés comme résultant de ces effets thermiques).

Effet possible des vortex : Un autre scénario possible est que l'onde acoustique crée des vortex en se propageant dans le liquide. Ceux-ci peuvent jouer le rôle de sites de nucléation. Il pourrait donc y avoir nucléation hétérogène sur ces vortex, comme proposé par Maris dans la Réf.[maris1994]. Il est intéressant de noter que l'estimation de pression de cavitation dans l'oscillation (A) $P_c^{(A)} = -5,3$ bar est compatible avec ce scénario de cavitation assistée par des vortex. À 1 K, pour des densités de vortex qu'il est raisonnable de considérer dans ce type d'expérience, Maris prédit que la pression de cavitation P_c^{vortex} vérifie : $-5,8 < P_c^{\text{vortex}} < -5,1$ bar[maris1994]. Si un tel scénario s'avère vrai, la méthode d'extrapolation de la Réf.[caupin2001] est discutable puisque la création de vortex n'est pas considérée dans le mécanisme de nucléation. Cela peut ainsi expliquer le désaccord entre nos mesures et celles de la Réf.[caupin2001]. Comme pour les effets thermiques, pour une tension plus élevée, les vortex sont créés à un taux plus élevé et la cavitation a lieu plus tôt. Pour approfondir ces possibilités, une étude systématique des fréquences Brillouin des états métastables en fonction du nombre d'impulsions acoustiques et du taux de répétition de l'excitation acoustique serait intéressante.

Interprétation de la valeur obtenue pour $P_c^{(C)}$. On a vu précédemment que la valeur de cavitation obtenue dans l'oscillation (C) est proche de celle attendue dans le cadre de la nucléation homogène. On peut l'interpréter comme suit. Pour $V > V^*$, la cavitation se produit plus tôt dans l'onde, et nous nous attendons à ce que les effets thermiques ou ceux liés à la présence des vortex soient moins importants à des temps plus courts. On est alors plus proche des conditions de cavitation homogène à 1 K.

Conclusion

Le spectromètre à gain Brillouin stimulé que nous avons développé nous a permis d'effectuer les premières mesures de fréquence Brillouin dans l'hélium superfluide métastable autour de 1 K. Nous avons pu mesurer l'évolution temporelle de la fréquence Brillouin $f_B(t)$ au niveau du foyer acoustique (de taille typique ~ 100 μm), et en particulier à des instants où la pression devient négative dans cette région.

Les mesures de $f_B(t)$ conduisent à deux résultats significatifs :

- D'une part, la valeur de la fréquence Brillouin au seuil de déstabilisation n'est pas compatible avec la valeur de la densité mesurée au même seuil[qu2015] lorsque ces deux valeurs sont liées par une équation d'état (EoS) théorique bien établie pour l'hélium liquide à des

pressions négatives et à 0 K. Ce désaccord avec l'EoS théorique est notamment illustré par le tracé $v(\rho)$ (Fig.5.12) qui montre un écart significatif entre expérience et théorie. Cela peut suggérer par exemple que la dépendance en température de l'EoS pourrait être plus prononcée que ce qui est attendu théoriquement.

- D'autre part, grâce à nos mesures résolues en temps, nous constatons qu'il est possible de sonder l'hélium superfluide métastable au-delà du seuil de cavitation tel qu'il est communément défini dans ce type d'expérience. La cavitation n'a pas lieu à l'instant correspondant au minimum absolu de la courbe $f_B(t)$, mais deux périodes plus tard. Lorsque la tension d'alimentation V augmente, la cavitation a lieu plus tôt dans l'onde sonore. Ceci nous a conduit à prendre du recul par rapport à la définition communément admise du seuil de cavitation dans les expériences où les états métastables sont créés acoustiquement. Nous avons ainsi pu distinguer deux seuils de cavitations : un premier seuil correspond à la cavitation dans l'oscillation (A) (voir Fig.5.8) où la cavitation a lieu en premier, qui est à distinguer du seuil de cavitation dans l'oscillation (C) où le minimum absolu de $f_B(t)$ (et donc de ρ et de la pression) est atteint.

Nous avons pu faire quelques estimations de la pression atteinte à la cavitation. Nous obtenons des seuils de cavitation dans l'oscillation (A) et (C) : $P_c^{(A)} = -5,3$ bar et $P_c^{(C)} = -7,4$ bar. Ces deux résultats, ajoutés à ceux présentés au Chap.1, Fig.1.6, sont présentés sur la Fig.5.17.

Plusieurs pistes ont été envisagées pour expliquer ces résultats. La piste que nous privilégions est que la cavitation est assistée par la création de vortex lors du passage de l'onde sonore. L'estimation du seuil de cavitation dans l'oscillation (A) est en effet cohérente avec des calculs effectués par H. Maris prenant en compte la présence de vortex[maris1994]. Le seuil de cavitation dans l'oscillation (C) est proche du seuil attendu dans le cas de la nucléation homogène[jezek1993].

Après ces premiers résultats encourageants de mesure de $f_B(t)$, nous nous tournons naturellement vers la mesure expérimentale de l'EoS de l'hélium superfluide métastable à $T \sim 1$ K, qui permettra sans doute d'y voir plus clair. L'EoS $P(\rho)$ peut être déterminée par mesure **simultanée** de $f_B(t)$ et $\rho(t)$. Ces mesures feront l'objet du chapitre suivant.

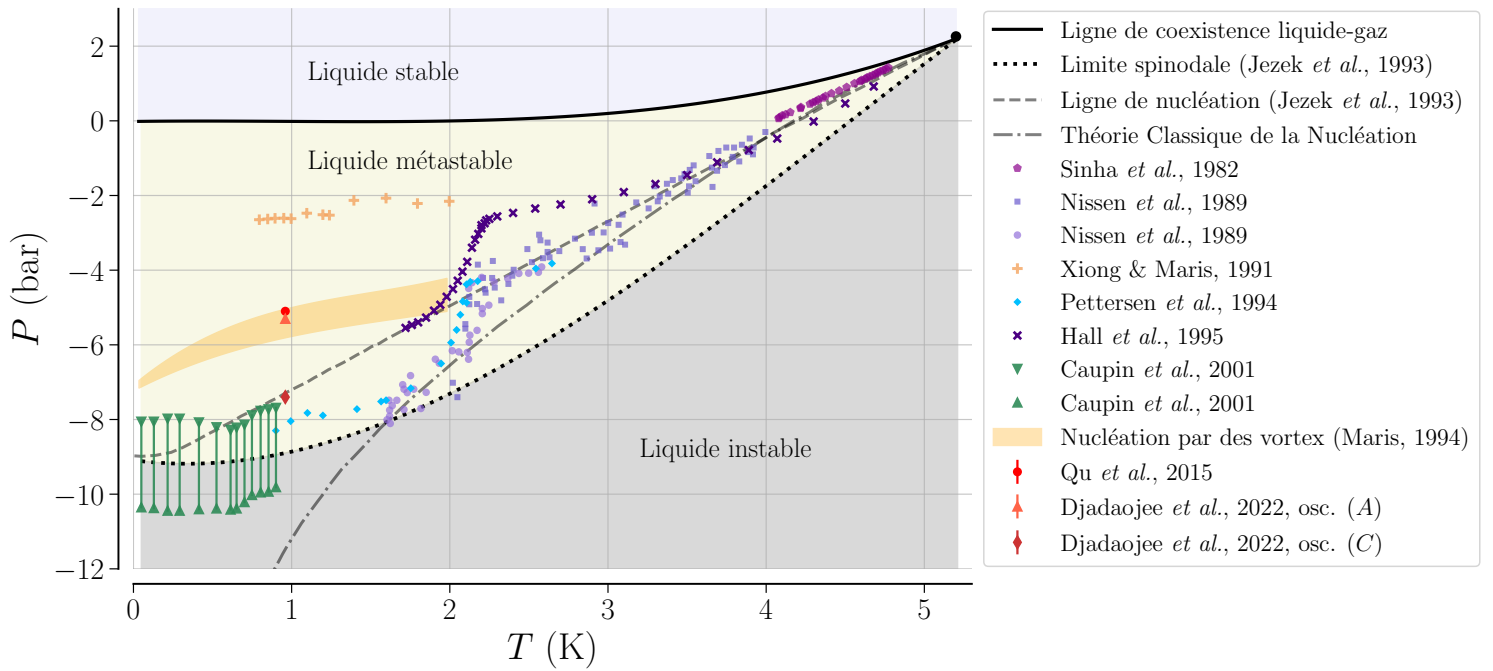


FIG. 5.17 Nous reprenons ici la Fig.1.6 (voir Chap.1) complétée par les deux estimations de P_c réalisée à partir des mesures de la fréquence Brillouin et de la densité au seuil de cavitation. La pression de cavitation estimée dans l'oscillation (A) est cohérente avec un mécanisme de nucléation assistée par des vortex, tandis que la pression de cavitation estimée dans l'oscillation (C) est plus proche de la valeur attendue dans le cadre de la nucléation homogène.

6 – Détermination expérimentale de l'équation d'état de l'hélium 4 superfluide métastable

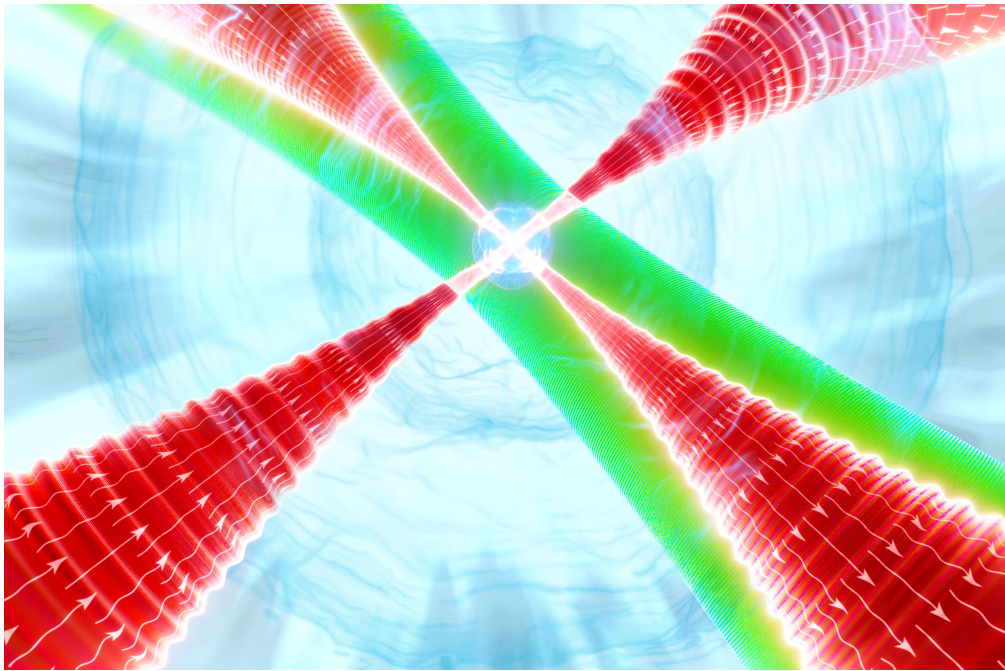


FIG. 6.1 Vue d'artiste de la technique de mesure simultanée de la densité et de la fréquence Brillouin de l'hélium métastable. Les cercles concentriques bleus représentent l'onde sonore utilisée pour créer les états métastables. La région métastable est au niveau du foyer acoustique. Les lasers rouges sont les laser Brillouin utilisés pour la mesure de la fréquence Brillouin. Le laser vert représente un des faisceaux de l'interféromètre décrit dans ce chapitre : la mesure du déphasage induit par les modulations de densité dans l'onde sonore permet de remonter à la densité de l'hélium. Crédit image : Mathieu Djadaojee, mathieudjadojee.com

Sommaire

6.1 Principe de la mesure de densité	115
6.1.1 Indice de réfraction et densité de l'hélium liquide	116

6.1.2	Description du banc optique de la mesure de densité . . .	116
6.2	Mesure simultanée de $f_B(t)$ et de $\rho(t)$	122
6.2.1	Description du banc optique	122
6.2.2	Premiers résultats	124
6.2.3	Sélection et traitement des données	126
6.3	Résultats	127

Introduction

Nous avons présenté dans les chapitres précédents le spectromètre Brillouin stimulé nous ayant permis de déterminer la fréquence Brillouin f_B au sein des états métastables de l'hélium. Par ailleurs l'équipe a développé il y a quelques années un dispositif interférométrique permettant de mesurer les variations de densité ρ au sein de l'onde acoustique focalisée dans l'hélium pour créer les états métastables. Dans ce chapitre nous présentons la mise en place d'une mesure **simultanée** de f_B et de ρ à $T \sim 1$ K au sein des états métastables de l'hélium 4, pour des pressions allant de -1 bar à 1 bar.

Principe de la détermination expérimentale de l'équation d'état : Dans le chapitre 4 section 4.3.1 nous avons présenté une mesure optique de l'équation d'état de l'hélium superfluide stable à $T \sim 1$ K par mesure de la fréquence Brillouin f_B en fonction de la pression statique P de l'hélium. Dans le cas de la détermination de l'EoS des états métastables ($P < 0$), on ne peut mesurer directement les variations de pression au sein de l'onde sonore. On cherche alors à mesurer la dépendance de f_B en fonction de la densité ρ (mesurée par interférométrie optique). On a :

$$P(\rho) - P(\rho_0) = \int_{\rho_0}^{\rho} v^2(\rho') d\rho' = \int_{\rho_0}^{\rho} v^2(\rho_0) \frac{f_B^2(\rho')}{f_B^2(\rho_0)} \frac{n^2(\rho_0)}{n^2(\rho')} d\rho' \quad (6.1)$$

L'intégration se fait cette fois par rapport à ρ , et on remarque que, contrairement au cas statique, c'est le terme $v^2 = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_S$ à entropie constante qui doit être intégré (et non $\left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_T$ comme au Chap.4). En effet, les états métastables étant produits au sein d'une onde sonore, ils sont créés à entropie constante.

Dans la suite, nous présenterons le dispositif interférométrique permettant de mesurer la densité ρ au sein de l'hélium (section 6.1), puis nous présenterons la méthode de mesure simultanée de f_B et de ρ au sein de l'hélium métastable (section 6.2). Enfin, nous présenterons les résultats de la détermination expérimentale de l'EoS de l'hélium superfluide métastable à 1 K, pour des pressions descendant jusqu'à -1 bar (section 6.3).

6.1 Principe de la mesure de densité

Il y a quelques années, le groupe a mis au point une technique d'imagerie interférométrique multiphase, quantitative et résolue en temps pour mesurer la densité d'un milieu à l'intérieur d'une onde sonore à symétrie cylindrique[souris2010]. Cette technique a été utilisée pour mesurer

la densité des états métastables de l'hélium 4 liquide et solide. Nous présentons dans cette section le principe de la mesure. Pour plus de détails sur le principe de cette technique, on pourra consulter la thèse de mon prédécesseur Fabien Souris[souris2015].

6.1.1 Indice de réfraction et densité de l'hélium liquide

L'onde acoustique qui crée les états métastables introduit une variation de densité $\delta\rho$ qui module l'indice de réfraction n de l'hélium (principalement dans le foyer acoustique) d'une quantité notée δn . L'indice de réfraction n de l'hélium peut être reliée à la densité ρ par la relation de Clausius-Mossoti :

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = \frac{4\pi}{3} \frac{\alpha}{M} \rho \quad (6.2)$$

où $M = 4,0026 \text{ g.mole}^{-1}$ [ncbi2020] est la masse molaire de l'hélium 4 et $\alpha = 0,1236(3) \text{ cm}^3.\text{mole}^{-1}$ sa polarisabilité molaire à 532 nm[ncbi2020, harris1970]. Dans la limite $n \sim 1$, qui est une très bonne approximation pour l'hélium liquide, cette relation peut être écrite :

$$\frac{\delta\rho}{\rho_0} = \frac{\delta n}{n_0 - 1} \quad (6.3)$$

où ρ_0 et n_0 sont la densité et l'indice de réfraction du liquide non perturbé (sans onde acoustique). On a $\rho_0 = 145.1202(3) \text{ kg/m}^3$ [donnelly1998], et l'Éq.(6.2) permet de déterminer $n_0 = 1.0277(5)$. La mesure de δn permet donc de remonter à la densité via la relation :

$$\rho = \rho_0 \left(1 + \frac{\delta n}{n_0 - 1} \right) \quad (6.4)$$

Une telle variation d'indice δn peut être mesurée : la variation d'indice donne lieu à un déphasage optique lors de la traversée du milieu par la lumière, qui peut être mesuré par interférométrie.

6.1.2 Description du banc optique de la mesure de densité

Interféromètre de Jamin : La Fig.6.2(a) présente le banc d'optique associé à la mesure de densité dans l'hélium 4. La source de lumière est un laser Nd :YAG impulsif (laser Quantel CFR200, $\lambda = 532 \text{ nm}$, 137 mJ par impulsion, durée des impulsions de 8 ns, fréquence de répétition 20 Hz, puissance instantanée $P = 17 \text{ MW}$, données constructeur). Le faisceau est atténué un million de fois en sortie du laser par des réflexions vitreuses successives au sein d'une lame épaisse. Le diamètre du faisceau est de l'ordre du centimètre.

L'interféromètre utilisé est un interféromètre de Jamin, constitué de deux lames épaisses, parallèles entre elles. La face arrière des lames est un miroir (réflectivité $> 99,5\%$). Les lames en verre crown BK7, d'indice optique $n(@532\text{nm}) = 1,519$, leur diamètre est de 50 mm et leur épaisseur est de 15,75 mm.

On représente le trajet de la lumière sur la Fig.6.2. Des réflexions multiples ont lieu à l'intérieur des lames, on ne considère que la réflexion de premier ordre à l'intérieur de la lame. L'angle d'incidence des faisceaux sur les lames est de 45° , et le coefficient de réflexion est de $R = 9,6\%$. La lumière est ainsi séparée par la première lame en deux bras, d'intensité relative $R(1 - R)$ et R par rapport à l'intensité en entrée. Un des deux bras de l'interféromètre (bras (1)) passe par la région de l'hélium liquide traversé par l'onde sonore et subit ainsi une variation de phase associée à l'existence de la modulation de la densité du liquide. L'autre bras (bras (2)), qui est le faisceau de référence, passe par une région non affectée par l'onde sonore. La séparation d entre

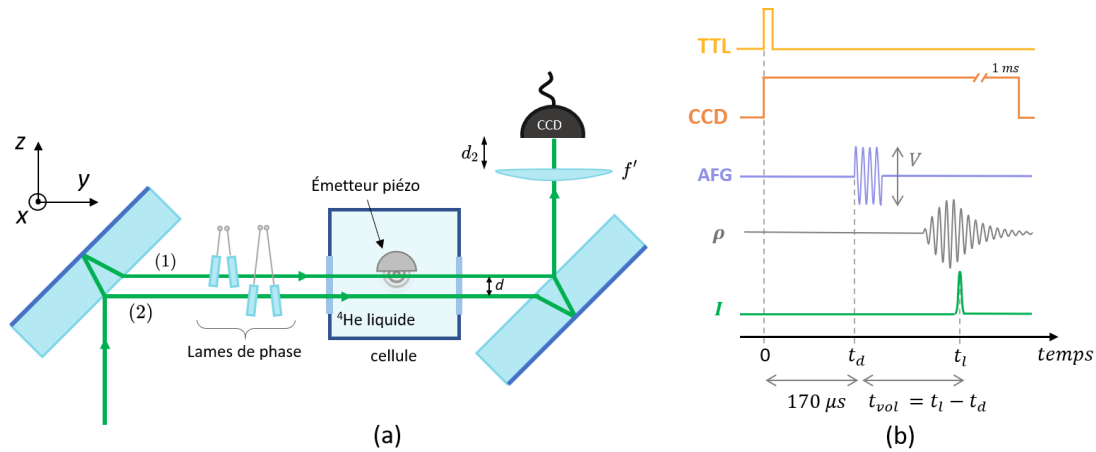


FIG. 6.2 (a) Schéma de l'interféromètre de Jamin et du banc d'optique permettant de mesurer les variations d'indice optique au sein des états métastables de l'hélium, voir texte. (b) Séquence temporelle de la mesure de densité. Jaune : Signal d'horloge TTL 10 Hz synchronisé avec l'horloge interne de la source laser (laser impulsionnel avec une fréquence de répétition de 20 Hz). Rouge : signal permettant de déclencher l'acquisition par la caméra CCD. Bleu : tension d'excitation de l'émetteur piézoélectrique (amplitude V , fréquence $f_{ac} \sim 1$ MHz). Gris : allure de l'amplitude de l'onde sonore au niveau du foyer acoustique. Vert : Intensité I du laser impulsionnel utilisé pour la mesure interférométrique.

les deux bras est directement reliée à l'angle d'incidence (45°) et l'indice optique des lames, et vaut 11,7 mm.

L'avantage de l'interféromètre de Jamin par rapport à d'autres interféromètres est l'utilisation d'un nombre limité d'optiques (seulement deux lames). Cela simplifie l'alignement des optiques, et rend le système plus robuste aux variations de phases dues aux vibrations mécaniques du banc optique (vibrations liées au système de refroidissement de l'hélium).

La technique interférométrique *multiphase* consiste à faire varier la phase du faisceau de référence par rapport à la phase du faisceau passant par l'objet de phase. Dans les interféromètres classiques comme l'interféromètre de Michelson ou de Mach-Zehnder, la phase du faisceau de référence est modifiée en translatant un des miroirs de l'interféromètre. Une telle méthode ne peut être utilisée ici. Pour changer la phase du faisceau de référence, on utilise des lames de phase, représentées sur la Fig.6.2. Il s'agit de lames transparentes (4 mm d'épaisseur, 40 mm de diamètre, planéité $\lambda/5$) placées le long du trajet du faisceau de référence. Les lames ne sont pas parallèles, et forment un angle α qui peut être modifié. Lorsque α augmente, le laser traverse une plus grande épaisseur de verre, ce qui change la longueur optique. Un dispositif automatisé permet de changer l'angle entre les lames de 5° à $6,5^\circ$, ce qui correspond à un déphasage entre les faisceaux pouvant varier de 0 à 20π avec un pas de 1 μ rad.

Remarque : une lame, tournée d'un angle α , pourrait suffire pour induire un tel déphasage. Mais une seule lame a pour effet de translater le faisceau. L'utilisation d'une deuxième lame symétrique à la première permet de compenser ce déplacement transverse.

La longueur de cohérence du laser étant courte (7 mm[souris2015]), on place une autre paire de lame de phase sur le bras (1) pour réduire la différence de phase entre les deux faisceaux. En

revanche, on ne modifie pas l'angle ($\sim 5,5^\circ$) entre les lames de phase du bras (1).

Système d'imagerie du plan focal acoustique : Un objectif permet de faire l'image du "plan focal acoustique" (défini comme le plan parallèle à (xOz) et passant par le foyer acoustique) sur une caméra CCD (*Andor Luca R*, taux d'acquisition 10Hz, 1004 x 1002 pixels de taille $8 \mu\text{m} \times 8 \mu\text{m}$). Les pixels des images recueillies par la caméra CCD sont regroupés¹ en groupe de 4 pixels (carrés de 2x2 pixels de taille $16\mu\text{m} \times 16\mu\text{m}$), ce qui permet de réduire la taille des données enregistrées tout en recueillant des images dont les pixels sont de taille inférieure à la taille de résolution du système d'imagerie. L'objectif est constitué de deux lentilles (convergente et divergente) biconvexes placées tête-bêche, dont la distance focale équivalente est $f' = 207 \text{ mm}$. La lentille a été conçue de manière à ce que les aberrations et la diffraction ne limitent pas la résolution de l'interféromètre à plus de $25 \mu\text{m}$, ce qui est suffisant compte-tenu de la longueur d'onde du son dans l'hélium $\lambda \sim 200 \mu\text{m}$. La caméra n'est pas capable de prendre des images à un taux d'acquisition permettant de suivre l'évolution temporelle de l'indice de réfraction au cours du temps ($f_{ac} \sim 1 \text{ MHz}$). On tire alors partie de la répétabilité de la production des ondes sonores et des perturbations qu'elles créent. L'horloge interne du laser à 20 Hz sert de référence pour la synchronisation des appareils de mesure. Les impulsions lasers sont émises à un instant t après un signal d'horloge TTL, voir Fig.6.2(b). Les impulsions lasers de la source sont très courtes ($\tau_0 \sim 8 \text{ ns} \ll f_{ac}$). Les images enregistrées par la caméra CCD peuvent donc être considérées comme des "instantanés" du champ acoustique. En utilisant l'AFG, nous pouvons changer le temps t_d , ce qui permet de changer le temps auquel $t_{\text{vol}} = t_1 - t_d$ est sondé le profil d'indice de réfraction. En changeant t_d on est ainsi capable d'enregistrer un "film" des variations d'indice optique. On fait plusieurs mesures espacées en temps de $\delta t = 0,05 \mu\text{s}$ (ce qui correspond à 1% de la durée de la région métastable).

Mesure du grandissement du nouveau banc optique : Un des paramètres essentiels pour remonter au profil de densité à partir des images prises par la caméra CCD est la mesure du grandissement du système d'imagerie. Lors des travaux de mes prédécesseurs, la lentille était placée à $d_1 = 319 \text{ mm}$ du plan objet et à $d_2 = 640 \text{ mm}$ du plan image, et le grandissement du système était d'environ -2. Il a été nécessaire de modifier la position des lentilles pendant mon travail de thèse afin de pouvoir également placer les optiques liées à la mesure de fréquence Brillouin autour du cryostat. On fait une mesure du nouveau grandissement à partir d'une mire sinusoïdale² (voir Fig.6.3). Les fréquences spatiales des motifs sinusoïdaux de la mire sont étalonnées par le fabricant.

Le cryostat est démonté, et la mire est placée au niveau du point de focalisation de l'onde sonore (voir Fig.6.4). On prend des photographies de la mire avec la caméra CCD *Andor*. Un ajustement des motifs sinusoïdaux de la mire permet de mesurer d'une part le grandissement du système optique, et d'autre part le contraste associé à chaque motif. On mesure le contraste des motifs pour différentes positions de la caméra, ce qui permet de déterminer le plan image de la mire. Lorsque la mise au point est effectuée, on trouve un grandissement $\gamma = -2,491(4)$. On peut comparer cette mesure au grandissement théorique obtenu à partir des lois de l'optique géométrique. On mesure $d_2 \simeq 733(6) \text{ mm}$, ce qui donne un grandissement théorique $\gamma \simeq -2,54(3)$, estimation en accord avec notre mesure du grandissement. On mesure également le grandissement

1. On parle de « *binning* » en anglais.

2. *Edmunds Optics*, Transmitted Microslide Sinusoidal NT55-641

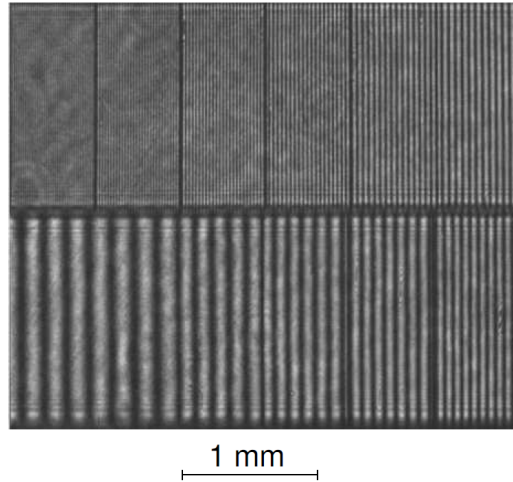


FIG. 6.3 Photographie des motifs de la mire sinusoïdale utilisée pour effectuer la mesure du grandissement et la mise au point du système d'imagerie. Image issue de la Réf.[souris2015].

lorsque la caméra est translattée le long de l'axe optique, ce qui nous permet de déterminer la variation de grandissement γ avec la position de la caméra x : $\frac{d\gamma}{dx} = 0,050(1) \text{ cm}^{-1}$ soit $\frac{1}{\gamma} \frac{d\gamma}{dx} = 2,01(6)\%.\text{cm}^{-1}$

Le pouvoir de résolution de l'objectif est alors défini comme la période spatiale pour laquelle le contraste est la moitié de sa valeur maximale. On vérifie ainsi que la résolution optique du système d'imagerie est d'environ $20 \mu\text{m}$ (moins bonne que la valeur théorique de $9 \mu\text{m}$ [souris2015], mais suffisante pour observer les variations d'indice optique au sein de la région métastable de l'hélium 4).

Mesure du profil d'indice optique au sein de l'onde sonore : On note $\phi_{\text{son}}(x,z,t)$ la phase accumulée par le bras (1) de l'interféromètre due aux variations d'indice optique au sein de l'onde sonore. L'extraction de la carte de phase $\phi_{\text{son}}(x,z,t)$ se fait à partir des images recueillies par la caméra CCD. On extrait la phase pixel par pixel, et les pixels sont traités indépendamment les uns des autres.

On s'intéresse à la variation de $\phi_{\text{son}}(x = x_i, z = z_i, t)$ associée au pixel (i, j) de la caméra CCD. L'intensité du pixel, qui résulte de l'interférence du bras (1) et du bras (2) de l'interféromètre, est directement reliée à la phase $\phi_{\text{son}}(x_i, z_i, t)$ par la formule :

$$I(i,j,t,\delta\varphi) = I_{i,j}(t) [1 + C_{i,j}(t) \cos(\delta\phi(x_i,z_j,t) - \delta\varphi)] \quad (6.5)$$

avec $\delta\varphi$ la phase du faisceau de référence (qui peut être modifiée à l'aide des lames de phase) et $\delta\phi(x_i,z_j,t) = \phi_{\text{stat}}(x_i,z_j) + \phi_{\text{son}}(x_i,z_j,t)$ où ϕ_{stat} est une phase statique entre les deux faisceaux, typiquement due aux défauts optiques et à la poussière sur les optiques. Dans l'intervalle typiquement exploré pour $\delta\varphi$, on peut considérer $I_{i,j}$, $C_{i,j}$ et ϕ_{stat} constants.

En faisant varier $\delta\varphi$, on remonte ainsi à $I_{i,j}$, $C_{i,j}$ et $\delta\phi(t)$ à partir de l'ajustement du jeu de données $(\delta\varphi, I(i,j,t,\delta\varphi))$.

Remarque : en réalité la phase $\delta\phi(x_i,z_j,t)$ est déterminée à 2π près, et est comme "enroulée", c'est-à-dire qu'elle ne peut prendre que des valeurs entre $-\pi$ et π . Un programme informatique développé par Fabien Souris[souris2015] permet de "dérouler" la phase.

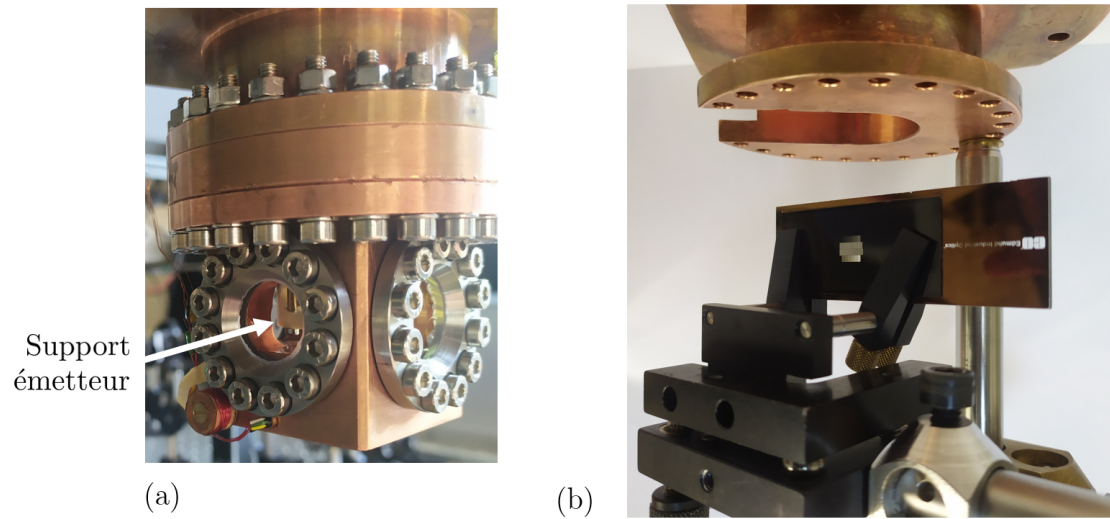


FIG. 6.4 (a) photographie de la cellule une fois les écrans extérieurs du cryostat démontés. C'est dans ce compartiment qu'est contenu l'hélium liquide une fois le cryostat à froid. On aperçoit au sein de la cellule le support de l'émetteur piézoélectrique. (b) La cellule est démontée, et remplacée par une mire sinusoïdale (voir texte), dont la position est choisie de sorte à coïncider au millimètre près avec le foyer acoustique des ondes sonores.

Pour obtenir un rapport signal/bruit satisfaisant, on prend des images avec la caméra CCD pour 10 valeurs différentes de phase du faisceau de référence $\delta\varphi$. Pour chaque déphasage $\delta\varphi$, on prend un film des variations d'intensité sur la caméra CCD, soit 200 images espacées d'un pas de temps de 50 ns. On obtient ainsi un jeu de données $(\delta\varphi, t, \{I(i, j, t, \varphi)\}_{0 < i < 251, 0 < j < 250})$. À t fixé, un ajustement de $I(i, j, t, \delta\varphi)$ en fonction de $\delta\varphi$ par l'Éq.(6.5) permet de remonter à $\delta\phi(x_i, y_i, t)$. Le terme de phase statique $\phi_{\text{stat}}(x_i, z_j)$ est obtenu à partir d'un jeu de données pris sans qu'aucune onde sonore n'ait été envoyée dans l'hélium liquide. En retranchant ce terme à $\delta\phi(x_i, z_j, t)$ on remonte à $\phi_{\text{son}}(x_i, z_j, t)$.

Dix impulsions acoustiques sont au total requises au total pour obtenir un film des variations de phase du faisceau laser. Le temps total pris par cette mesure est d'environ 10 minutes. On représente une carte de phase obtenue au temps $t_{\text{vol}} = 29,24 \mu\text{s}$ pour une tension d'alimentation de l'émetteur piézoélectrique $V = 100 \text{ mV}$ sur la Fig.6.6(a).

Obtention du profil de l'indice optique : On peut relier $\phi_{\text{son}}(x, z, t)$ aux variations d'indice optique $\delta n(x, z, t)$. Pour cela, on tire profit de la symétrie cylindrique autour de l'axe (Oz) du profil de l'onde sonore, et on se place dans l'approximation de Raman-Nath, qui consiste à considérer que le trajet du faisceau (1) de l'interféromètre reste rectiligne malgré les hétérogénéités d'indice (de telles conditions sont vérifiées dans ce type d'expérience, voir [souris2015]). Dans ces conditions on peut écrire :

$$\delta\phi_{\text{son}}(x, z) = \frac{2\pi}{\lambda} \int_{-A(x)}^{A(x)} dy \delta n(\sqrt{x^2 + y^2}, z) = \frac{4\pi}{\lambda} \int_x^R r dr \frac{\delta n(r, z)}{\sqrt{r^2 - z^2}} \quad (6.6)$$

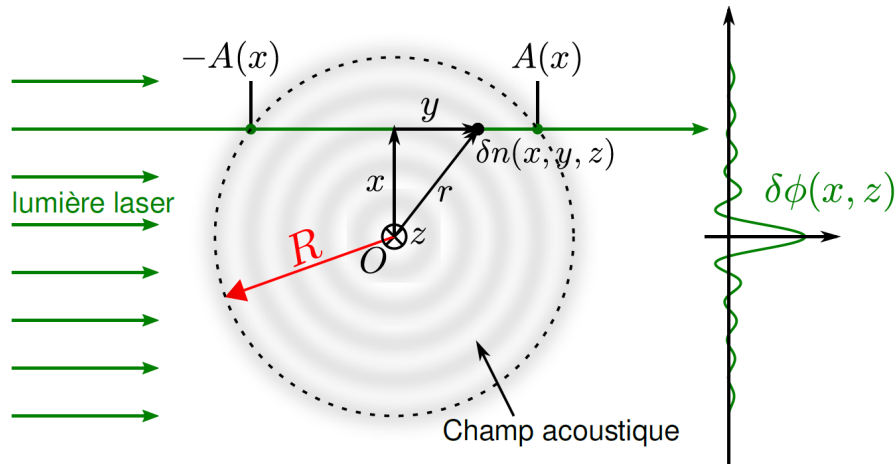


FIG. 6.5 La phase mesur e $\delta\phi(x, z)$ en sortie de l'interf erom tre r sulte de l'int egration des d phasages optiques le long du trajet du faisceau dans la cellule. Le cercle en pointill  de rayon R d limite le champ acoustique. Image issue de la th se de Fabien Souris[souris2015].

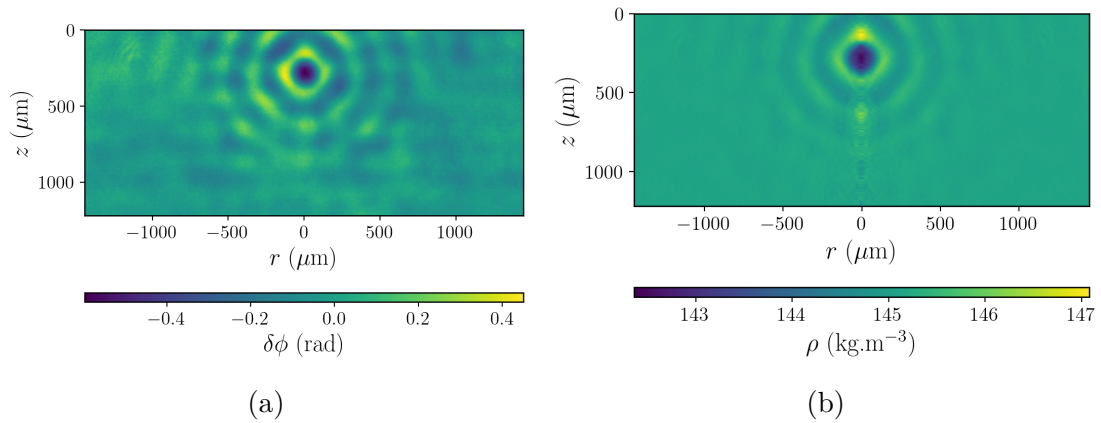


FIG. 6.6 (a) Mesure du profil de phase $\delta\phi$ en sortie de l'interf erom tre pour $t_{\text{vol}} = 29,24 \mu\text{s}$ et $V = 100 \text{ mV}$. Le bas de la c le pi zo lectrique est situ e en $z = 0$. (b) D termination du profil de densit  associ  par transform e d'Abel du profil de phase (voir texte).

avec $x^2 + A(x)^2 = z^2$ et $r = \sqrt{x^2 + y^2}$, voir Fig.6.5. L'int grale qui appar it dans le dernier terme de l' quation pr c dente est la transform e d'Abel de la carte d'indice $\delta n(r, z)$. On peut ainsi retrouver le profil radial de l'indice de r fraction en effectuant une transform e d'Abel inverse :

$$\delta n(r, z) = -\frac{1}{\pi} \frac{\lambda}{2\pi} \int_r^R dx \frac{\partial(\delta\phi(x, z))}{\partial x} \frac{1}{\sqrt{r^2 - x^2}} \quad (6.7)$$

Le calcul de cette int grale est r alis  num riquement, et permet de remonter,   partir d'une carte de phase,   une carte d'indice optique, comme repr sent  sur la Fig.6.6(b). Enfin, comme expliqu  dans la section 6.1.1, le calcul de $\delta n(r, z)$ permet de remonter directement   $\delta\rho(r, z)$ par la relation : $\delta\rho(r, z) = \rho_0 \delta n(r, z) / (n_0 - 1)$.

La Fig.6.7 est issue du m me jeu de donn es que la Fig.6.6 (tension d'alimentation $V = 100 \text{ mV}$). La Fig.6.7(a) montre le profil radial de la densit  ρ le long d'une ligne qui passe par le foyer acoustique ($z = 0$). La Fig.6.7(b) montre la variation de ρ au foyer acoustique ($r = 0, z = 0$)

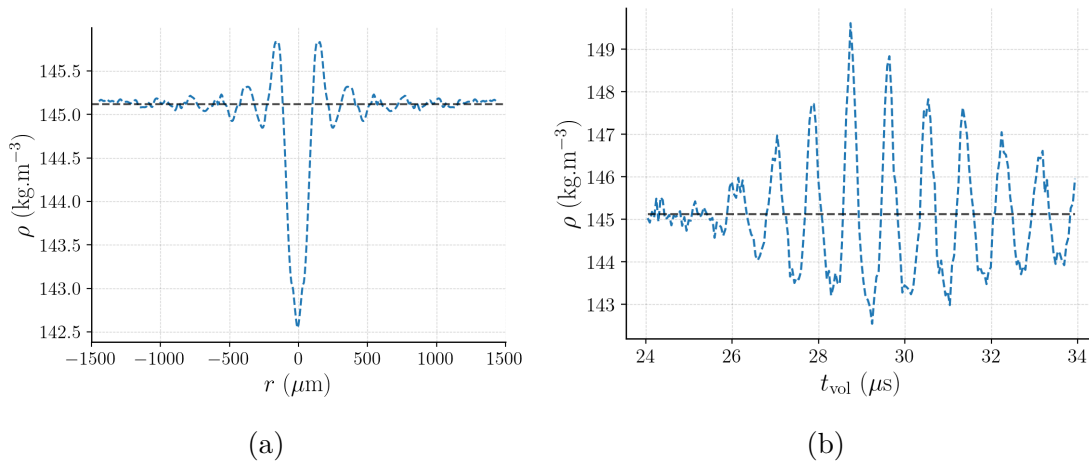


FIG. 6.7 (a) : Trait pointillé bleu : Profil radial de la variation de densité $\delta n(r)$ obtenu à l'instant t où la densité est minimale au foyer acoustique, et à la position verticale z à laquelle se situe le foyer acoustique, et pour une pression statique $P_{\text{stat}} = 0,15$ bar et une température $T = 1,08$ K. Trait pointillé noir : densité statique ρ_0 . (b) : Trait pointillé bleu : Profil temporel de la variation d'indice de réfraction $\delta n(t)$ obtenue au foyer acoustique. Trait pointillé noir : densité statique ρ_0 .

en fonction du temps. On observe en particulier l'effet de la non-linéarité de l'équation d'état sur le profil de l'onde sonore : les maxima sont plus aigus et élevés, les minima sont plus larges et plus proches de ρ_0 .

Effet du moyennage sur les mesures de densité : Comme précisé plus haut, la mesure de densité par interférométrie a une résolution spatiale de $20 \mu\text{m}$ lorsque la résolution spatiale est définie comme la période spatiale pour laquelle le contraste d'un motif d'une mire sinusoïdale observé à travers le système d'imagerie est réduit de moitié. Il ne s'agit pas de la même résolution spatiale que celle définie pour la mesure Brillouin au chapitre précédent, définie comme la largeur à mi-hauteur de la distribution gaussienne par laquelle les grandeurs physiques d'intérêts sont convoluées lors de la mesure. La résolution spatiale de l'interféromètre correspond à une convolution effective par une fonction gaussienne dont l'écart-type est $\sigma = 3,75 \mu\text{m}$, ce qui est plus de 5 fois inférieur à la résolution spatiale sur la mesure de la fréquence Brillouin f_B . Ainsi, il y a un très faible effet du moyennage spatial sur la mesure de la densité ($\sim 1\%$). Les effets de moyennage temporel sont également négligeables ($\sim 1\%$ également) dans la mesure de la densité, puisque le laser utilisé pour l'interféromètre est un laser impulsionnel dont la durée d'impulsion est de $8 \text{ ns} \ll T_{ac}/2 \sim 500 \text{ ns}$, T_{ac} étant la période acoustique.

6.2 Mesure simultanée de $f_B(t)$ et de $\rho(t)$

6.2.1 Description du banc optique

Le schéma du banc optique utilisé pour la mesure simultanée de f_B et ρ est représenté sur la Fig.6.8. Comme on peut le voir, le laser de pompage Brillouin (1) se propage à travers la

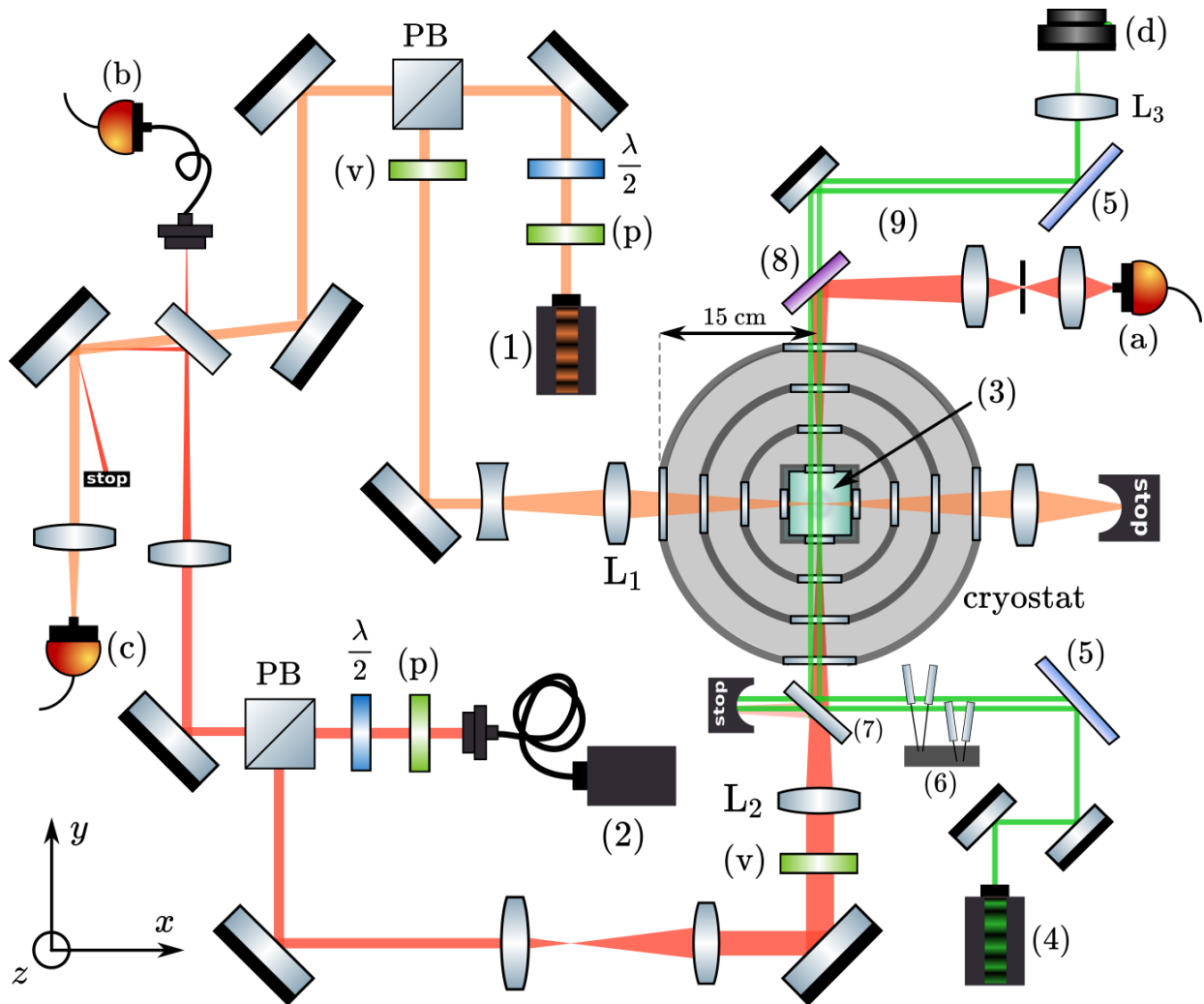


FIG. 6.8 Schéma du banc optique. (1) : Laser de pompe (Nd :YAG impulsionnel); (2) : Laser sonde (diode CW accordable en fréquence); (3) : cellule contenant l'hélium 4 superfluide; (4) : Laser Nd :YAG impulsionnel ($\lambda = 532$ nm) utilisé pour la mesure interférométrique de ρ ; (5) : lames de Jamin; (6) : lames à retard de phase; (7) : lame semi-réfléchissante 10 :90 (R :T); (8) miroir dichroïque : (réflectivité $>99\%$ @1064 nm; transmission $>95\%$ @532 nm, référence : *Thorlabs HBSY22*); (a) et (c) : Photodiodes de détection des lasers pompe et sonde; (b) : Photodiode de détection du signal de battement (couplage par fibre); (d) caméra CCD faisant l'image du foyer acoustique de l'onde sonore; (p) : Polariseur linéaire; (v) : Polariseur vertical; $\lambda/2$: lame demi-onde; PB : cube séparateur polarisant; OD : Densité optique; L_1 , L_2 , L_3 : Lentilles de distance focale respectives 150 mm, 200 mm et 207 mm; ouverture du sténopé ("pinhole") : $\text{\AA}100 \mu\text{m}$. Remarque : les deux bras de l'interféromètres de Jamin (faisceaux verts parallèles) sont schématiquement représentés distincts dans le plan (xy) ; en réalité, les faisceaux sont séparés selon la direction z .

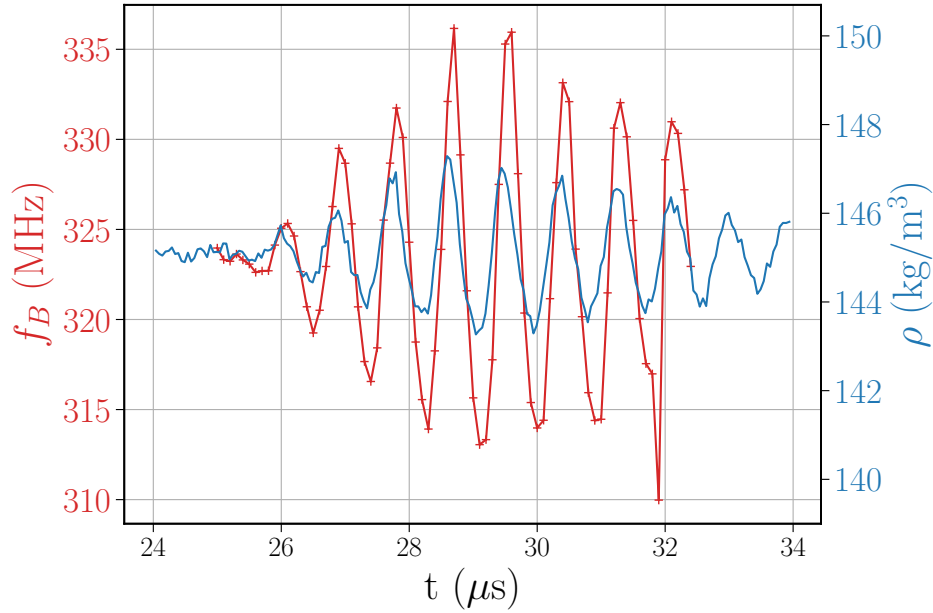


FIG. 6.9 Fréquence et densité de Brillouin au foyer acoustique en fonction du temps pour une tension d'excitation $V = 100$ mV. Courbe rouge : Fréquence Brillouin. Courbe bleue : variations de densité dans le foyer acoustique de l'onde sonore (à la position associée au pixel bleu de la Fig.6.10(a)).

cellule dans la direction x tandis que le laser sonde Brillouin (2) et le laser *CFR* (vert) de mesure de la densité (4) se propagent à travers la cellule dans la direction y . Nous y avons représenté schématiquement les deux faisceaux de l'interféromètre (laser *CFR*) parallèles l'un à côté de l'autre, après avoir été séparés par la première lame Jamin. En réalité, les deux faisceaux sont parallèles mais séparés selon la direction verticale z . L'élément clé de ce banc optique est la lame dichroïque (8) qui réfléchit la lumière à la longueur d'onde $\lambda = 1064$ nm et transmet la lumière à la longueur d'onde $\lambda_0 = 532$ nm. Cela permet de séparer les signaux Brillouin et de densité. Pour une tension d'excitation V donnée, l'évolution temporelle de la fréquence Brillouin au foyer acoustique est mesurée, comme expliqué au chapitre précédent. La mesure de densité est effectuée juste après (~ 15 min) la mesure Brillouin, avec la même tension de commande V . Les deux mesures sont donc en réalité "quasi-simultanées" car effectuées l'une après l'autre. La perturbation acoustique du fluide est une fonction reproductible de la tension d'excitation V , donc il n'y a *a priori* aucune différence significative à effectuer ces mesures l'une après l'autre ou rigoureusement simultanément. En principe, il est possible d'effectuer des mesures strictement simultanées en synchronisant l'instant d'allumage des lasers verts et infrarouges impulsionsnels mais nos systèmes laser ne permettaient pas une telle synchronisation pour des raisons techniques.

6.2.2 Premiers résultats

On alimente l'émetteur piézo-électrique avec une tension d'alimentation d'amplitude $V = 100$ mV, qui ne sera pas modifiée dans toute la suite. La Fig.6.9 montre l'évolution temporelle de

la fréquence Brillouin (en rouge) après alignement des lasers Brillouin sur le foyer acoustique selon le protocole présenté au chapitre précédent. On obtient des profils de densité spatio-temporels $\rho(r, z, t)$ par la méthode interférométrique. On représente en Fig.6.9 le profil $\rho(r = 0, z = 0, t)$, où le point $(r = 0, z = 0)$ correspond au “foyer acoustique”, défini comme l’endroit où l’amplitude de la variation de la densité est maximale. On observe un déphasage entre les courbes de fréquence Brillouin et de densité. On pourrait s’attendre à ce que la densité et la compressibilité évoluent en phase. Cependant, un décalage des courbes peut être dû à la méthode de mesure³. Nous envisageons deux pistes pour l’expliquer.

1) Déphasage dû au décalage des faisceaux Brillouin par rapport au foyer acoustique : Un déphasage provient du fait que $f_B(t)$ n’est pas mesurée au foyer de l’onde acoustique. Notre méthode de superposition des foyers des lasers sur le foyer acoustique a une précision de l’ordre de 10 à 20 μm . Un décalage de l’ordre de la dizaine de μm par rapport au centre du foyer acoustique résulterait en un retard (ou une avance) temporelle de l’ordre quelques dixièmes de microsecondes. Dans un tel cas le déphasage est dû à une “erreur de pointage”.

2) Déphasage lié au régime transitoire du processus de diffusion Brillouin :

En raison de la nature transitoire de l’effet Brillouin pendant la fenêtre temporelle de l’impulsion de pompe du laser Brillouin, un déphasage temporel entre le signal Brillouin et le signal de densité ne peut être exclu, même si ces deux grandeurs sont mesurées au même endroit. Si l’impulsion du laser de pompage Brillouin était d’une durée infiniment courte, le signal de fréquence Brillouin serait une mesure instantanée de la vitesse du son v (en vertu de la relation $f_B = 2nv \sin(\theta/2)/\lambda$ en oubliant la contribution négligeable de n lors de la variation de f_B). Le signal Brillouin et le signal instantané de densité seraient alors en phase. Mais, contrairement au laser utilisé pour la mesure de densité, le laser de pompage Brillouin a une durée d’impulsion $\tau_{\text{pulse}} = 190$ ns qui n’est pas négligeable devant la période acoustique $1/f_{ac} \sim 880$ ns : la vitesse du son change pendant τ_{pulse} . Soit t_0 un temps donné de la Fig.6.9 auquel la densité et la fréquence Brillouin sont mesurées. Les phonons stimulés créés par les lasers Brillouin ont une durée de vie finie (de l’ordre de quelques centaines de ns dans les états stables, voir Chap.2). Comme le signal Brillouin stimulé n’existe que lorsque le laser de pompage impulsif et le laser sonde interagissent, les phonons créés au début de l’impulsion du laser pompe ($t_0 - \tau_{\text{pulse}}/2 \leq t \leq t_0$) seront toujours présents à $t \geq t_0$, et contribueront donc encore à la diffusion Brillouin pour $t \geq t_0$. Les phonons créés aux temps $t_0 - \tau_{\text{pulse}}/2 \leq t \leq t_0$ contribuent alors davantage au signal Brillouin que ceux créés à la fin de l’impulsion du laser pompe ($t_0 \leq t \leq t_0 + \tau_{\text{pulse}}/2$). L’effet de cela est qu’en moyenne, les propriétés mesurées du liquide correspondent à un temps t^* plus court que t_0 . Chaque point de mesure $(t_0, f_B(t_0))$ correspond grosso modo à une mesure de $(t^*, v(t^*))$. Par conséquent, le signal Brillouin mesuré est **retardé** par rapport au signal de densité (instantané) : le délai entre ces deux signaux est $t_0 - t^* > 0$. Des simulations plus quantitatives, montrant clairement le signe (positif) de ce déphasage entre signal de densité et signal Brillouin, sont présentées en annexe C.

Il est très probable que ces deux effets contribuent simultanément. Notre méthode de focalisation n’est pas parfaite, et le premier effet doit nécessairement contribuer à ce déphasage.

3. Nous avons vérifié que ce décalage ne vient pas d’une erreur dans l’origine de l’axe des temps lors des mesures : il y a un réel déphasage entre les deux signaux mesurés.

On présente une méthode qui permet d'estimer la position à laquelle la fréquence Brillouin est mesurée.

6.2.3 Sélection et traitement des données

La fréquence Brillouin est mesurée en un point (r, z) du champ sonore. Ce point est dans le foyer acoustique (de rayon $\sim 100 \mu\text{m}$) mais nous ne connaissons pas ses coordonnées avec exactitude. On peut en revanche se servir des mesures de densité ρ , effectuées sur une large étendue spatiale ($\sim 1\text{mm}^2$). On peut également s'aider de la donnée de l'EoS de l'hélium stable à pression positive : les mesures de l'EoS présentées au Chap.4 donnent l'évolution de la vitesse du son v en fonction de la densité ρ dans l'hélium stable. Pour connaître la position à laquelle est sondée f_B , on procède comme suit.

Pour tous les points dont la distance au foyer ($r = 0, z = 0$) est inférieure à $100 \mu\text{m}$ (rayon typique du foyer acoustique), nous annulons artificiellement le déphasage temporel entre le signal Brillouin et le signal de densité en ajoutant une phase φ_a au signal de densité. On note $\tilde{\rho}(t)$ le signal de densité déphasé de φ_a . $f_B(t)$ et $\tilde{\rho}(t)$ étant en phase, on trace $f_B(\tilde{\rho})$ ⁴.

Pour les raisons liées au régime transitoire évoquées plus haut, le signal Brillouin ne peut être, pour des raisons physiques, que temporairement **retardé** par rapport à celui de la densité. Nous ne considérons ainsi que les points avec $\varphi_a > 0$ et nous excluons les autres. Une carte du déphasage φ_a est présentée dans la partie gauche de la Fig 6.10. La zone jaune correspond aux points exclus par notre traitement (pour lesquels $\varphi_a < 0$).

À $T = 1.08 \text{ K}$ et à pression de vapeur saturante on a $\rho_0 = 145.12(1) \text{ kg.m}^{-3}$ et $v(\rho_0) = 237.6(1) \text{ m.s}^{-1}$, et nous avons mesuré en absence d'onde acoustique $f_B(\rho_0) = 323.1(4) \text{ MHz}$. Ceci nous permet de déterminer la vitesse du son (comme effectué au Chap.4). Pour tous les pixels situés dans le foyer acoustique, nous déterminons les fonctions $v(\rho)$, que nous ajustons par des droites⁵. Ces droites sont comparées à d'autres mesures indépendantes de la fonction $v(\rho)$ à $P > 0$. En effet, comme nous l'avons vu au Chap.4, nous possédons un jeu de données (f_B, P, ρ) pour $0 < P < 10 \text{ bar}$. Ce jeu de données nous permet d'obtenir $v(\rho)$ à $P > 0$. Ces données sont représentées par les points rouges sur la partie droite de la Fig.6.10. Pour savoir à quel endroit du foyer acoustique est mesuré f_B , on sélectionne les points (r, z) (avec $\varphi_a > 0$) pour lesquels la courbe $v(\rho)$ à $\rho > \rho_0$ est en adéquation avec le jeu de données $v(\rho)$ à $P > 0$. Les points (r, z) retenus sont représentés en couleur sur la partie gauche de la Fig.6.10.

Pour déterminer l'EoS dans les domaines stable et métastable, nous considérons les données $v(\rho)$ correspondant à tous ces points retenus, qui donnent tous des résultats satisfaisants dans l'hélium stable déjà connu.

Remarque : De manière surprenante, les points retenus lors de ce traitement sont éloignés du point $(r = 0, z = 0)$, alors que nous avons déterminé au Chap.5 que le protocole de focalisation des lasers sur le foyer acoustique a une précision inférieure à $20 \mu\text{m}$. Dans les mesures présentées dans ce chapitre, le protocole de focalisation n'a pas été effectué exactement de la même manière.

4. Les grilles d'échantillonnage temporelle de $f_B(t)$ et de $\rho(t)$ sont différentes. Nous interpolons les mesures de $f_B(t)$ sur la grille d'échantillonnage temporelle de la mesure de $\rho(t)$ déphasé de φ_a afin de pouvoir tracer directement la fréquence Brillouin en fonction de la densité dans un même graphe.

5. Les ajustements quadratiques ou polynomiaux d'ordre supérieur ne donnent pas résultats significativement meilleurs que l'ajustement linéaire.

Dans les mesures présentées au Chap.5 nous avons focalisé les lasers par deux méthodes : en cartographiant f_B dans l'espace, et en suivant le "protocole bulle". Pour rappel, le "protocole bulle" consiste à focaliser les faisceaux Brillouin pompe et sonde sur une bulle de cavitation. La focalisation du laser sonde est relativement aisée car les signaux de transmission sont clairs (laser continu). En revanche, la focalisation du laser pompe est plus délicate (laser impulsionnel). Les deux protocoles donnaient les mêmes résultats, mais le second était bien plus rapide. Après nous être assurés que les deux protocoles donnaient des positions similaires pour les faisceaux, nous avons seulement translaté le faisceau sonde dans les directions x et z de la Fig.6.8, et le faisceau pompe dans la direction z . En effet nous nous sommes rapidement rendus compte que la position du foyer acoustique ne changeait que selon la direction z (en raison de la contraction et de la dilatation thermique du réservoir rempli d'hélium auquel est fixée la cellule expérimentale). Dans les mesures présentées dans ce chapitre, nous n'avons procédé que selon le deuxième protocole ("protocole bulle"), sans cartographier préalablement la fréquence Brillouin. Il se peut qu'une erreur de pointage ait été commise, notamment au moment de la focalisation du laser pompe sur les bulles de cavitation (étape délicate dans le protocole de focalisation). Cette erreur pourrait être plus significative que les 20 μm de précision estimés. Cela appelle à un renforcement du protocole de focalisation pour les prochaines mesures.

6.3 Résultats

On trace sur la Fig.6.11 la vitesse du son $v(\rho)$ obtenue à partir des points (r, z) sélectionnés.

On effectue désormais un ajustement de $v(\rho)$ en prenant cette fois en compte non seulement les points à $\rho > \rho_0$ mais également à $\rho < \rho_0$ (région métastable). De nouveau, un ajustement linéaire est satisfaisant : la fonction d'ajustement est affichée en orange sur la Fig.6.11. On obtient $v(\rho) = a\rho + b$ avec $a = 4,67(6) \text{ m}^4/\text{kg/s}$ et $b = -440(9) \text{ m/s}$.

À partir de cet ajustement, nous intégrons analytiquement l'Éq.(4.9) depuis l'état d'équilibre thermique initial connu (ρ_0, v_0, P_0) jusqu'à un état final (ρ, v, P) et nous obtenons :

$$\int_{P_0}^P dP' = \int_{\rho_0}^{\rho} (a\rho' + b)^2 d\rho' \quad (6.8)$$

soit :

$$P(\rho) = P_0 + \frac{1}{3a} \left[(a\rho + b)^3 - (a\rho_0 + b)^3 \right] \quad (6.9)$$

Cette fonction expérimentale $P(\rho)$ est représentée sur la Fig.6.12. Les barres d'erreur sur la pression sont calculées à partir des incertitudes sur les coefficients a et b de la fonction d'ajustement $v(\rho)$. Elles sont légèrement plus petites que les points de données. Sur la figure est également tracée l'EoS à $T = 0 \text{ K}$ calculée par Dalfovo *et al.* [dalfovo1995] (on rappelle que d'autres méthodes de calculs ont été utilisées pour déterminer l'EoS dans la limite de $T \rightarrow 0$, voir Réfs. [boronat1994, bauer2000], et sont toutes en accord à moins de 1 % avec celle de Dalfovo *et al.*).

En ce qui concerne les états stables ($P > 0, \rho > \rho_0$), l'accord satisfaisant entre théorie et expérience visible sur la Fig.6.12 provient du fait que nous avons sélectionné des points de la carte de densité $\rho(r, z, t)$ qui justement donnent un accord satisfaisant avec les valeurs tabulées $v(\rho)$ à pression positive. En revanche, l'accord satisfaisant entre théorie et expérience à pression négative est un résultat inédit de cette mesure : pour des pressions $0 > P > -1 \text{ bar}$, le bon accord entre nos données expérimentales et la théorie de Dalfovo nous permet de conclure que les EoS

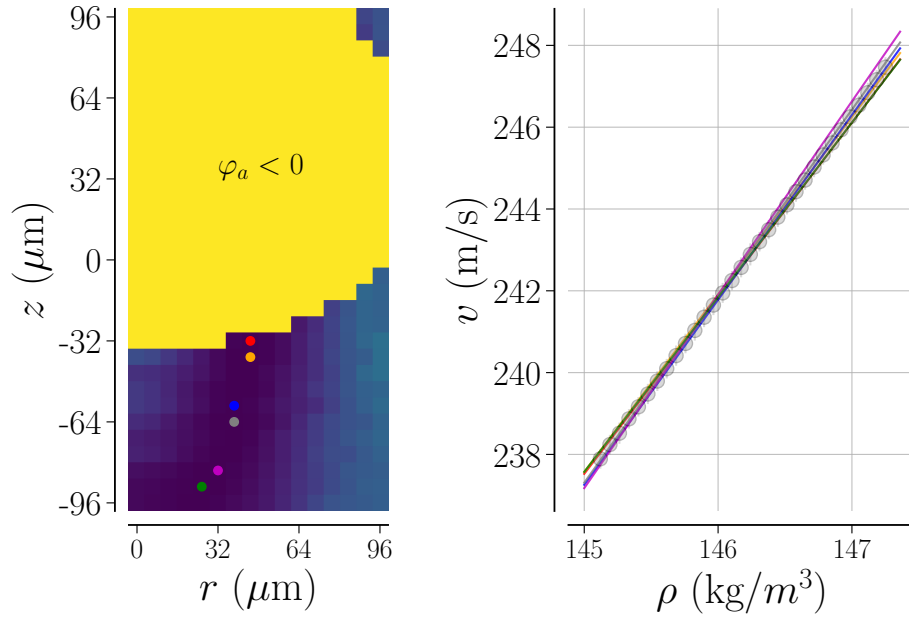


FIG. 6.10 Gauche : Carte φ_a au foyer acoustique (voir texte) : zone jaune : $\varphi_a < 0$, zone bleue : $\varphi_a > 0$. A droite : Dépendance de la vitesse du son avec la densité dans les états stables ($\rho > \rho_0$) du ^4He superfluide à $T \sim 1\text{K}$; points de données rouges : mesures du Chap.2, lignes colorées : ajustements linéaires de la dépendance de $v(\rho)$ mesurée dans l'onde acoustique ($\rho > \rho_0$). Chaque ligne est associé au point de même couleur dans la partie gauche de la figure.

théoriques disponibles $T = 0\text{ K}$ [dalfovo1995, boronat1994, bauer2000, maris2002] reproduisent de manière satisfaisante la dépendance pression-densité des états métastables de l' ^4He liquide à $T \sim 1\text{ K}$ pour ce domaine de pression.

Conclusion

En associant le spectromètre Brillouin stimulé développé au cours de ce travail de thèse avec la mesure interférométrique de la densité développée par mes prédécesseurs, nous avons mesuré simultanément la densité et la compressibilité des états stables ($P > P_{\text{sat}} \simeq 0$) et métastables ($P < 0$) de l'hélium liquide à $\sim 1\text{ K}$. Afin de remonter à l'EoS, il nous a fallu déterminer la position (r, z) à laquelle f_B est effectivement mesurée. Il n'est pas possible de déterminer cette position de manière absolue au sein du foyer acoustique, cependant nous nous sommes appuyés sur la connaissance de l'EoS dans l'hélium stable pour obtenir un jeu de données compatibles avec les propriétés de l'hélium à pression positive. En considérant ces données, nous avons pu déterminer l'EoS de l'hélium dans la gamme de pression $0 > P > -1\text{ bar}$, et nous avons trouvé que les EoS théoriques 0 K disponibles reproduisent correctement les données expérimentales dans cette gamme de pression.

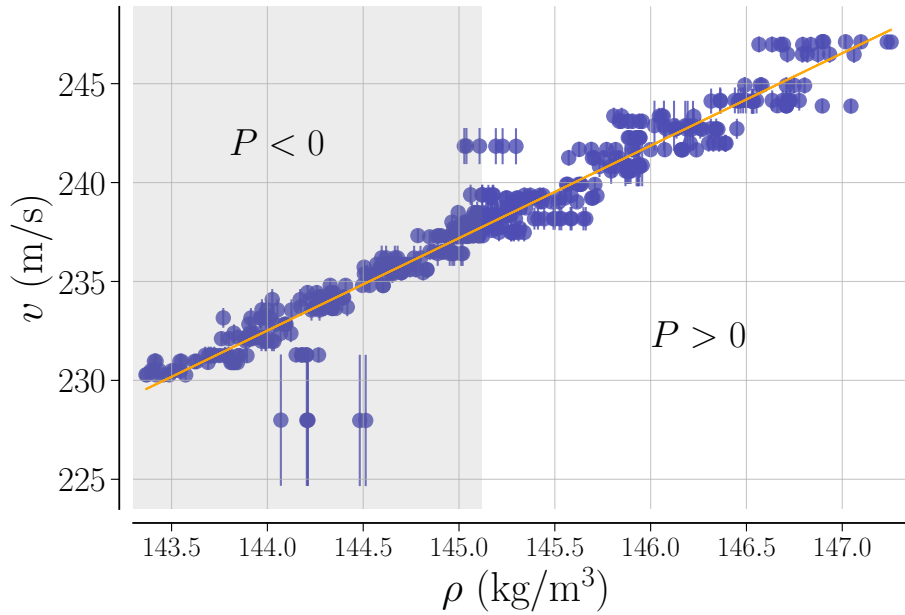


FIG. 6.11 Vitesse du son en fonction de la densité au voisinage du foyer acoustique. Cercles bleus pleins : données expérimentales ; ligne orange : ajustement linéaire.

Perspectives

Ces résultats encourageant nous permettent d'envisager à court terme la mesure de l'EoS des états métastables de l'hélium à des pressions plus basses, et jusqu'au voisinage du seuil de déstabilisation (cavitation). C'est notamment proche de ce seuil que des déviations entre l'EoS réelle et l'EoS théorique sont suspectées d'après les conclusions du Chap.5. De telles mesures nécessitent un traitement des données différent de celui adopté ici dans la gamme $0 > P > -1$ bar. En effet, comme vu au chapitre précédent lorsque l'onde acoustique est plus intense, à cause des non-linéarités de l'EoS, f_B est beaucoup moins bien résolu dans l'hélium stable. On ne peut donc compter sur l'accord de la courbe $v(\rho)$ avec les valeurs tabulées pour savoir à quelle position (r, z) est mesurée f_B .

Une autre stratégie sera alors adoptée. Une mesure préliminaire de f_B et de ρ à $V = 100$ mV nous permettra de sélectionner les points (r, z) compatibles avec l'EoS à pression positive. Puis, nous fixerons t_{vo} de manière à n'étudier f_B et ρ qu'au sein d'une oscillation donnée (oscillations (A) ou (C) par exemple, voir Chap.5) et nous ferons varier V de 100 mV au seuil de cavitation V_c (et même au-delà de V_c où il sera encore possible de mesurer f_B et ρ au sein de l'oscillation (C)). Ces mesures nous permettront de trancher : si l'EoS alors obtenue est différente dans les oscillations (A) et (C), on pourra suspecter l'existence d'effets thermiques (la température dans (A) est supérieure à celle dans (C)). Si l'EoS est la même, cela nous permet de pencher en faveur d'un mécanisme de cavitation assisté par vortex : la cavitation est d'abord déclenchée dans l'oscillation (A) par des vortex créés lors de la propagation de l'onde sonore.

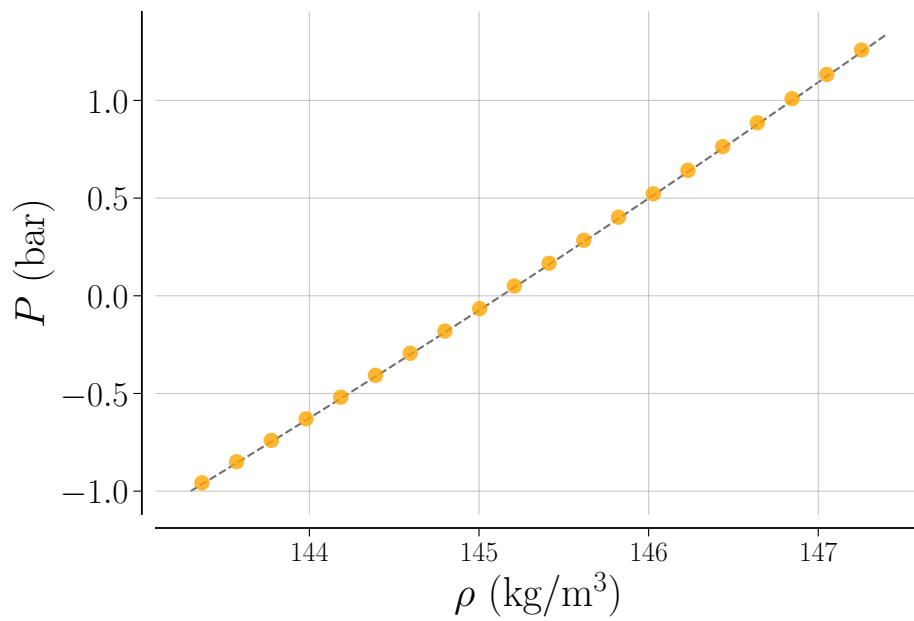


FIG. 6.12 Équation d'état de l'hélium 4 superfluide à $T \sim 1$ K. Cercles orange pleins : données expérimentales, les barres d'erreur sont plus petites que les symboles ; ligne grise en pointillé : théorie à 0 K[dalfovo1995].

Conclusion Générale

Nous avons développé une technique qui nous permet de sonder directement les propriétés thermodynamiques de l'hélium 4 liquide à pression négative et de remonter à son équation d'état à $T \sim 1$ K. Cette technique repose sur la mesure locale de la vitesse du son ($\sim 40 \mu\text{m}$), sur des temps courts (~ 200 ns) par Spectroscopie Brillouin Stimulée. Après des tests fructueux dans un échantillon d'acétone à température ambiante, cf Chap.3) et dans l'hélium superfluide stable (à $P \geq P_{\text{sat}} \simeq 0$, cf Chap.4) nous avons pu effectuer des mesures de v au sein de l'hélium métastable ($-1 \text{ bar} < P < 0$) à $T \sim 1$ K (cf Chap.5).

Les résultats obtenus dans l'hélium métastable nous ont conduit à plusieurs observations intéressantes. D'abord, nous avons pu observer que la cavitation n'a pas lieu à l'instant *a priori* attendu. On observe un retard dans le processus de cavitation, que nous pensons être dû à des effets thermiques ou à la nucléation hétérogène de bulles de gaz sur des vortex quantiques (créés lors du passage de l'onde sonore qui sert à produire les états métastables). Il a par ailleurs été possible de mesurer des fréquences Brillouin au-delà du seuil de cavitation communément défini dans ce type d'expérience. Cela nous a conduit à donner une définition plus claire du seuil de cavitation.

Nous avons enfin monté un banc optique pour la mesure simultanée de la fréquence Brillouin f_B et de la densité ρ , et avons pu déterminer l'EoS pour des pressions comprises entre -1 et +1 bar (cf Chap.6). Nous obtenons une équation d'état en très bon accord avec les théories existantes de l'hélium à pression négative.

Ces travaux ouvrent plusieurs perspectives :

- D'abord, nous espérons prochainement mesurer l'EoS de l'hélium pour un intervalle de pression plus large, en particulier pour des pressions allant jusqu'au seuil de cavitation dans l'hélium. Nos premières mesures simultanées de ρ et f_B montrent que des précautions particulières doivent être prises pour l'exploration de l'hélium à des pressions plus basses que -1 bar. Dans les mesures présentées au Chap.6, nous mesurons $f_B(t)$ en un point (r, z) situé au sein de la région métastable. Nous tirons profit des mesures de $\rho(r, z, t)$ et nous nous servons de l'équation d'état (connue) à pression positive pour déterminer le point (r, z) auquel est sondée la fréquence Brillouin. Une telle méthode n'est plus valable lorsque l'amplitude acoustique est plus élevée, notamment en raison du fait que l'évolution de f_B à pression positive est moins bien résolue. Un nouveau protocole de mesure doit alors être adopté.
- Nous pourrions étendre ces mesures à d'autres températures. Notamment, à plus haute température, l'atténuation dans l'hélium est moindre. Un effet pourrait être observé au niveau du seuil de cavitation. Mener ces expériences autour de T_λ est aussi intéressant. En effet, le mécanisme Kibble-Zurek [grucker2019] prévoit la création de vortex à la traversée

de la transition superfluide. Si la cavitation assistée par vortex est une réalité, nous pouvons espérer mettre en évidence un abaissement des seuils de cavitation dans des expériences où l'état de départ se situe dans le liquide normal et l'état d'arrivée dans le superfluide.

- Une autre perspective consiste à mesurer non seulement la vitesse du son, mais également l'atténuation du son. Dans nos expériences, des informations sur l'atténuation du son sont contenues dans la largeur des spectres Brillouin, mais sont occultées par l'élargissement spectral des lasers et l'élargissement dû à la configuration géométrique du spectromètre. Notre étude des effets transitoires dans l'hélium semble montrer que des informations supplémentaires sont présentes dans l'allure des signaux temporels Brillouin. Un délai temporel existe entre le maximum de l'impulsion du laser pompe, et le maximum du signal Brillouin à résonance. Ce délai est directement relié à τ_{ph} , qui est le temps caractéristique de création et de disparition des phonons. L'étude de ce délai en fonction de la température ou de la pression pourrait permettre de remonter à l'évolution du temps de vie des phonons.
- Aussi, une des limitations majeure rencontrée pendant nos expériences est liée à notre laser de pompage, dont les propriétés (et en particulier sa puissance instantanée) n'ont cessé de se dégrader tout au long de ce travail de thèse. Il nous a fallu mettre au point beaucoup de moyens pour pallier ces difficultés. Je crois beaucoup à l'utilisation d'un laser Nd :YAG multimode impulsif (8 ns) pour le laser de pompage Brillouin. Nous disposons d'un tel laser, par ailleurs relativement peu onéreux et très répandu sur le marché. La durée très courte des impulsions diminue drastiquement le gain Brillouin, ce qui peut être compensé par l'usage d'une puissance optique plus importante (des puissances optiques instantanées jusqu'à quelques MW peuvent aisément être obtenues). Nous souhaitons à court terme développer une technique de spectroscopie Brillouin en utilisant le même laser pour les lasers pompe et sonde : une fraction du laser source est utilisée comme laser pompe, l'autre fraction sert de laser sonde et passe par un modulateur acousto-optique qui permet de modifier sa fréquence. Une telle technique pourrait permettre de s'affranchir de l'élargissement des raies Brillouin dû à la largeur des lasers. Si les puissances optiques sont suffisantes, il pourrait même être envisageable de développer une technique de microscopie Brillouin, en utilisant des nappes lasers pour les lasers pompe et sonde. Une caméra CCD serait utilisée pour recueillir le signal Brillouin du laser sonde, et permettrait d'obtenir des "cartes" de variation de la vitesse du son dans l'hélium.
- À plus long terme, ce dispositif ouvre la voie à la mesure de la vitesse du son dans les états métastables de l'hélium solide. L'étude de l'hélium solide métastable (à des pressions inférieures à sa pression de fusion) est notamment motivée par la possibilité d'atteindre un régime de "supersolidité" pour des pressions suffisamment basses. Le groupe a mis en évidence une instabilité inattendue de l'hélium 4 solide métastable. Pour des amplitudes de l'onde sonore suffisamment élevées, on observe une déstabilisation, observée à 21,5 bars, alors que les prédictions théoriques estiment qu'elle devrait apparaître en-dessous de 0 bar. Des mesures de fréquence Brillouin permettraient de déterminer la compressibilité de l'hélium solide. Il serait alors possible de remonter à l'équation d'état du solide métastable, et de voir si cette instabilité est effectivement liée à une anomalie dans la compressibilité de l'hélium solide.

Pour reprendre les mots de Maris cités au tout début de ce manuscrit : « There is a world that open at negative pressure ... ». Il nous a été donné de l'explorer dans l'hélium liquide, et j'ai la joie de pressentir que nos travaux ouvrent de belles et riches perspectives pour la suite !

A – Tentatives de diffusion Brillouin stimulée dans l'hélium 4 liquide

Nous avons effectué plusieurs essais de diffusion Brillouin stimulée en configuration génératrice (un seul faisceau laser). Après des tests fructueux dans de l'acétone à pression et température ambiantes, nous avons effectué plusieurs essais dans l'hélium liquide normal et superfluide, sans succès. Nous avons tout d'abord fait des tests avec un laser monomode pulsé (laser *EKSPLA NL120*, $\lambda = 1064$ nm, 60 mJ par impulsion, durée des impulsions de 50 ns, fréquence de répétition 10 Hz, puissance instantanée maximale $P = 1,2$ MW, données constructeur). Puis avec un laser Nd :YAG doublé en fréquence (laser Quantel *CFR200*, $\lambda = 532$ nm, 137 mJ par impulsion, durée des impulsions de 8 ns, fréquence de répétition 20 Hz, puissance instantanée $P = 17$ MW, données constructeur). Dans chacun de ces deux tests, les lasers étaient focalisés au centre du cryostat, sur une région de taille ~ 100 μm (col du faisceau ~ 50 μm).

Le banc optique pour ces tests est représenté sur la Fig.A.1. Le laser est d'abord divisé en deux par une première lame séparatrice. Le faisceau en transmission de la lame est de nouveau séparé en deux par un cube polarisant. La partie transmise, polarisée horizontalement, traverse

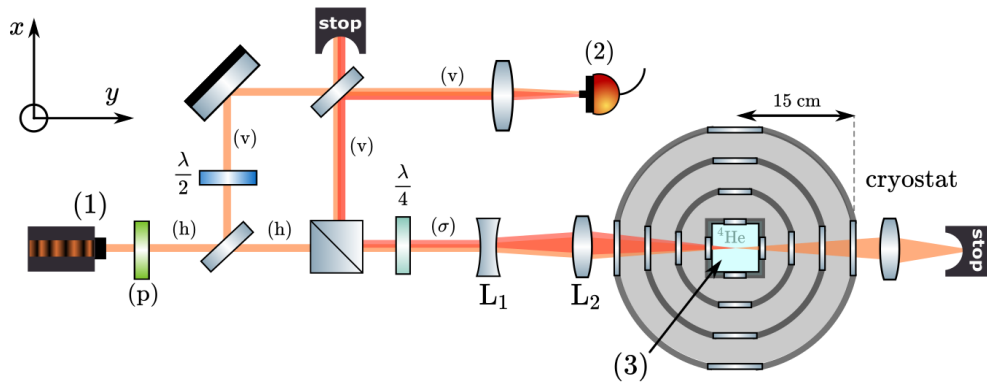


FIG. A.1 (1) Laser impulsionnel; (2) : photodiode rapide de détection permettant de mesurer la fréquence Brillouin à partir du battement des deux faisceaux; (3) : cellule contenant l'hélium liquide; (p) : polariseur; (v) : polarisation rectiligne verticale; (h) : polarisation rectiligne horizontale; (σ) : polarisation circulaire; $\frac{\lambda}{2}$ et $\frac{\lambda}{4}$: lames demi-onde et quart d'onde. Le faisceau incident (orange) est focalisé au niveau de la cellule centrale du cryostat contenant l'hélium, à l'aide des lentilles L_1 et L_3 de focales respectives $f'_1 = -100$ mm et $f'_3 = 150$ mm. Le signal rétrodiffusé est représenté en rouge.

une lame $\lambda/4$, avant d'être focalisée au sein du cryostat par deux lentilles. La première lentille est une lentille divergente, afin d'obtenir une ouverture angulaire plus grande du faisceau au sein du cryostat, et un col moindre au foyer optique. La seconde lentille, convergente, focalise le faisceau au centre de la cellule. Le montage "cube séparateur polarisant - lame $\lambda/4$ " permet de recueillir le signal de retour Brillouin. On analyse le battement du faisceau de retour avec une fraction du faisceau laser incident en les superposant sur une photodiode. Un isolateur optique, non représenté, est utilisé pour éviter tout retour vers la source laser.

Avec ce dispositif, le volume de la zone d'interaction est de l'ordre de $V \sim 2L_R \times (2w)^2$, avec $L_R = \pi w^2/\lambda$ la longueur de Rayleigh des lasers, soit $V \sim 8\pi w^4/\lambda$. Pour un col laser au foyer de l'ordre de 50 μm , la longueur de Rayleigh est de l'ordre 7 mm.

Remarque : Dans la diffusion Brillouin stimulée, la valeur du col laser w n'influe pas sur la puissance de seuil Brillouin, car deux effets se compensent : si w diminue, l'intensité I du laser augmente ($I \propto 1/w^2$), ce qui est compensé par l'augmentation de la taille de la zone d'interaction ($L \sim 2L_R \propto w^2$).

Les premiers essais dans l'hélium ont d'abord été effectués avec le laser *EKSPLA*. Aucun signal de retour n'a pu être observé dans l'hélium liquide à sa pression de vapeur saturante entre 1 K et 4 K pour des puissances allant jusqu'à 1,2 MW. En revanche, nous avons pu observer la création d'un plasma pour des puissances élevées, comme représenté sur les séquences temporelles de la Fig. A.2. Le profil spatial du laser *EKSPLA*, possiblement hétérogène au foyer, est dans un premier temps mis en cause : la création du plasma pourrait avoir lieu sur les maxima locaux d'intensité. Nous avons donc effectué des tests avec le laser *CFR*, dont le profil spatial est plus homogène, mais l'expérience est restée dans succès : aucun signal de retour Brillouin n'a été détecté (jusqu'à des puissances surfaciques correspondant au seuil d'endommagement des optiques), mais seulement la création d'un plasma à haute intensité.

La possibilité de créer un plasma dans l'hélium, pourtant très pur et très peu polarisable, est surprenante. Des observations de créations de plasma avaient déjà été faites à la fin du siècle dernier, justement lors de l'investigation de signaux Brillouin [abrikosova1970]. Dans notre expérience, la création d'un plasma a lieu pour des intensités de l'ordre de $10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$, ce qui correspond aux seuils de claquage déjà mesurés dans l'hélium [sirisky2017, winterling1969]¹. Même si des signaux de retours Brillouin peuvent être obtenus au-delà du seuil d'ionisation [abrikosova1970], la création d'un plasma n'est pas souhaitable pour l'étude des états métastables de l'hélium, en raison de la déstabilisation qu'ils peuvent produire.

Pour expliquer ces tentatives infructueuses, soulignons une différence importante de nos expériences par rapport aux expériences de SBS effectuées précédemment. Dans les expériences décrites au paragraphe précédent, les lasers sont focalisés à l'aide d'une lentille peu convergente ($f' \sim 50 \text{ mm}$) placée directement dans la cellule contenant l'hélium. Dans notre cas, les faisceaux lasers sont focalisés par une lentille très convergente située à l'extérieur du cryostat, puis traversent quatre hublots avant de pénétrer dans l'hélium liquide. Ces hublots peuvent induire des aberrations optiques et déformer le front d'onde. Les hétérogénéités du front d'onde ainsi créées pourraient rendre les faisceaux hétérogènes au foyer. Cela favoriserait alors la création d'un plasma, et rendrait l'amplification Brillouin moins efficace.

1. Plusieurs hypothèses ont été avancées pour expliquer l'origine du plasma, et celle actuellement retenue est l'ionisation de dimères d'hélium [sirisky2017], qui sont des édifices pouvant exister même aux très basses températures, et dont l'énergie d'ionisation est de 4,3 eV (contre 24,6 eV dans l'hélium simple).

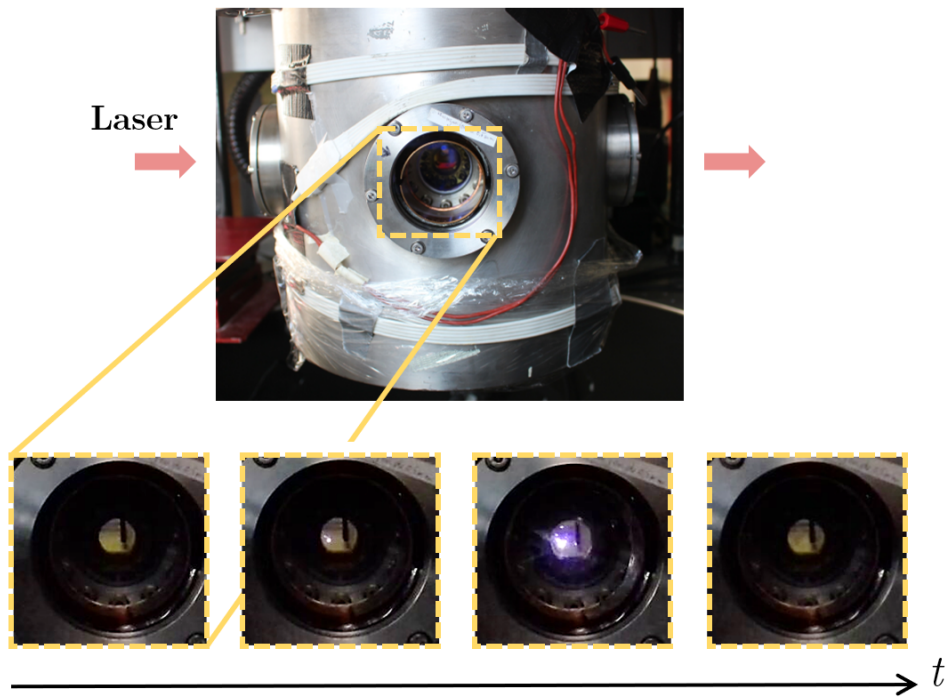


FIG. A.2 Observation du claquage de l'hélium. Photographies successives prises à 1/30 s d'intervalle, et observées perpendiculairement à la direction de propagation du laser (laser *EKSPLA*, $\lambda = 1064$ nm)

Ces essais préliminaires nous ont conduit à adopter une autre approche : la spectroscopie Brillouin stimulée, dont le principe est décrit dans le Chap.2.

B – Protocole de focalisation des faisceaux laser Brillouin sur la région métastable

Dans cette annexe, nous décrivons le protocole suivi pour aligner les faisceaux laser Brillouin sur la région métastable de l'hélium. Nous rappelons que la région métastable est créée au sein de l'hélium liquide par focalisation d'une onde ultrasonore (voir Chap.5) : les états métastables sont produits au foyer de l'onde sonore, de rayon typique $\sim 100 \mu\text{m}$.

Nous procédons en deux étapes : (1) nous superposons dans un premier temps les foyers optiques des deux faisceaux laser ; (2) nous superposons les foyers optiques des lasers avec le foyer de l'onde sonore. Pour chacune de ces étapes, on s'aide de bulles créées par cavitation : pour des amplitudes sonores suffisante, une bulle de cavitation est créée au sein de la région métastable. Les bulles de cavitation diffusent fortement la lumière, et nous nous en servons comme point de repère.

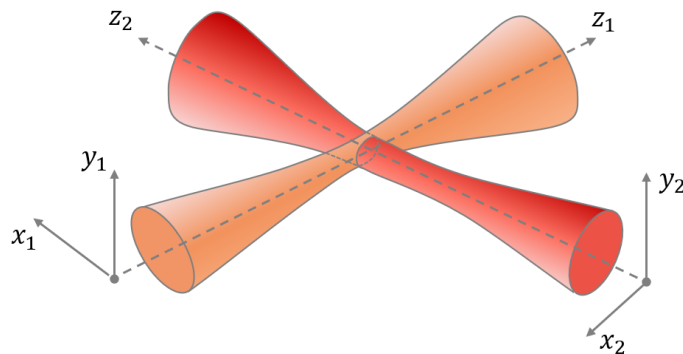


FIG. B.1 Schéma des lasers pompe et sonde : chacun des deux faisceaux est translaté selon les trois directions de l'espace afin de superposer leur foyer avec celui de l'onde acoustique créé par l'émetteur piézoélectrique.

Étape (1) - superposition des foyers optiques des deux lasers : On crée des bulles de cavitation. Chaque faisceau est grossièrement focalisé sur la bulle de cavitation, de sorte qu'on observe une diminution significative du signal de transmission des lasers à travers le cryostat. On

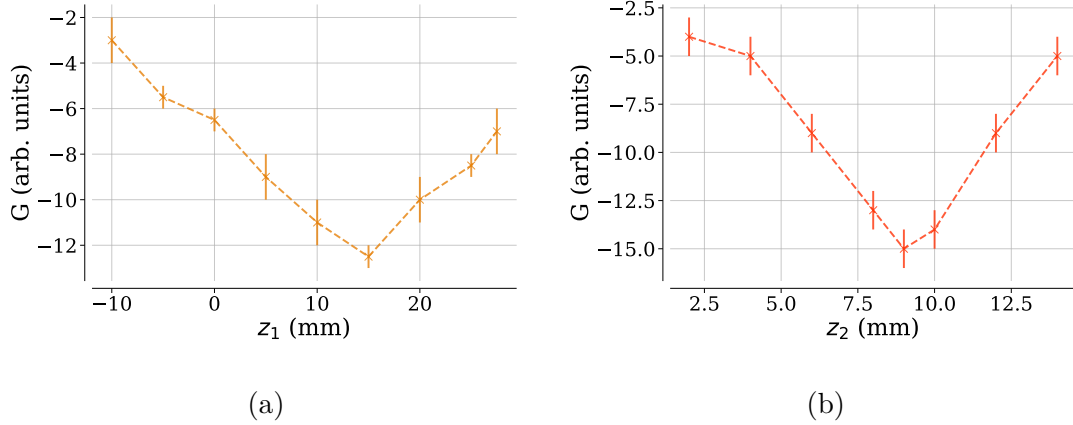


FIG. B.2 Mesures du facteur d'amplification Brillouin G pour : (a) : différentes positions du faisceau pompe selon sa direction de propagation , (b) : différentes position du faisceau sonde selon sa direction de propagation.

translate le faisceau pompe (resp. sonde) selon sa direction de propagation (axe z_1 , resp. z_2)¹. Pour chaque nouvelle position z_1 (resp. z_2) on superpose de nouveau le faisceau sur la bulle. Puis on effectue l'acquisition d'un spectre Brillouin dans l'hélium stable (absence d'onde sonore). On mesure le gain Brillouin obtenu. La Fig.B.2 montre les résultats obtenus pour chaque faisceau. Le gain atteint un minimum pour une certaine position z_1 (resp. z_2). La diminution du gain lorsqu'on s'écarte de cette position correspond à l'élargissement des faisceaux, et donc à une diminution du facteur d'amplification Brillouin. Cette mesure nous permet de positionner les lasers aux positions z_1 et z_2 auxquelles leur diamètre est minimal. La distance de Rayleigh de chaque laser étant de l'ordre de 1 mm, z_1 et z_2 sont fixés par la suite.

À ce stade, les foyers des deux lasers sont superposés, et sont grossièrement superposés sur le foyer acoustique de l'onde sonore. Il nous reste à superposer les foyers optiques plus finement sur le foyer acoustique. Nous présentons deux méthodes qui permettent d'y parvenir.

Étape (2) - superposition des foyers optiques des lasers sur le foyer acoustique de l'onde sonore :

- **Première méthode.** On fait varier la position du laser pompe (resp. sonde) dans la direction x_1 (resp. x_2) qui correspond à la direction orthogonale à l'axe de propagation et parallèle au banc d'optique (voir Fig.B.1). Cette fois, on crée une onde sonore, on choisit le temps t_{vol} qui correspond à la valeur minimale de fréquence Brillouin observée, ce qui correspond au minimum en amplitude de l'onde sonore (et donc aux régions "les plus métastables"). On effectue une mesure de fréquence Brillouin pour plusieurs positions x_i . Les résultats sont présentés sur la Fig.B.3(a). Le minimum de la fréquence Brillouin correspond à la position x_i pour laquelle le faisceau pompe ou sonde est centré sur l'onde

1. (Remarque : pour le faisceau pompe, c'est la lentille divergente en amont de la lentille de focalisation L_1 (voir Fig.4.3) qui est translatée : un déplacement de cette lentille de 10 mm selon l'axe z_1 correspond à un déplacement du foyer optique du laser de 1,25 mm).

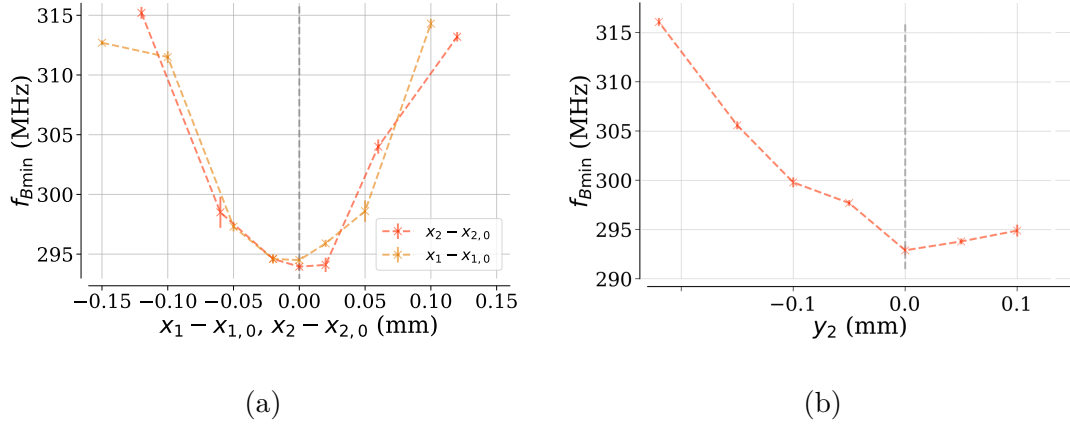


FIG. B.3 Mesure de la fréquence Brillouin dans l'hélium à 1 K soumis à une onde sonore focalisée par l'émetteur piézoélectrique, pour un temps t_{vol} correspondant au minimum de fréquence Brillouin. (a) : Mesures pour différentes positions x_1 et x_2 des faisceaux pompe et sonde (translation horizontale dans une direction perpendiculaire à l'axe de propagation) ; $x_{1,0}$, respectivement $x_{2,0}$, est la position adoptée en alignant le laser pompe (resp. sonde) par la deuxième méthode (voir texte) ; (b) : Mesures pour différentes positions y_2 (direction verticale) du faisceau sonde (voir texte). Le trait vertical en pointillé gris correspond à la position optimale y_2 obtenue par la seconde méthode (voir texte).

sonore.

Enfin, on translate les faisceaux dans la direction verticale (coordonnées y_1 et y_2 pour les faisceaux pompe et sonde respectivement). On crée une onde acoustique avec l'émetteur piézoélectrique. On fait varier la position y_2 , et on choisit à chaque fois la position y_1 qui maximise le gain Brillouin. Pour chaque position on effectue une mesure de fréquence Brillouin. Les résultats obtenus sont présentés sur la Fig.B.3(b). Nous n'avons pas pu effectuer de mesure pour $y_2 > -0,1$ mm en raison de l'interception des faisceaux par la câle piézoélectrique. La position y_2 est choisie telle que la fréquence Brillouin est minimale.

- **Deuxième méthode.** Une deuxième méthode, plus rapide, consiste à repérer les positions x_i et y_i de la manière suivante : on crée une bulle de cavitation, observable par des fluctuations importantes des signaux de transmission des lasers. C'est ce qui est représenté sur la Fig.B.4, qui représente le signal de transmission du faisceau sonde. Cette figure est analogue à la Fig.5.5, sur des intervalles de temps et de tension plus resserrés. On enregistre des traces temporelles pour plusieurs positions x_2 du faisceau sonde. À ces échelles de temps, les signaux parasites de fluctuation du signal sonde sont faibles d'une trace à l'autre, et une moyenne temporelle n'est pas requise. En faisant varier x_2 nous obtenons plusieurs traces temporelles, et nous pouvons remarquer que le temps d'apparition de la fluctuation varie. Ainsi, la courbe en rouge ($x_2 = 4,54$ mm, graduation lue sur la platine de translation sur laquelle est fixée la lentille de focalisation du faisceau sonde) correspond à un temps de départ minimal de cette fluctuation. Lorsqu'on s'écarte de cette position, les fluctuations apparaissent plus tard, on s'écarte ainsi du foyer acoustique. Pour comprendre cela on peut se référer à la Fig.B.5(a) : plus la bulle est éloignée du foyer optique du laser, plus le temps d'interception du laser est tardif. On translate ainsi le laser de manière à minimiser ce temps. Par cette méthode, on repère la position du foyer acoustique avec une

précision inférieure à 20 μm . On fait de même pour repérer x_1 et y_2 . Les déterminations des positions des lasers par cette deuxième méthode sont en très bon accord avec celles de la première méthode : on représente par un trait vertical en pointillé gris ces résultats sur la Fig.B.3.

Une fois les positions x_2 , x_1 et y_2 déterminées, on ajuste y_1 de manière à maximiser le signal Brillouin (ce qui correspond à $y_1 = y_2$). Enfin, on ajuste de nouveau les positions z_1 et z_2 à l'aide de la bulle, comme représenté sur la Fig.B.5(b) : si la bulle n'est pas créée au niveau du foyer optique du laser, le signal de dépletion du laser est moindre. On translate le laser selon sa direction de propagation de manière à maximiser ce signal.

L'avantage de cette méthode est qu'elle est beaucoup plus rapide à effectuer (< 5 min, contre 1h pour la première méthode). C'est cette méthode qui sera systématiquement utilisée avant chaque campagne de mesure (~ 3 h). La focalisation du laser pompe (impulsionnel) étant plus délicate, la coordonnée x_1 n'est pas systématiquement modifiée d'une mesure à l'autre : nous avons remarqué que la coordonnée x_1 trouvée à l'issue de la focalisation du laser pompe sur la bulle ne variait pas d'une campagne de mesure à l'autre. Le déplacement du foyer acoustique est principalement vertical, et dû à la contraction ou la dilatation thermique du réservoir rempli d'hélium en bas duquel est fixée la cellule contenant l'hélium étudié. On attend également 2h après chaque transfert d'hélium avant d'effectuer des mesures (car des décalages plus importants du foyer acoustique sont observés juste après le transfert)².

2. De tels effets de contraction du cryostat après un transfert ont également été remarqués par l'équipe de Caupin & Balibar [caupin2001], en conséquence desquels ils choisissent également d'attendre plusieurs heures après un transfert avant d'effectuer une nouvelle mesure.

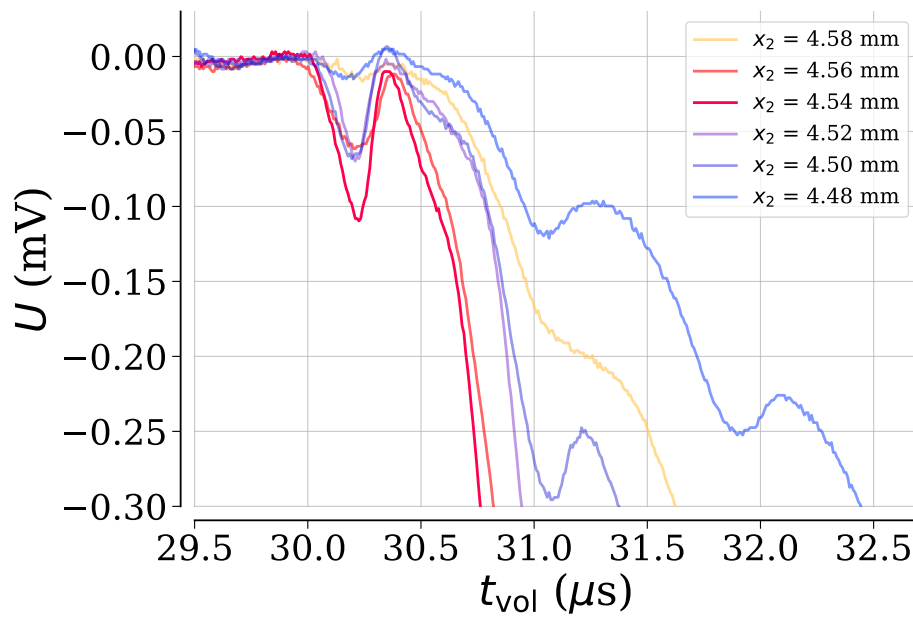


FIG. B.4 Évolution du signal de transmission (en mode AC) du laser sonde à travers le cryostat lorsque le faisceau intercepte une bulle de cavitation.

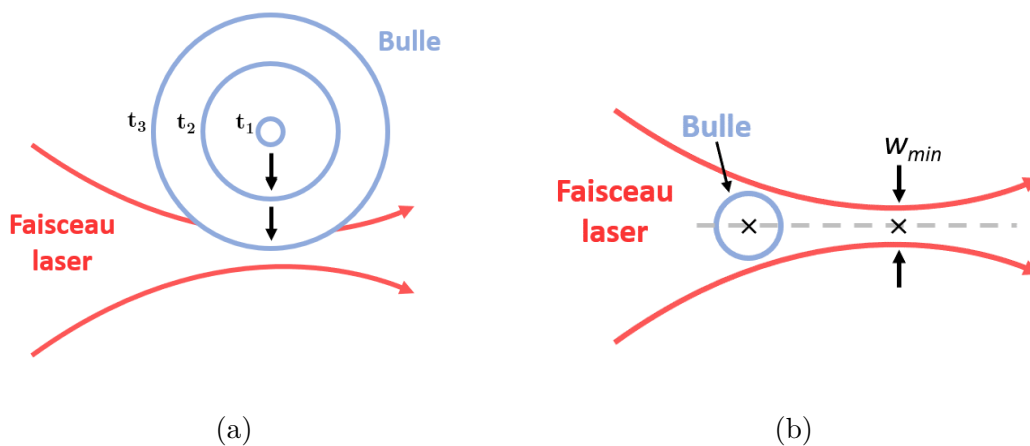


FIG. B.5 Protocole de croisement des faisceaux laser à partir de la création d'une bulle de cavitation. (a) : Illustration de la croissance d'une bulle à différents instants $t_1 < t_2 < t_3$, la bulle intercepte le laser en un temps t_3 différent du temps d'apparition de la bulle t_1 si celle-ci n'est pas sur l'axe du faisceau laser. (b) : Une fois les faisceaux traduits de sorte à ce que le centre de la bulle soit placé sur l'axe de propagation des faisceaux, on translate les faisceaux pour faire coïncider le point de focalisation et le centre de la bulle.

C – Effet de retard dans la mesure de $f_B(t)$ en régime transitoire

Nous cherchons ici à évaluer l'effet du régime transitoire sur la mesure de la fréquence Brillouin. Nous montrons qu'en raison du temps de vie finie des phonons, la fréquence Brillouin mesurée est en retard par rapport à l'évolution temporelle de la compressibilité du fluide.

Nous reprenons les calculs de la section 2.3.1 (Chap.2) sur l'estimation du facteur d'amplification Brillouin effectif en régime transitoire. Cette fois, nous prenons une fréquence Brillouin qui dépend du temps. Dans un premier temps, on prend une dépendance linéaire de $f_B(t)$ avec t : $\Omega_B(t)/2\pi = f_B(t) = f_B(t_0) + \gamma(t - t_0)$ avec γ une constante. Dans la section 2.3.1 on s'était intéressé à la fonction $g(\Delta\Omega)$ avec $\Delta\Omega = \Omega - \Omega_B$, où Ω est la différence de pulsation entre laser de pompage et laser sonde. Puisque Ω_B dépend du temps dans nos expériences (Ω_B varie lors du passage de l'onde sonore qui sert à créer les états métastables) on s'intéresse ici à une fonction de Ω plutôt que $\Delta\Omega$. La courbe du facteur d'amplification Brillouin effectif g_{eff} en fonction de Ω est alors donnée par (voir Éq.(2.40)) :

$$g_{\text{eff}}(\Omega, t) = \beta \text{Re} \left(E_{1,0}(t) \int_{-\infty}^t F(t') e^{(\frac{\Gamma_B}{2} + i(\Omega - \Omega_B(t))(t' - t))} dt' / (2I_{1,\text{max}} E_{2,0}^0) \right) \quad (\text{C.1})$$

Avec $F(t) = E_{1,0}^*(t) E_{2,0}^0$ où $E_{1,0}(t)$ est l'amplitude du champ électrique du laser pompe (supposé constant au cours du processus de diffusion) et $E_{2,0}^0$ est l'amplitude du champ électrique du laser sonde à l'ordre 0 en G (gain Brillouin), qui est constante.

Le maximum temporel de g représenté en fonction de Ω correspond à un spectre Brillouin. Une telle courbe est représentée en Fig.C.1 pour $\gamma = 1\text{MHz}\cdot\mu\text{s}^{-1}$, $f_B(t_0) = 0$ (pour simplifier), $\tau_{\text{ph}} = 0,2 \mu\text{s}$ (valeur typique attendue autour de 1K d'après les estimations du Chap.2) et $\tau_{\text{pulse}} = 0,1 \mu\text{s}$ (largeur à $1/e$). On voit qu'effectivement la fréquence Brillouin centrale (représentée par un trait en tiret-pointillé bleu) est légèrement décalée de $f_B(t_0)$, représentée par un trait pointillé gris. En particulier, la fréquence centrale est inférieure à $f_B(t_0)$ avec $\gamma > 0$. Cela signifie que la fréquence moyenne effectivement mesurée correspond à un temps $t^* < t_0$.

On représente sur la Fig.C.2 l'écart $f_B(t^*) - f_B(t_0)$ en fonction de γ , pour plusieurs valeurs de τ_{pulse} (avec $\tau_{\text{ph}} = 0,2 \mu\text{s}$ la largeur à $1/e$ des impulsions). On remarque que $f_B(t^*) - f_B(t_0)$ dépend linéairement de γ : cela montre que le retard $t^* - t_0$, qui correspond à la pente de ces courbes, ne dépend pas de γ mais seulement de τ_{pulse} : plus les impulsions du laser de pompage sont de longue durée, plus la fréquence Brillouin sondée en moyenne est à des temps t^* de plus en plus inférieurs à t_0 , car ce sont toujours les phonons créés en premier qui contribuent majoritairement au signal de diffusion sur la durée totale de l'impulsion.

Pour fixer les idées, et rendre plus visuel l'effet du régime transitoire, on choisit cette fois de reprendre les calculs de $f_B(t^*)$ avec $f_B(t) = f_B^0 + \delta f \sin(2\pi f_{\text{ac}} t)$ où $f_{\text{ac}} = 1,14 \text{ MHz}$ est la fréquence

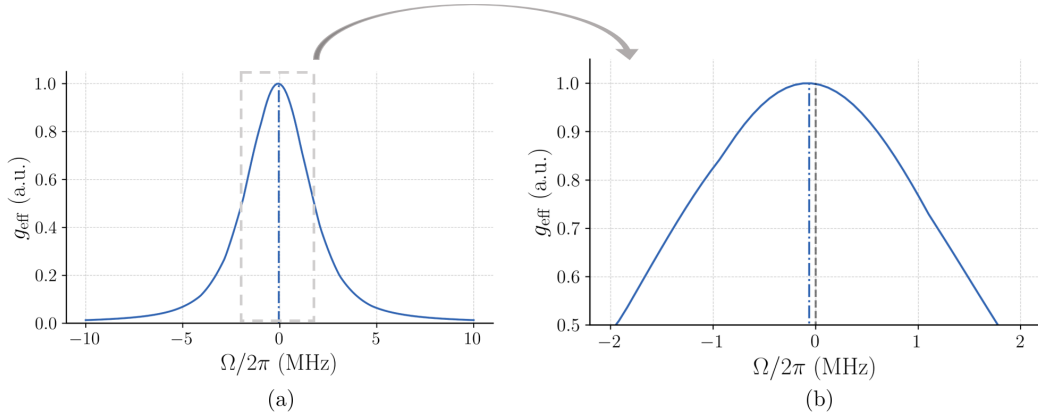


FIG. C.1 (a) : spectre Brillouin obtenu d'après l'équation Éq.(C.1) avec $\gamma = 1\text{MHz}\cdot\mu\text{s}^{-1}$, $f_B(t_0) = 0$, $\tau_{\text{ph}} = 0,2 \mu\text{s}$ (largeur à $1/e$) et $\tau_{\text{pulse}} = 0,1 \mu\text{s}$. (b) : zoom sur la partie centrale du spectre. Le maximum de la courbe est décalé vers les fréquences négatives.

de l'onde acoustique, et $\delta f = 10\text{MHz}$. Les valeurs de fréquence Brillouin mesurées sont montrées par des points rouges sur la Fig.C.3 (avec une largeur à $1/e$ des impulsions laser $\tau_{\text{pulse}} = 0,1 \mu\text{s}$, $\tau_{\text{ph}} = 0,2 \mu\text{s}$) tandis que la valeur réelle de la fréquence Brillouin est représentée par la courbe en pointillé gris. On visualise bien le retard entre la fréquence Brillouin mesurée $f_B(t^*)$ et $f_B(t)$. On effectue un ajustement de la courbe $f_B(t_*)$ et on trouve un retard $t^* - t = 0,04 \mu\text{s}$, qui n'est pas négligeable au regard de l'évolution temporelle de la fréquence Brillouin. Ce retard dépend du rapport $\tau_{\text{pulse}}/\tau_{\text{ph}}$ et nécessite ainsi la connaissance de τ_{ph} pour être déterminé. Or τ_{ph} n'est pas connu à pression négative. On ne peut donc déterminer précisément la valeur de $t^* - t$ attendue dans nos expériences. Cependant ces simulations permettent de confirmer l'effet prédit qualitativement : en régime transitoire, la fréquence Brillouin mesurée est toujours en retard par rapport à l'évolution réelle de la compressibilité du liquide.

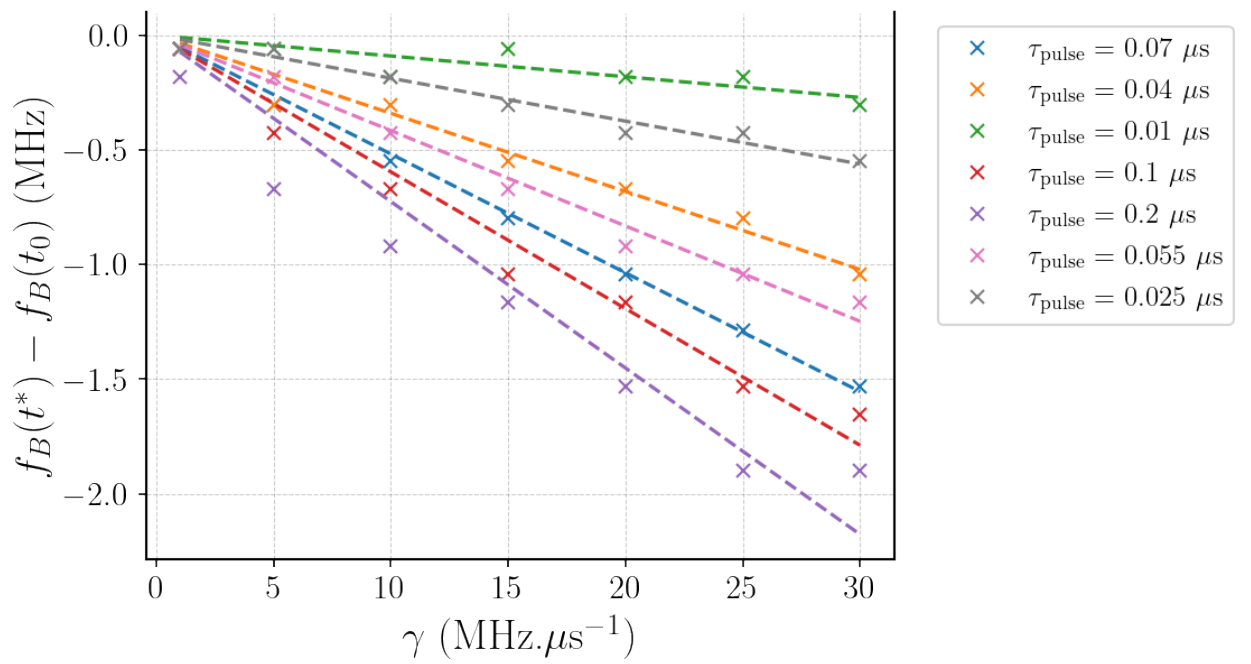


FIG. C.2 Écart $f_B(t^*) - f_B(t_0)$, pour une fréquence Brillouin variant linéairement dans le temps, en fonction de $\gamma = df_B/dt$ et pour plusieurs valeurs de τ_{pulse} (largeur à $1/e$) et pour $\tau_{\text{ph}} = 0,2 \mu\text{s}$.

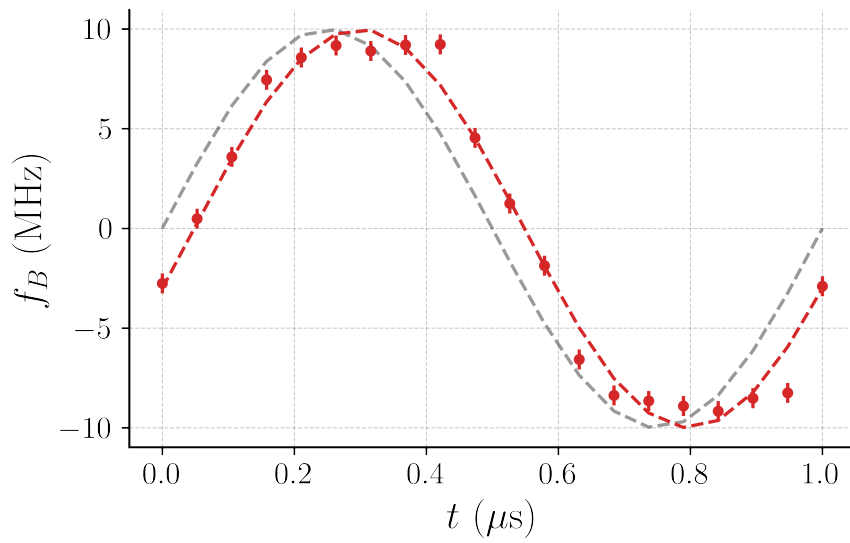


FIG. C.3 Trait pointillé gris : $f_B(t) = f_B^0 + \delta f \sin(2\pi f_{ac} t)$ où $f_B^0 = 0$, $f_{ac} = 1,14$ MHz et $\delta f = 10$ MHz. Points rouges : fréquence Brillouin mesurée en régime transitoire, à partir de l'Éq.(C.1). Trait pointillé rouge : ajustement sinusoidal de la fréquence Brillouin mesurée en régime transitoire.

Bibliographie

- [abraham1970] B. M. Abraham, Y. Eckstein, J. B. Ketterson, M. Kuchnir, and P. R. Roach. Velocity of Sound, Density, and Grüneisen Constant in Liquid He 4. Phys. Rev. A, 1(2) :250–257, February 1970. [13](#), [77](#), [82](#), [83](#), [84](#), [86](#)
- [abrikosova1969] I. I. Abrikosova and O. M. Bochkova. Breakdown of liquid and gaseous helium by a laser beam, and observation of stimulated mandel'shtam-brillouin scattering in liquid helium. J. Exp. Theo. Phys. Lett., 9 :167–169, 1969. [34](#)
- [abrikosova1970] I. I. Abrikosova and N. S. Skrypnik. Breakdown caused by a laser beam and the mandel'shtam-brillouin forced scattering in liquid he 4. J. Exp. Theo. Phys. Lett., 59 :59–63, 1970. [34](#), [II](#)
- [akulichev1975] VA Akulichev and VA Bulanov. Strength of quantum liquids. Sov. Phys. Acoust., 20(6) :501–503, 1975. [12](#)
- [allys2017] E. Allys. Beyond standard models in cosmology. PhD thesis, 2017. [VI](#)
- [appert2003] C. Appert, C. Tenaud, X. Chavanne, S. Balibar, F. Caupin, and D. d'Humières. Nonlinear effects and shock formation in the focusing of a spherical acoustic wave. Eur. Phys. J. B, 35(4) :531–549, October 2003. [97](#)
- [arnaud1971] J. A. Arnaud, W. M. Hubbard, G. D. Mandeville, B. De la Claviere, E. A. Franke, and J. M. Franke. Technique for fast measurement of gaussian laser beam parameters. Appl. Opt., 10(12) :2775–2776, 1971. [71](#)
- [arvengas2011] A. Arvengas, E. Herbert, S. Cersoy, K. Davitt, and F. Caupin. Cavitation in heavy water and other liquids. J. Phys. Chem. B, 115(48) :14240–14245, 2011. [11](#)
- [azouzi2013] M. Azouzi, C. Ramboz, J.-F. Lenain, and F. Caupin. A coherent picture of water at extreme negative pressure. Nat. Phys., 9(1) :38–41, 2013. [11](#)
- [baidakov2016] V.G. Baidakov, V.E. Vinogradov, and P.A. Pavlov. Homogeneous nucleation in liquid nitrogen at negative pressures. J. Exp. Theor. Phys., 123 :629–637, 2016. [11](#)
- [balibar1995] S. Balibar, C. Guthmann, H. Lambare, P. Roche, E. Rolley, and H. J. Maris. Quantum cavitation in superfluid helium 4? J. Low Temp. Phys., 101(1-2) :271–277, October 1995. [2](#)
- [balibar2002] S. Balibar. Nucleation in Quantum Liquids. J. Low Temp. Phys., 129(5) :363–421, December 2002. [7](#), [20](#)
- [balibar2002bis] S. Balibar and F. Caupin. The limits of metastability of liquid helium. In Liquids Under Negative Pressure : Proceedings of the NATO Advanced Research Workshop on Liquids Under Negative Pressure Budapest, Hungary 23–25 February 2002, pages 145–160. Springer, 2002. [18](#)

- [ballmann2015] C. W. Ballmann, J. V. Thompson, A. J. Traverso, Z. Meng, M. O. Scully, and V. V. Yakovlev. Stimulated brillouin scattering microscopic imaging. Sci. Rep., 5(1) :18139, 2015. **40**
- [ballmann2019] C. W. Ballmann, Z. Meng, and V. V. Yakovlev. Nonlinear brillouin spectroscopy : what makes it a better tool for biological viscoelastic measurements. Biomed. Opt. Express, 10(4) :1750–1759, Apr 2019. **40**
- [bauer2000] G. H. Bauer, D. M. Ceperley, and N. Goldenfeld. Path-integral Monte Carlo simulation of helium at negative pressures. Phys. Rev. B, 61(13) :9055–9060, April 2000. **13, 14, 19, 83, 103, 127, 128**
- [berberich1976] P. Berberich, P. Leiderer, and S. Hunklinger. Investigation of the lifetime of longitudinal phonons at GHz frequencies in liquid and solid⁴He. J. Low Temp. Phys., 22(1-2) :61–84, January 1976. **27, 34, 42, 44, 76**
- [beysens1977] D. Beysens and P. Calmettes. Temperature dependence of the refractive indices of liquids : deviation from the lorentz–lorenz formula. J. Chem. Phys., 66(2) :766–771, 1977. **61**
- [boghosian1966] C. Boghosian and H. Meyer. Density, coefficient of thermal expansion, and entropy of compression of liquid he⁴ under pressure below 1.4 k. Phys. Rev., 152 :200–206, December 1966. **82, 83, 84**
- [boon1991] J.-P. Boon and S. Yip. Molecular hydrodynamics. Courier Corporation, 1991. **32**
- [boronat1994] J. Boronat, J. Casulleras, and J. Navarro. Monte Carlo calculations for liquid He 4 at negative pressure. Phys. Rev. B, 50(5) :3427–3430, August 1994. **14, 83, 127, 128**
- [bossert2021] M. Bossert, A. Grosman, I. Trimaille, F. Souris, V. Doebele, A. Benoit-Gonin, L. Cagnon, P. Spathis, P.-E. Wolf, and E. Rolley. Evaporation process in porous silicon : Cavitation vs pore blocking. Langmuir, 37(49) :14419–14428, 2021. **11**
- [boyd2010] R. W. Boyd. Nonlinear Optics. Academic Press : Elsevier, Amsterdam ; Boston (Mass.) ; Paris, third edition, 2010. **23, 25, 28, 33, 51**
- [brooks1977] J. S. Brooks and R. J. Donnelly. The calculated thermodynamic properties of superfluid helium-4. J. Phys. Chem. Ref. Data, 6(1) :51–104, 1977. **XVIII, 79, 81**
- [bruot2016] N. Bruot and F. Caupin. Curvature dependence of the liquid-vapor surface tension beyond the tolman approximation. Phys. Rev. Lett., 116(5) :056102, 2016. **11**
- [caupin2001] F. Caupin and S. Balibar. Cavitation pressure in liquid helium. Phys. Rev. B, 64(6) :064507, July 2001. **13, 19, 89, 110, 111, VIII**
- [chavanne2002] X. Chavanne, S. Balibar, and F. Caupin. Heterogeneous cavitation in liquid helium 4 near a glass plate. J. Low Temp. Phys., 126 :615–620, 2002. **21, 107**
- [couture1989] L. Couture, R. Zitoun, and Ch. Chahine. Thermodynamique : cours, exercices et problèmes résolus. Dunod, 1989. **30**
- [cummins1966] H. Z. Cummins and R. W. Gammon. Rayleigh and Brillouin Scattering in Liquids : The Landau—Placzek Ratio. J. Chem. Phys., 44(7) :2785–2796, April 1966. **62**
- [dalfovo1995] F. Dalfovo, A. Lastri, L. Pricapenko, S. Stringari, and J. Treiner. Structural and dynamical properties of superfluid helium : A density-functional approach. Phys. Rev. B, 52(2) :1193–1209, July 1995. **13, 83, 84, 103, 127, 128, 130**

- [damzen2003] M. J. Damzen and Institute of Physics (Great Britain), editors. Stimulated Brillouin Scattering : Fundamentals and Applications. Series in Optics and Optoelectronics. Institute of Phys. Pub, Bristol, 2003. 42, 61, 63
- [davitt2010] K. Davitt, E. Rolley, F. Caupin, A. Arvengas, and S. Balibar. Equation of state of water under negative pressure. J. Chem. Phys., 133(17) :174507, November 2010. 28
- [denariez1968] M. Denariez and G. Bret. Investigation of Rayleigh Wings and Brillouin-Stimulated Scattering in Liquids. Phys. Rev., 171(1) :160–171, July 1968. 62, 63
- [djadaojee2019] L. Djadaojee, A. Douillet, and J. Grucker. Stimulated brillouin gain spectroscopy in a confined spatio-temporal domain (30 μm , 170 ns). EPJ Appl. Phys., 89(3) :30701, 2020.
- [djadaojee2020] L. Djadaojee, A. Douillet, and J. Grucker. Stimulated brillouin gain spectroscopy of superfluid helium-4. J. Low Temp. Phys., 203(1) :234–243, 2021.
- [djadaojee2021] L. Djadaojee and J. Grucker. Optical measurement of the equation of state of bulk liquid helium-4 around 1 K. Phys. Rev. B, 103(14) :144513, 2021.
- [djadaojee2022] L. Djadaojee and J. Grucker. Brillouin spectroscopy of metastable superfluid helium-4. Phys. Rev. Lett., 129 :125301, Sep 2022.
- [djadaojee2023] L. Djadaojee, C. Parisi, C. Noûs, and J. Grucker. Measurement of the equation of state of superfluid helium-4 at negative pressure. J. Low Temp. Phys., pages 1–14, 2023.
- [donnelly1998] R. J. Donnelly and C. F. Barenghi. The Observed Properties of Liquid Helium at the Saturated Vapor Pressure. J. Phys. Chem. Ref. Data, 27(6) :1217–1274, November 1998. XVIII, 42, 77, 78, 79, 81, 82, 85, 100, 101, 102, 116
- [eastman1969] D. P. Eastman, A. Hollinger, J. Kenemuth, and D. H. Rank. Temperature Coefficient of Hypersonic Sound and Relaxation Parameters for Some Liquids. J. Chem. Phys., 50(4) :1567–1581, February 1969. 62
- [eselson1974] B. N. Esel'son, M. I. Kaganov, E. Y. Rudavskii, and I. A. Serbin. "Sound" in superfluid liquids. 17(2) :25, 1974. 43, 79
- [faris1990] G. W. Faris, L. E. Jusinski, M. J. Dyer, W. K. Bischel, and A. P. Hickman. High-resolution Brillouin gain spectroscopy in fused silica. Opt. Lett., 15(12) :703, June 1990. 40, 41
- [faris1993] G. W. Faris, L. E. Jusinski, and A. P. Hickman. High-resolution stimulated Brillouin gain spectroscopy in glasses and crystals. J. Opt. Soc. Am. B, 10(4) :587, April 1993. 40
- [faris2001] G. W. Faris, M. Gerken, Ch. Jirauschek, D. Hogan, and Y. Chen. High-spectral-resolution stimulated rayleigh–brillouin scattering at 1 μm . Opt. Lett., 26(23) :1894–1896, Dec 2001. 40
- [grubbs1992] W. T. Grubbs and R. A. MacPhail. High-resolution stimulated Brillouin gain spectroscopy of liquid carbon disulfide : Dependence of the linewidths and peak gain on scattering angle. J. Chem. Phys., 97(1) :19–25, July 1992. 41, 63
- [grubbs1994] W. T. Grubbs and R. A. MacPhail. High resolution stimulated Brillouin gain spectrometer. Rev. Sci. Instrum., 65(1) :34–41, January 1994. 40

- [grucker2019] J. Grucker. Metastable Phases of Liquid and Solid ^4He . J. Low Temp. Phys., 197(3-4) :149–166, November 2019. **7, 132**
- [guilleumas1993] M. Guilleumas, M. Pi, M. Barranco, J. Navarro, and M. A. Solís. Thermal nucleation of cavities in liquid helium at negative pressures. Phys. Rev. B, 47(14) :9116–9119, April 1993. **110**
- [guirao1992] A. Guirao, M. Centelles, M. Barranco, M. Pi, A. Polls, and X. Viñas. A density functional model for the surface properties of liquid ^4He . J. Phys. Condens. Matter, 4(3) :667, 1992. **14**
- [hagenlocker1967] E. E. Hagenlocker, R. W. Minck, and W. G. Rado. Effects of Phonon Lifetime on Stimulated Optical Scattering in Gases. Phys. Rev., 154(2) :226–233, February 1967. **33**
- [hall1995] S. C. Hall, J. Classen, C. K. Su, and H. J. Maris. Experimental evidence for bubble nucleation on electrons in liquid ^4He . J. Low Temp. Phys., 101(3-4) :793–797, November 1995. **18**
- [hall1997] S. C. Hall and H. J. Maris. Thermodynamics and nucleation of bubbles in normal and superfluid liquid helium-4 at negative pressures. J. Low Temp. Phys., 107(3-4) :263–282, May 1997. **14, 103**
- [hareng1980] M. Hareng and J. Leblond. Brillouin scattering in superheated water. J. Chem. Phys., 73(2) :622–625, July 1980. **28**
- [harris1970] R. F. Harris-Lowe and K. A. Smee. Thermal expansion of liquid helium ii. Phys. Rev. A, 2 :158–168, Jul 1970. **XVIII, 77, 82, 116**
- [heinicke1969] W. Heinicke, G. Winterling, and K. Dransfeld. Hypersonic Absorption in Liquid Helium. Phys. Rev. Lett., 22(5) :170–173, February 1969. **34**
- [hirth1970] J. P. Hirth, G. M. Pound, and G. R. St Pierre. Bubble nucleation. Metall. Trans., 1(4) :939–945, 1970. **10**
- [holten2017] V. Holten, C. Qiu, E. Guillerm, M. Wilke, J. Ricka, M. Frenz, and F. Caupin. Compressibility anomalies in stretched water and their interplay with density anomalies. J. Phys. Chem. Lett., 8(22) :5519–5522, 2017. **9, 28**
- [ishiguro2006] R. Ishiguro, F. Caupin, and S. Balibar. Homogeneous nucleation of crystals by acoustic waves. Europhys. Lett., 75(1) :91, 2006. **108**
- [jeffers1965] W. A. Jeffers Jr and W. M. Whitney. Temperature and frequency dependence of ultrasonic absorption in liquid helium below 1 k. Phys. Rev., 139(4A) :A1082, 1965. **110**
- [jezek1993] D. M. Jezek, M. Guilleumas, M. Pi, M. Barranco, and J. Navarro. Thermal nucleation and cavitation in He 3 and He 4. Phys. Rev. B, 48(22) :16582–16588, December 1993. **14, 15, 19, 20, 110, 112**
- [lago2009] S. Lago and P.A. Giuliano Albo. Thermodynamic properties of acetone calculated from accurate experimental speed of sound measurements at low temperatures and high pressures. J. Chem. Thermodyn., 41(4) :506–512, April 2009. **60**
- [lambare1998] H. Lambaré, P. Roche, S. Balibar, H.J. Maris, O. A. Andreeva, C. Guthmann, K. O. Keshishev, and E. Rolley. Cavitation in superfluid helium-4 at low temperature. Eur. Phys. J. B, 2(3) :381–391, May 1998. **99, 111**

- [landau1980] L. D. Landau and E. M. Lifshitz. Course of Theoretical Physics : Statistical physics. Pergamon, Oxford, 1980. 10, 11
- [learn2022] R. T. Learn, E. Varga, V. Vadakkumbatt, and J. P. Davis. Precision measurements of the zero-temperature dielectric constant and density of liquid he 4. Phys. Rev. B, 106(21) :214509, 2022. 86
- [lide2004] D. R. Lide. CRC Handb. Chem. Phys, volume 85. CRC press, 2004. 57
- [maris1989] H. J. Maris and . Xiong. Nucleation of bubbles in liquid helium at negative pressure. Phys. Rev. Lett., 63(10) :1078–1081, September 1989. 84, 86
- [maris1991] H. J. Maris. Critical phenomena in he 3 and he 4 at $t= 0$ k. Phys. Rev. Lett., 66(1) :45, 1991. 14
- [maris1993] H. J. Maris, S. Balibar, and M. S. Pettersen. Nucleation of bubbles in liquid helium. J. Low Temp. Phys., 93(5-6) :1069–1078, December 1993. 16
- [maris1994] H. J. Maris. Nucleation of Bubbles on quantized vortices in helium-4. J. Low Temp. Phys., 94(1-2) :125–144, January 1994. 13, 15, 18, 20, 111, 112
- [maris2002] H. J. Maris and D. O. Edwards. Thermodynamic properties of superfluid 4he at negative pressure. J. Low Temp. Phys., 129(1) :1–24, 2002. 2, 14, 83, 101, 102, 103, 104, 128
- [maris2012] H. J. Maris. Studies of quantum liquids in metastable states. In J. Phys. Conf. Ser., volume 400, page 012041. IOP Publishing, 2012. 2
- [marston1976] P. L. Marston. Tensile strength and visible ultrasonic cavitation of superfluid4He. J. Low Temp. Phys., 25(3-4) :383–407, November 1976. 16
- [melich2009] M. Melich. Implantation d’atomes de Césium Dans Un Cristal d’hélium. PhD thesis, 2009. 67
- [meng2016] Z. Meng, A. J. Traverso, C. W. Ballmann, M. A. Troyanova-Wood, and V. V. Yakovlev. Seeing cells in a new light : a renaissance of brillouin spectroscopy. Adv. Opt. Photonics, 8(2) :300–327, Jun 2016. 40
- [nacher1991] P.-J. Nacher and J. Dupont-Roc. Experimental evidence for nonwetting with superfluid helium. Phys. Rev. Lett., 67(21) :2966, 1991. 15
- [ncbi2020] National Center for Biotechnology Information. Pubchem element summary for atomic number 2, helium. 2020. XVIII, 77, 116
- [nissen1988] J. A. Nissen, E. Bodegom, L. C. Brodie, and J. S. Semura. New Measurements of the Tensile Strength of Liquid ^4He . In R. W. Fast, editor, Adv. Cryog. Eng., volume 33, pages 999–1003. Springer US, Boston, MA, 1988. 16, 89
- [nissen1989] J. A. Nissen, E. Bodegom, L. C. Brodie, and J. S. Semura. Tensile strength of liquid He 4. Phys. Rev. B, 40(10) :6617–6624, October 1989. 11, 17
- [palin1971] C. J. Palin, W. F. Vinen, E. R. Pike, and J. M. Vaughan. Rayleigh and Brillouin scattering from superfluide he³-he⁴ mixtures. J. Phys. C Solid State, 4(10) :L225–L228, July 1971. 27
- [pallares2014] G. Pallares, M. El Mekki Azouzi, M. A. González, J. L. Aragonés, J. L. F. Abascal, C. Valeriani, and F. Caupin. Anomalies in bulk supercooled water at negative pressure. Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A., 111(22) :7936–7941, 2014. 28

- [pallares2016] G. Pallares, M. A Gonzalez, J. L. F. Abascal, C. Valeriani, and F. Caupin. Equation of state for water and its line of density maxima down to- 120 mpa. Phys. Chem. Chem. Ph., 18(8) :5896–5900, 2016. [28](#)
- [pellam1947] J. R. Pellam and C. F. Squire. Ultrasonic velocity and absorption in liquid helium. Phys. Rev., 72(12) :1245–1252, December 1947. [42](#), [44](#)
- [pettersen1994] M. S. Pettersen, S. Balibar, and H. J. Maris. Experimental investigation of cavitation in superfluid He 4. Phys. Rev. B, 49(17) :12062–12070, May 1994. [18](#)
- [pike1969] E. R. Pike, J. M. Vaughan, and W. F. Vinen. Brillouin scattering from first and second sound in a superfluid he³-he⁴ mixture. Phys. Lett. A, 30(7) :373–374, December 1969. [27](#), [77](#), [78](#)
- [pike1970] E. R. Pike, J. M. Vaughan, and W. F. Vinen. Brillouin scattering from superfluid⁴He. J. Phys. C Solid State, 3(2) :L40–L43, February 1970. [27](#), [28](#), [85](#)
- [pike1972] E. R. Pike. Rayleigh and Brillouin Scattering from Liquid Helium. J. Phys., Colloq., 33(C1) :C1–25–C1–26, February 1972. [27](#)
- [pohl1970] D. Pohl and W. Kaiser. Time-Resolved Investigations of Stimulated Brillouin Scattering in Transparent and Absorbing Media : Determination of Phonon Lifetimes. Phys. Rev. B, 1(1) :31–43, January 1970. [37](#), [39](#), [62](#), [63](#)
- [qu2015] A. Qu, A. Trimeche, J. Dupont-Roc, J. Grucker, and Ph. Jacquier. Cavitation density of superfluid helium-4 around 1 K. Phys. Rev. B, 91(21) :214115, June 2015. [8](#), [19](#), [21](#), [98](#), [99](#), [100](#), [101](#), [102](#), [103](#), [106](#), [111](#)
- [qu2016] A. Qu, A. Trimeche, Ph. Jacquier, and J. Grucker. Dramatic effect of superfluidity on the collapse of He 4 vapor bubbles. Phys. Rev. B, 93(17) :174521, May 2016. [93](#), [99](#)
- [qu2017] A. Qu. Experimental Study of Metastable Solid and Superfluid Helium-4. PhD thesis, 2017. [8](#), [90](#)
- [ratanaphruks1991] K. Ratanaphruks, T. W. Grubbs, and R. A. MacPhail. Cw stimulated Brillouin gain spectroscopy of liquids. Chem. Phys. Lett., 182(3-4) :371–378, August 1991. [62](#), [63](#)
- [remer2016] I. Remer and A. Bilenca. Background-free brillouin spectroscopy in scattering media at 780 nm via stimulated brillouin scattering. Opt. Lett., 41(5) :926–929, Mar 2016. [40](#)
- [rockwell1975] D. A. Rockwell, R. F. Benjamin, and T. J. Greytak. Brillouin scattering from superfluid 3He-4He solutions. J. Low Temp. Phys., 18(5) :389–425, March 1975. [27](#)
- [she1983] C. Y. She, G. C. Herring, H. Moosmüller, and S. A. Lee. Stimulated rayleigh-brillouin gain spectroscopy in pure gases. Phys. Rev. Lett., 51 :1648–1651, Oct 1983. [40](#)
- [sinha1982] D. N. Sinha, J. S. Semura, and L. C. Brodie. Homogeneous nucleation in He 4 : A corresponding-states analysis. Phys. Rev. A, 26(2) :1048–1061, August 1982. [11](#), [15](#)
- [sirisky2017] S. Sirisky, Y. Yang, W. Wei, and H. J. Maris. Laser-induced breakdown in liquid helium. J. Low Temp. Phys., 189(1-2) :53–59, 2017. [II](#)

- [souris2010] F. Souris, J. Grucker, J. Dupont-Roc, P. Jacquier, A. Arvengas, and F. Caupin. Time-resolved quantitative multiphase interferometric imaging of a highly focused ultrasound pulse. *Appl. Opt.*, 49(31) :6127, November 2010. 115
- [souris2011] F. Souris, J. Grucker, J. Dupont-Roc, and Ph. Jacquier. Observation of metastable hcp solid helium. *EuroPhys. Lett.*, 95(6) :66001, September 2011. 8
- [souris2015] F. Souris. *L’Helium Solide Metastable en Sous-Pression*. Theses, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, January 2013. 90, 116, 117, 119, 120, 121
- [st.peters1970] R.L. St. Peters, T.J. Greytak, and G.B. Benedek. Brillouin scattering measurements of the velocity and attenuation of high frequency sound waves in superfluid helium. *Opt. Comm.*, 1(9) :412–416, April 1970. 27, 42, 44, 77, 78, 85
- [stancik2008] A. L. Stancik and E. B. Brauns. A simple asymmetric lineshape for fitting infrared absorption spectra. *Vibr. Spectrosc.*, 47(1) :66–69, 2008. 76
- [taillet2018] R. Taillet, L. Villain, and P. Febvre. *Dictionnaire de physique*. De Boeck Supérieur, 2018. 9
- [tang1987] S. Y. Tang, C. Y. She, and S. A. Lee. Continuous-wave Rayleigh–Brillouin-gain spectroscopy in SF₆. *Opt. Lett.*, 12(11) :870, November 1987. 40
- [tarvin1977] J. A. Tarvin, F. Vidal, and T. J. Greytak. Measurements of the dynamic structure factor near the lambda temperature in liquid helium. *Phys. Rev. B*, 15(9) :4193–4210, May 1977. 27
- [teixeira1978] J. Teixeira and J. Leblond. Brillouin scattering from supercooled water. *J. Phys. Lett.*, 39(7) :83–85, 1978. 27
- [vidal1982] F. Vidal, J. A. Tarvin, and T. J. Greytak. High-frequency first-sound measurements near t_λ in pressurized liquid helium. *Phys. Rev. B*, 25(11) :7040–7043, June 1982. 27
- [vincent2012] O. Vincent. *Dynamique de bulles de cavitation dans de l’eau micro-confinée sous tension. Application à l’étude de l’embolie dans les arbres*. PhD thesis, Université de Grenoble, 2012. 9
- [werner2004] F. Werner, G. Beaume, A. Hobeika, S. Nascimbene, C. Herrmann, F. Caupin, and S. Balibar. Liquid helium up to 160 bar. *J. Low Temp. Phys.*, 136 :93–116, 2004. 107
- [whitney1967] W. M. Whitney and C. E. Chase. Ultrasonic Velocity and Dispersion in Liquid Helium II from 0.15 to 1.8°K. *Phys. Rev.*, 158(1) :200–214, June 1967. 85
- [wilks1967] J. Wilks. *The properties of liquid and solid helium*. Oxford University Press, 1967. 7, 79
- [winterling1968] G. Winterling, G. Walda, and W. Heinicke. Stimulated brillouin scattering in liquid helium. *Phys. Lett. A*, 26(7) :301 – 302, 1968. 34, 44, 85
- [winterling1969] G. Winterling, W. Heinicke, and K. Dransfeld. Laser-induced breakdown in liquid he 4. *Phys. Rev.*, 185(1) :285, 1969. II
- [winterling1973] G. Winterling, F. S. Holmes, and T. J. Greytak. Light Scattering from First and Second Sound near the t_λ Transition in Liquid He. *Phys. Rev. Lett.*, 30(10) :427–430, March 1973. 27

- [winterling1974] G. Winterling, F. S. Holmes, and T. J. Greytak. Brillouin Light Scattering from Superfluid Helium under Pressure. In K. D. Timmerhaus, W. J. O'Sullivan, and E. F. Hammel, editors, Low Temperature Phys.-LT 13 : Volume 1 : Quantum Fluids, pages 537–541. Springer US, Boston, MA, 1974. 27
- [woolf1966] M. A. Woolf, P. M. Platzman, and M. G. Cohen. Brillouin Scattering in Liquid Helium II. Phys. Rev. Lett., 17(6) :294–297, August 1966. 42, 85
- [xiong1989] Q. Xiong and H. J. Maris. Liquid helium at negative pressures : Nucleation of bubbles and anomalous phonon dispersion. J. Low Temp. Phys., 77(5-6) :347–369, December 1989. 17, 18
- [xiong1991] Q. Xiong and H. J. Maris. Study of cavitation in superfluid helium-4 at low temperatures. J. Low Temp. Phys., 82(3) :105–118, 1991. 17, 89, 110
- [zheng1991] Q. Zheng, D.J. Durben, G.H. Wolf, and C.A. Angell. Liquids at large negative pressures : water at the homogeneous nucleation limit. Science, 254(5033) :829–832, 1991. 9



RÉSUMÉ

L'hélium 4 liquide à basse température est un système modèle pour l'étude de la matière condensée car il peut être préparé expérimentalement avec une remarquable pureté. Il est ainsi possible de réaliser des états métastables de l'hélium 4 très éloignés de l'équilibre thermodynamique. Notre équipe a développé une technique expérimentale permettant de créer de tels états métastables (états de pression négative) par la focalisation d'ondes acoustiques dans le liquide. Pour une densité suffisamment faible, l'hélium 4 métastable se déstabilise et une bulle de gaz apparaît. Ce phénomène est appelé « cavitation ». Cependant, la densité de cavitation mesurée à $T \sim 1$ K, combinée avec l'équation d'état théorique actuelle, conduit à une pression de cavitation incompatible avec des estimations expérimentales indépendantes. Seule une investigation expérimentale directe des propriétés de l'hélium à pression négative pourra permettre de lever cette contradiction.

Au cours de ma thèse, nous avons développé une technique de spectroscopie Brillouin stimulée qui permet de sonder la vitesse du premier son de l'hélium 4 à pression négative. Combinée avec la technique de mesure de la densité, cette technique nous a permis de mesurer l'équation d'état de l'hélium métastable jusqu'à des pressions de -1 bar. De nouvelles estimations de la pression de cavitation sont également effectuées, compatibles avec un mécanisme de nucléation homogène dans l'hélium, mais qui laissent entrevoir l'effet possible des vortex quantiques dans le processus de cavitation.

MOTS CLÉS

Hélium superfluide métastable, Spectroscopie Brillouin, Équation d'état

ABSTRACT

Liquid helium 4 at low temperature is a model system for the study of condensed matter because it can be prepared experimentally with a remarkable purity. It is thus possible to realize metastable states of helium 4 very far from the thermodynamic equilibrium. Our research team has developed an experimental technique to create such metastable states (negative pressure states) by focusing acoustic waves in the liquid. For a sufficiently low density, the metastable helium 4 destabilizes and a gas bubble appears. This phenomenon is called "cavitation". However, the measured cavitation density at $T \sim 1$ K, combined with the current theoretical equation of state, leads to a cavitation pressure which is incompatible with independent experimental estimations. Only a direct experimental investigation of the properties of helium at negative pressure could resolve this contradiction.

During my thesis, we have developed a stimulated Brillouin spectroscopy technique which allows to probe the speed of the first sound of helium at negative pressure. Combined with the density measurement technique, this technique allowed us to measure the equation of state of metastable helium down to pressures of -1 bar. New estimates of the cavitation pressure are also made, consistent with a homogeneous nucleation mechanism in helium, but which hint at the possible effect of quantum vortices in the cavitation process.

KEYWORDS

Metastable superfluid helium, Brillouin spectroscopy, Equation of state