

T0100
1928/DS

1978-3
(043) D.E.

THÈSE

présentée à

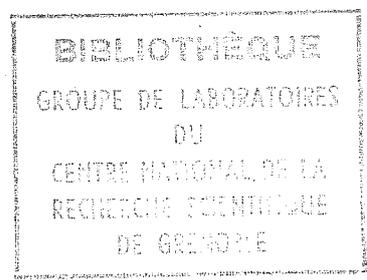
L'UNIVERSITE SCIENTIFIQUE ET MEDICALE
ET L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE
DE GRENOBLE

pour obtenir le grade

DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

par

Gérard SCHUMACHER



SUJET

Réfrigération par dilution d' ^3He dans l' ^4He
dans la région du millikelvin -
Solutions nouvelles -
Application à l'étude de SiO_2 amorphe
par échos dipolaires électriques -

Soutenue le 20 mars 1978 devant la commission d'Examen

- Président : B. DREYFUS
J. JOFFRIN
A. LACAZE
Examineurs : A. LIBCHABER
P. ROUBEAU
D. THOULOZE

Monsieur Gabriel CAU : Président
Monsieur Joseph KLEIN : Vice-Président

MEMBRES DU CORPS ENSEIGNANT de l'U.S.M.G.

PROFESSEURS TITULAIRES.

MM	AMBLARD Pierre	Clinique de dermatologie
	ARNAUD Paul	Céramie
	ARVIEU Robert	I.S.N.
	AUPERT Guy	Physique
	AVANT Yves	Physique approfondie
Mme	DARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM.	BARRIER Jean-Claude	Physique Experimentale
	BARRIER Reynold	Géologie appliquée
	BARTON Robert	Physique nucléaire
	BARUOD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BARRA Jean-René	Statistiques
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale A
	BRANDOING André	Clinique de Pédiatrie et Neurologie
	BELOREZKY Elic	Physique
	BERNARD Alain	Mathématiques Pures
Mme	BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques Pures
MM.	BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques Pures
	BEZES Henri	Clinique chirurgicale et Dermatologie
	BLANBERT Maurice	Mathématiques Pures
	BOLLIET Louis	Topographie (Géomé)
	BONNET Jean-Louis	Clinique Ophtalmologie
	BONNET-DEMATO Joseph	Clinique d'Ophtalmologie et d'Otologie
Mme	BONNET Marie-Jeanne	Chimie générale
Ml.	BOUCHERLE André	Chimie et Biochimie
	BOUCHER Robert	Physique nucléaire
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques Appliquées
	BOUDET DE MONVEL Louis	Mathématiques Pures
	BRAYAS Yves	Géographie
	CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et Endocrinologie
	CALAS François	Aléatoire
	CARLIER Georges	Ecologie végétale
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et humaine appliquée
	CAU Gabriel	Médecine légale et toxicologie
	CAQUAIS Georges	Chimie organique
	CHARAUFY Claude	Mathématiques Pures
	CHARACHON Robert	Clinique Oto-rhino-Laryngologique
	CHATEAU Robert	Clinique de neurologie
	CHIRON Pierre	Biologie animale
	COEUR André	Pharmacie chimique et chimie analytique
	CONDERS Pierre	Anatomie pathologique
	DEBELMAS Jacques	Géologie générale
	DEBRANGE Charles	Zoologie
	DEJORMAS Pierre	Pneumophtisiologie

MM.	DEPORTES Charles	Chimie minérale
	DESRE Pierre	Métallurgie
	DODU Jacques	Mécanique appliquée (IUT I)
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	DUCROS Pierre	Cristallographie
	FONTAINE Jean-Marc	Maths pures
	GAGNAIRE Didier	Chimie Physique
	GALVANI Octave	Mathématiques pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GAVEND Michel	Pharmacologie
	GFINDRE Michel	Electroradiologie
	GERBER Robert	Mathématiques pures
	GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
	GIRAUD Pierre	Géologie
	JANIN Bernard	Géographie
	KAHANE André	Physique générale
	KLEIN Joseph	Mathématiques pures
	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques pures
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
Mme	LAJZEROWICZ Janine	Physique
MM.	LAIZEROWICZ Joseph	Physique
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie Pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LE ROY Philippe	Mécanique (IUT I)
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LOISEAUX Jean-Marie	Sciences nucléaires
	LONGEQUEDE Jean-Pierre	Physique nucléaire
	LOUP Jean	Géographie
Mle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques pures
MM.	MALINAS Yves	Clinique obstétricale
	MARTIN-NOËL Pierre	Clinique cardiologique
	MAYNARD Roger	Physique du solide
	MAZARE Yves	Clinique Médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Paléontologie
	MICOD Max	Clinique Maladies Infectieuses
	MOURIQUAND Claude	Histologie
	MOUSSA André	Chimie nucléaire
	NECRE Robert	Mécanique
	NOËLIERES Philippe	Spectrométrie Physique
	OZEDA Paul	Botanique
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques pures
	PELAY-REYBOULA Jean-Claude	Physique
	PERRIN Jean	Sémiologie Médicale (Neurologie)
	RASSAT André	Chimie systématique
	RENAUD Michel	Thermodynamique
	REVOL Michel	Urologie
	RINALDI Renaud	Physique
	DE ROUCHEMONT Jacques	Neuro-Chirurgie
	SARRAZIN Roger	Clinique chirurgicale B
	SEIGNEURIN Raymond	Microbiologie et Hygiène
	SENGEL Philippe	Zoologie
	SIBILLE Robert	Construction mécanique (IUT I)
	SOUTIF Michel	Physique générale
	TANCHE Maurice	Physiologie

MM.	VAILLANT François	Zoologie
	VALENTIN Jacques	Physique Nucléaire
Mme	VERAIN Alice	Pharmacie galénique
MM.	VERAIN André	Physique - Biophysique
	VEYRET Paul	Géographie
	VIGNAIS Pierre	Biochimie médicale

PROFESSEURS ASSOCIES

MM.	CRABBE Pierre	CERMO
	SUNIER Jules	Physique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

Mlle	AGNIUS-DELORD Claudine	Physique pharmaceutique
	ALARY Josette	Chimie analytique
MM.	AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
	ARMAND Gilbert	Géographie
	BENZAKEN Claude	Mathématiques appliquées
	BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
	BILLET Jean	Géographie
	BOUCHET Yves	Anatomie
	BRUGEL Lucien	Energétique (IUT I)
	BUISSON René	Physique (IUT I)
	BUTEL Jean	Orthopédie
	COHEN-ADDAD Jean-Pierre	Spectrométrie physique
	COLOMB Maurice	Biochimie médicale
	CONTE René	Physique (IUT I)
	DELOBEL Claude	M.I.A.G.
	DEPASSEL Roger	Mécanique des fluides
	GAUTRON René	Chimie
	GIDON Paul	Géologie et Minéralogie
	GLENAT René	Chimie organique
	GROULADE Joseph	Biochimie médicale
	HACQUES Gérard	Calcul numérique
	HOLLARD Daniel	Hématologie
	HUGONOT Robert	Hygiène et Médecine préventive
	IDELMAN Simon	Physiologie animale
	JOLY Jean-René	Mathématiques Pures
	JULLIEN Pierre	Mathématiques Appliquées
Mme	KAHANE Josette	Physique
MM.	KRAKOWLACK Sacha	Mathématiques Appliquées
	KUHN Gérard	Physique (IUT I)
	LUU DUC Cuong	Chimie organique - Pharmacie
	MICHOULIER Jean	Physique (IUT I)
Mme	MINIER Colette	Physique (IUT I)
MM.	PELMONT Jean	Biochimie
	PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et Minéralogie
	PFLISTER Jean-Claude	Physique du solide
Mlle	PIERY Yvette	Physiologie animale

MM.	RAYNAUD Hervé	M.I.A.G.
	REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
	REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
	RICHARD Lucien	Biologie végétale
Mme	RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire
MM.	SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
	SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme	SOUTIF Jeanne	Physique générale
MM.	STIEGLITZ Paul	Anesthésiologie
	VIALON Pierre	Géologie
	VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques appliquées

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

MM.	ARMAND Yves	Chimie (IUT I)
	BACHELOT Yvan	Endocrinologie
	BARCE Michel	Neuro-chirurgie
	BEGUIN Claude	Chimie organique
Mme	BERIEL Héliène	Pharmacodynamie
MM.	BOST Michel	Pédiatrie
	BOUCHARLAT Jacques	Psychiatrie adultes
Mme	BOUCHE Liene	Mathématiques (CUS)
MM.	BRODEAU François	Mathématiques (IUT E) (Personne étrangère habilitée à être recteur de thèse).
	BERNARD Pierre	Gynécologie
	CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
	CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
	CHARDON Michel	Géographie
	CHERADANE Hervé	Chimie papetière
	CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)
	COLIN DE VERDIERE Yves	Maths pures
	CONTAMIN Charles	Chirurgie thoracique et cardio-vasculaire
	CORDONNIER Daniel	Néphrologie
	COULOMB Max	Radiologie
	CROUZET Guy	Radiologie
	CYROT Michel	Physique du solide
	DENIS Bernard	Cardiologie
	DOUCE Roland	Physiologie végétale
	DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme	ETENKADOSSI Jacqueline	Physiologie
MM.	FAURE Jacques	Médecine légale
	FAURE Gilbert	Urologie
	GAUTIER Robert	Chirurgie générale
	GIDON Maurice	Géologie
	GROS Yves	Physique (IUT I)
	GUIGNIER Michel	Thérapeutique
	GUITTON Jacques	Chimie
	HICTER Pierre	Chimie
	JALBERT Pierre	Histologie
	JUNIEN-LAVILLAVROY Claude	C.R.L.
	KOLODIE Lucien	Hématologie
	LE NOC Pierre	Bactériologie-virologie
	MACHE Régis	Physiologie végétale
	MAGNIN Robert	Hygiène et médecine préventive
	MALLETON Jean-Michel	Médecine du travail

M. MARECHAL Jean
 MARTIN-BOUYER Michel
 MASSOT Christian
 NEMOZ Alain
 NOUGARET Marcel
 PARAMELLE Bernard
 PECCOUD François

Mécanique (IUT I)
 Chimie (CUS)
 Médecine interne
 Thermodynamique
 Automatique (IUT I)
 Pneumologie
 Analyse (IUT B) (Personnalité étrangère
 habilitée à être directeur
 de thèse).

PEFFEN René
 PERRIER Guy
 PHELIP Xavier
 RACHAIL Michel
 RACINET Claude
 RAMBAUD Pierre
 RAPHAEL Bernard
 Mme RENAUDET Jacqueline
 ROBERT Jean-Bernard
 ROMIER Guy

Métallurgie (IUT I)
 Géophysique-Glaciologie
 Rhumatologie
 Médecine Interne
 Gynécologie et Obstétrique
 Pédiatrie
 Stomatologie
 Bactériologie (Pharmacie)
 Chimie-Physique
 Mathématiques (IUT B) (Personnalité étran-
 gère habilitée à être
 directeur de thèse.)

SAKAROVITCH Michel
 SCHAEERER René
 Mme SEIGLE-MURANDI Françoise
 STOEBNER Pierre
 STUTZ Pierre
 VROUSOS Constantin

Maths appliquées
 Cancérologie
 Cryptogamie
 Anatomie Pathologie
 Mécanique
 Radiologie

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES.

MM. DEVINE Roderick
 KANEKO AKIRA
 JOHNSON Thomas
 RAY Tuhina

Spectro Physique
 Maths pures
 Maths appliquées
 Physique

MAITRE DE CONFERENCES DELEGUE

M. ROCHAT Jacques

Hygiène et Hydrologie (Pharmacie)

Fait à SAINT MARTIN D'HERES, NOVEMBRE 1977

Président : M. Philippe TRAYNARD

Vice-Présidents : M. Pierre-Jean LAURENT
M. René PAUTHENET

PROFESSEURS TITULAIRES

MM. BENOIT Jean	Radioélectricité
BESSON Jean	Electrochimie
BLOCH Daniel	Physique du solide
BONNETAIN Lucien	Chimie minérale
BONNIER Etienne	Electrochimie et Electrometallurgie
BRISSONNEAU Pierre	Physique du solide
BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
COUMES André	Radioélectricité
DURAND Francis	Métallurgie
FELICI Noël	Electrostatique
FOULARD Claude	Automatique
LESPINARD Georges	Mécanique
MOREAU René	Mécanique
PARIAUD Jean-Charles	Chimie-Physique
PAUTHENET René	Physique du solide
PERRET René	Servomécanismes
POLOUJADOFF Michel	Electrotechnique
VEILLON Gérard	Informatique fondamentale et appliquée

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM. BLIMAN Samuel	Electronique
BOUVARD Maurice	Génie Mécanique
COHEN Joseph	Electrotechnique
LACOUME Jean-Louis	Géophysique
LANCIA Roland	Electronique
ROBERT François	Analyse numérique
ZADWORNY François	Electronique

MAITRES DE CONFERENCES

MM. ANCEAU François	Mathématiques Appliquées
CHARTIER Germain	Electronique
GUYOT Pierre	Chimie Minérale
IVANES Marcel	Electrotechnique
JOUBERT Jean-Claude	Physique du solide
LESIEUR Marcel	Mécanique
MORET Roger	Electrotechnique Nucléaire
PIAU Jean-Michel	Mécanique
PIERRARD Jean-Marie	Mécanique
SABONNADIÈRE Jean-Claude	Informatique Fondamentale et Appliquée
MMe. SAUCIER Gabrièle	Informatique Fondamentale et Appliquée

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

M. FRUCHART Robert	Directeur de Recherche
MM. ANSARA Ibrahim	Maître de Recherche
CARRE René	Maître de Recherche
DRIOLE Jean	Maître de Recherche
LANDAU Ioan Doré	Maître de Recherche
MATHIEU Jean-Claude	Maître de Recherche
MUNIER Jacques	Maître de Recherche

Je voudrais simplement dire ici à
Françoise combien je suis sensible à la
compréhension dont elle a fait preuve ces
dernières années en ne faisant pas trop
d'histoires pour le peu de temps que je
consacrais à ma famille, pour mes accès
de mauvaise humeur et pour tout ce que je
ne lui ai pas donné, faute de temps, ce
qui est et restera toujours une bien piè-
tre excuse.

SOMMAIRE

Avant-propos	1
Introduction (Historique)	5
Références de l'introduction	11

CHAPITRE I : Le réfrigérateur à dilution conventionnel

I) <u>Description générale</u>	
A) Implantation	15
B) Dispositifs anti-vibrations	18
C) Cryostat	18
D) Circuits de gaz	20
E) Calcul des canalisations de pompage	28
F) Protection de l'appareil - Sécurités	33
II) <u>Partie basses températures du réfrigérateur</u>	
A) Boîte à 1 K	37
B) Impédance variable	37
C) Evaporateur	41
D) Echangeurs de chaleur	
1) Principes généraux	46
2) Réalisation pratique	
a) L'échangeur coaxial tubulaire	48
b) Les échangeurs à poudre métallique frittée	49
3) Résultats expérimentaux	55
E) Connexions démontables	59
Conclusion	60
Références du chapitre I	63

CHAPITRE II : Le réfrigérateur à dilution à circulation d' ^4He

I) <u>Le réfrigérateur de Leiden</u>	67
II) <u>Le réfrigérateur de Grenoble</u>	72

III) <u>Analyse du fonctionnement du réfrigérateur</u>	
A) Bilan molaire et puissance frigorifique	77
B) Echange de chaleur dans le capillaire	
1) Blocage de la circulation par tension de surface	79
2) Blocage de la circulation par viscosité	80
3) Mécanismes d'échange	
a) Résistance de Kapitza	81
b) Température minimale	82
c) Notion de surface d'échange équivalente	83
C) Mesure de la puissance frigorifique - Bilan des pertes	84
Conclusions	88
<u>Annexe I</u> : Les superfuites - La pompe à effet fontaine	91
<u>Annexe II</u> : Simulation de circulation diphasique à température ambiante	97
Références du chapitre II	101
<u>Annexe III</u> : Publication	103
<u>CHAPITRE III</u> : Réfrigérateur à dilution conventionnel avec boîtes à mélange multiples	
I) Définition du système - Arrangement général	114
II) Bilan d'enthalpie - Performances	117
III) Résultats expérimentaux	120
Références du chapitre III	123
Légende des figures du chapitre III	124
<u>Annexe</u> : Programme de calcul pour les boîtes à mélange multiples	133

<u>CHAPITRE IV</u> : Echos dipolaires électriques dans les verres	141
I) Propriétés thermiques des verres à basses températures	143
II) Modèle des systèmes à deux niveaux	144
III) Propriétés diélectriques	147
IV) Phénomènes d'échos avec une assemblée de systèmes à deux niveaux	148
V) Technique expérimentale	152
Références	157
<u>Annexe</u> : publication.	159

AVANT - P R O P O S

Nous présentons dans ce mémoire les résultats des recherches que nous avons effectuées dans le domaine de la réfrigération aux très basses températures par dilution d' ^3He dans l' ^4He . Comme exemple d'application de ces techniques, nous présentons également la première mise en évidence expérimentale et les mesures effectuées sur les échos dipolaires électriques dans les verres. Nous avons adopté le plan suivant :

Chapitre I : La réfrigération par dilution classique.

Nous décrivons le réfrigérateur conventionnel que nous avons construit et utilisé par la suite, en développant surtout les points qui nous semblent importants ou originaux.

Les chapitres II et III concernent des aspects plus inhabituels dans le domaine des réfrigérateurs à dilution. Les études qui y sont exposées, ont été effectuées dans un esprit d'ouverture sur des méthodes nouvelles pouvant déboucher sur des résultats intéressants. L'effort de réflexion qu'elles ont suscité nous ont apporté une connaissance plus approfondie des phénomènes concernant les mélanges $^3\text{He}-^4\text{He}$ en général. Dans certains cas (chapitre III), ces études ont abouti à une amélioration sensible des performances du réfrigérateur classique.

Chapitre II : Réfrigérateur à dilution à deux étages. Le premier étage est un réfrigérateur conventionnel à circulation d' ^3He . Le deuxième étage est un réfrigérateur à circulation d' ^4He .

Chapitre III : Réfrigérateur à dilution conventionnel équipé de plusieurs boîtes à mélange en série permettant de prérefroidir le courant d' ^3He concentré et d'abaisser ainsi la température finale.

Chapitre IV : Expériences récentes effectuées sur les verres mettant en évidence l'existence de phénomènes d'échos dus aux dipôles électriques marqueurs des systèmes à deux niveaux.

I N T R O D U C T I O N

HISTORIQUE DE LA REFRIGERATION PAR DISSOLUTION

D'³He DANS L'⁴He

L'utilisation de solutions diluées d'³He dans l'⁴He pour l'obtention de très basses températures fut suggérée pour la première fois par H. LONDON⁽¹⁾ en 1951. Il émit l'idée que des atomes d'³He mélangés à de l'⁴He superfluide devaient se comporter comme un gaz de Fermi idéal dont le volume est déterminé par le superfluide. Il suffirait donc d'effectuer une détente isentropique sur ce "quasi-gaz" d'³He pour produire du froid. Le principe des réfrigérateurs à dilution était né. En 1956, WALTER et FAIRBANK⁽²⁾ mettaient en évidence le phénomène de séparation de phases dans les mélanges ³He-⁴He (fig. 1). En dessous de la température de séparation de phases (0,872 K) il y a coexistence de deux phases : une phase où l'³He est en solution dans l'⁴He superfluide (phase diluée) et une phase riche en ³He (phase concentrée) qui, à cause de sa densité plus faible "flotte" au-dessus de la phase diluée. Plus tard des études théoriques puis expérimentales devaient démontrer qu'au voisinage du zéro absolu la séparation de phase est incomplète et que la concentration de la phase diluée garde une valeur finie égale à 6,7 %⁽³⁾⁽⁴⁾. Dès lors, les chercheurs de différents laboratoires essayèrent de mettre ces principes en application et construisirent des machines capables de produire réellement des très basses températures. En fait il est possible d'effectuer la détente du "gaz d'³He" de deux manières différentes et les recherches se poursuivirent parallèlement dans ces deux directions :

- les réfrigérateurs à dilution à circulation d'³He que l'on appellera par la suite les appareils "conventionnels",
- les réfrigérateurs à dilution à circulation d'⁴He.

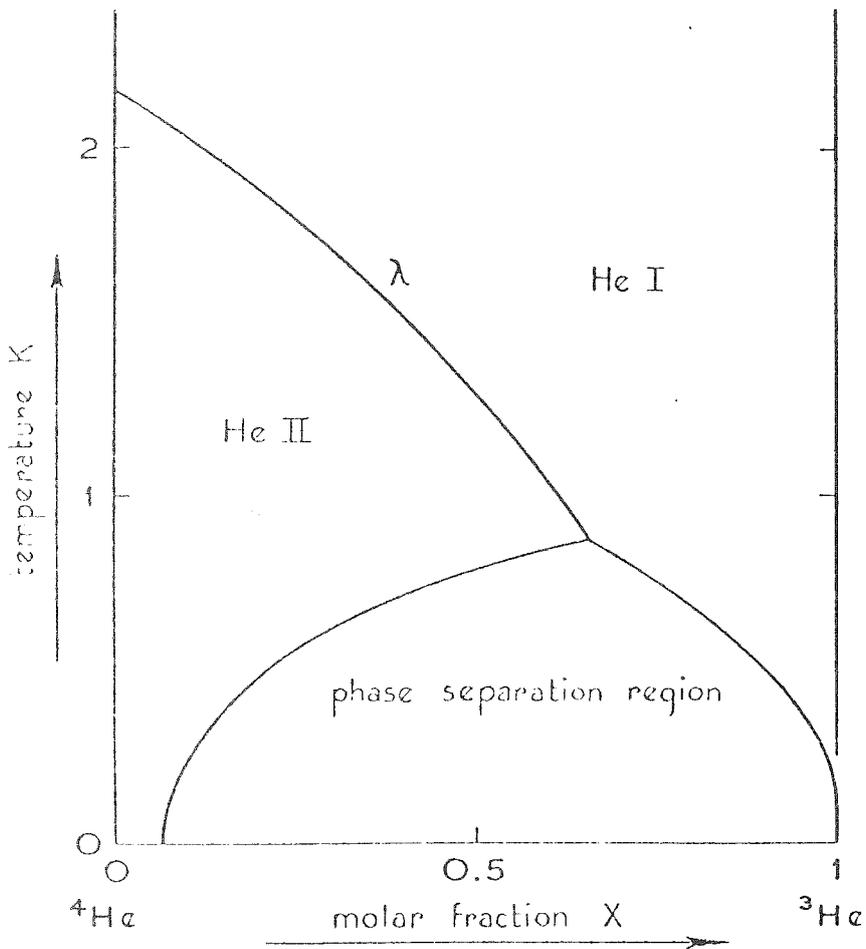


FIGURE 1

Diagramme de séparation de phase des solutions ^3He - ^4He . La ligne λ représente la frontière entre la région du fluide normal (He I) et la région du superfluide (He II)

I - LES REFRIGERATEURS A DILUTION CONVENTIONNELS

En 1960, LONDON, CLARKE et MENDOZA⁽⁵⁾ proposèrent de refroidir une solution d' ^3He - ^4He en dessous de 0,8 K dans un récipient appelé "boîte à mélange" et de produire le froid par "quasi-évaporation" de l' ^3He de la phase concentrée dans la phase diluée. Pour cela, on extrait l' ^3He de la phase diluée et de façon à opérer en mode continu on le réinjecte dans la phase concentrée. Dans ce processus, on "circule" donc l' ^3He . L'extraction de l' ^3He de la phase diluée est effectuée par distillation à plus haute température et le gaz ^3He est véhiculé à la température ambiante par une pompe avant d'être recondensé puis réinjecté.

Le premier appareil basé sur ce principe a été construit à Leiden par DAS, De BRUYN OUBOTER et TACONIS en 1964⁽⁶⁾. En 1966, des températures de l'ordre de 0,05 K furent atteintes par HALL, FORD et THOMPSON⁽⁷⁾ à Manchester et par NEGANOV, BORISOV et LIBURG⁽⁸⁾ à Dubna. Enfin, en 1967, ABEL, VILCHES et WHEATLEY⁽⁹⁾ obtenaient à La Jolla des températures de l'ordre de 4,5 mK en mode discontinu. Pour obtenir les plus basses températures possibles en mode continu, il faut prérefroidir l' ^3He qui est injecté dans la boîte à mélange. Ceci se fait par échange de chaleur avec la phase diluée qui est plus froide. Cet échange est limité à très basse température par la résistance de Kapitza qui est proportionnelle à T^{-3} et qui impose l'utilisation de très grandes surfaces d'échange.

WHEATLEY et ses collaborateurs⁽¹⁰⁾ ont construit des échangeurs de chaleur discrets où le rapport surface sur volume est augmenté par l'utilisation de poudre de cuivre frittée. D'autres groupes ont également utilisé ces techniques (PESHKOV⁽¹¹⁾, LOUNASMAA et coll.⁽¹²⁾, NEGANOV⁽¹³⁾, RADEBAUGH⁽¹⁴⁾) et des températures comprises entre 10 et 20 mK sont obtenues couramment. De tels appareils sont actuellement disponibles commercialement.

Les températures les plus basses ont été obtenues récemment dans un appareil à dilution conventionnel dans notre laboratoire par FROSSATI⁽¹⁵⁾. Ce réfrigérateur permet de refroidir la boîte à mélange à une température avoisinant 2 mK avec des échangeurs de chaleur continus de très grande surface (300 m^2) constitués de poudre d'argent très fine (0,07 μ).

Dans le premier chapitre de cet ouvrage, nous exposerons plus

en détail la réalisation pratique d'un réfrigérateur de ce type que nous avons utilisé par la suite pour nos expériences.

II - LES REFRIGERATEURS A DILUTION A CIRCULATION D'⁴He

La seconde méthode possible pour détendre le quasi-gaz d'³He est d'effectuer une détente isentropique par addition d'⁴He superfluide d'entropie nulle au moyen d'une superfuite. Des recherches ont été effectuées dans cette voie à Leiden également à partir de 1967⁽¹⁶⁾. Dans un réfrigérateur de ce type, que nous décrivons en détail dans le deuxième chapitre de cette thèse, l'⁴He est injecté par une superfuite dans une boîte à mélange qui contient déjà de l'³He. Cet ³He est dilué par l'⁴He, en produisant du froid. De façon à obtenir un cycle fermé, l'⁴He est extrait de la phase diluée par une deuxième superfuite à plus haute température dans ce qu'on appelle la boîte à démixion. Ces deux boîtes sont reliées par un tube dans lequel la phase diluée provenant du mélange et la phase concentrée provenant de la démixion qui sont thermodynamiquement en équilibre, circulent à contre-courant par simple différence de densité. L'échange de chaleur se fait par contact direct en milieu liquide en évitant ainsi l'obstacle de la résistance de Kapitza. C'est donc l'⁴He qui circule dans un tel système. Dans l'appareil de Leiden⁽¹⁷⁾ la chaleur produite par la démixion est évacuée à l'aide d'un réfrigérateur à ³He classique accolé à la boîte à démixion. Il apparaît donc à ce niveau une résistance de Kapitza pour le transfert de la chaleur. Dans notre laboratoire⁽¹⁸⁾, ainsi qu'à Eindhoven⁽¹⁹⁾ des appareils évitant cet inconvénient ont été mis en oeuvre, le réfrigérateur à ³He étant remplacé par un réfrigérateur à dilution conventionnel dont la boîte à mélange est en même temps la boîte à démixion du réfrigérateur à circulation d'⁴He.

Dans le deuxième chapitre de cette thèse, nous exposons aussi les résultats des études qui ont été faites sur ce type d'appareil.

III - LES BOITES A MELANGES MULTIPLES

Un développement récent des réfrigérateurs à dilution conventionnels a été proposé par De WAELE⁽²⁰⁾ en 1976. L'utilisation de

plusieurs boîtes à mélange en série permet de prérefroidir le courant d'³He concentré, chaque boîte à mélange fonctionnant comme un échangeur de chaleur parfait. Par cette méthode que nous avons développée⁽²¹⁾ et qui est exposée dans le troisième chapitre, nous avons amélioré les performances du réfrigérateur conventionnel décrit au chapitre I en atteignant en mode continu une température de 2,8 mK.

R E F E R E N C E S

- 1 - H. LONDON, Proceedings of the International Conference on Low Temperature Physics, Oxford (Clarendon Laboratory, 1951), p. 157.
- 2 - G.K. WALTERS and W.M. FAIRBANK, Phys. Rev. 103 (1956) 262.
- 3 - D.O. EDWARDS, J.G. DAUNT, Phys. Rev. 124 (1961) 680.
- 4 - D.O. EDWARDS, D.F. BREWER, P. SELIGMANN, M. SKERTIE, M. YAQUB, Phys. Rev. Lett. 15 (1965) 773.
- 5 - H. LONDON, G.R. CLARKE and E. MENDOZA, Phys. Rev. 128 (1962) 1992.
- 6 - P. DAS, R. de BRUYN OUBOTER and K.W. TACONIS, Proceedings of the 9th International Conference on Low Temperature Physics, Columbus, Ohio 1964, p. 1253 (Plenum Press, New York, 1965).
- 7 - H.E. HALL, P.J. FORD and K. THOMPSON, Cryogenics 6 (1966) 80.
- 8 - B. NEGANOV, N. BORISOV and M. LIBURG, J. Exptl. Theoret. Phys. (U.S.S.R.) 50 (1966) 1445, Soviet Phys. JETP 23 (1966) 959.
- 9 - O.E. VILCHES and J.C. WHEATLEY, Phys. Letters 24A (1967) 440 and 25A (1967) 344.
- 10 - J.C. WHEATLEY, O.E. VILCHES and W.R. ABEL, Physics 4 (1968) 1.
- 11 - V.P. PESHKOV, Usp. Fiz. Nauk 94 (1968) ; Proceedings L.T. 11, St. Andrews, Scotland 1968.
- 12 - G.J. EHNHOLM, T.E. KATILA, O.V. LOUNASMAA and P. REIVARI, Cryogenics 8 (1968) 136.
- 13 - B.S. NEGANOV, Vestn. Akad. Nauk SSSR 12 (1968) 49.
- 14 - R. RADEBAUGH, N.B.S. Report N° 362 (U.S. Government printing office, Washington).
- 15 - G. FROSSATI, H. GODFRIN, B. HEBRAL, G. SCHUMACHER and D. THOULOZE, à paraître au "Journal of the Phys. Society of Japan", dans les Proceedings of the Symp. Phys. Ultralow Temp. (Hakoné, Japan).
- 16 - K.W. TACONIS, P. DAS and R. de BRUYN OUBOTER, Proceedings 12th International Conference of the Commission I of the International Institute of Refrigeration, Madrid, Spain, p. 109 (1967).
- 17 - K.W. TACONIS, N.H. PENNING, P. DAS and R. de BRUYN OUBOTER, Physica 56 (1971) 168 (Commun. Kamerlingh Onnes Lab., Leiden N° 389b).
- 18 - G. FROSSATI, G. SCHUMACHER and D. THOULOZE, Proceedings L.T. 14, Otaniemi, Finland 1975, vol. 4, p. 13.

- 19 - F.A. STAAS and H.C.M. van der WAERDEN, Proceedings L.T. 14, Otaniemi, Finland 1975, vol. 4, p. 17.
- 20 - De WAELE, REEKERS and GLJSMAN, Proceedings of the ICEC VI (Grenoble 1976) Edit. Mendelshors FRS IPC Sci. and Tech. Press Ltd.
- 21 - G. FROSSATI, H. GODFRIN, B. HEBRAL, G. SCHUMACHER and D. THOULOZE, à paraître au "Journal of the Phys. Society of Japan", dans les Proceedings of the Symp. Phys. Ultralow Temp. (Hakoné, Japan).

CHAPITRE I

LE REFRIGERATEUR A DILUTION CONVENTIONNEL

Le réfrigérateur à dilution qui va être décrit dans ce chapitre constitue en partie l'aboutissement de toute l'expérience que nous avons pu acquérir dans le domaine de la Physique et de la Technologie des très basses températures depuis une dizaine d'années dans notre laboratoire. Il a été conçu en vue d'une utilisation très générale car lorsque l'on veut effectuer une expérience dans des conditions extrêmes, le paramètre le plus difficile à mettre en oeuvre et qui conditionne toute la configuration de l'ensemble est le plus souvent la température. Il a donc été dessiné dans un esprit de grande performance, d'utilisations multiples et de grande sécurité de fonctionnement. C'est un appareil à tout faire dans le domaine du millikelvin, ceci pendant un temps indéfini. Dans ce but, nous avons porté notre attention essentiellement sur les points suivants :

- possibilité de circuler de forts débits d' ^3He (600 $\mu\text{mole/s}$) pour conserver aux plus basses températures une puissance frigorifique non négligeable.
- volume d'expérimentation important.
- diminution des apports de chaleur parasites par vibrations.
- protection des organes de fonctionnement et des circuits de gaz.
- **commodité** d'emploi en fonctionnement normal.

Il n'est pas possible dans le cadre de ce chapitre d'exposer le principe et le fonctionnement d'un réfrigérateur à dilution conventionnel. Ces problèmes sont largement traités dans la littérature et dans ce qui suit nous les supposerons bien connus (voir par exemple réf. 1, 2, 3 ou 4). Nous décrirons les caractéristiques générales de notre appareil et nous insisterons seulement sur les points qui nous semblent importants ou originaux.

I - DESCRIPTION GENERALE

A) Implantation.

Le réfrigérateur est disposé sur le plancher d'une salle d'expérimentation et surmonte une fosse ce qui permet une grande extension verticale (voir figure 1). Le cryostat se trouve au-dessus du plancher et est maintenu par un "système antivibration". Il se démonte en retirant les différentes enceintes du cryostat par la fosse. Les

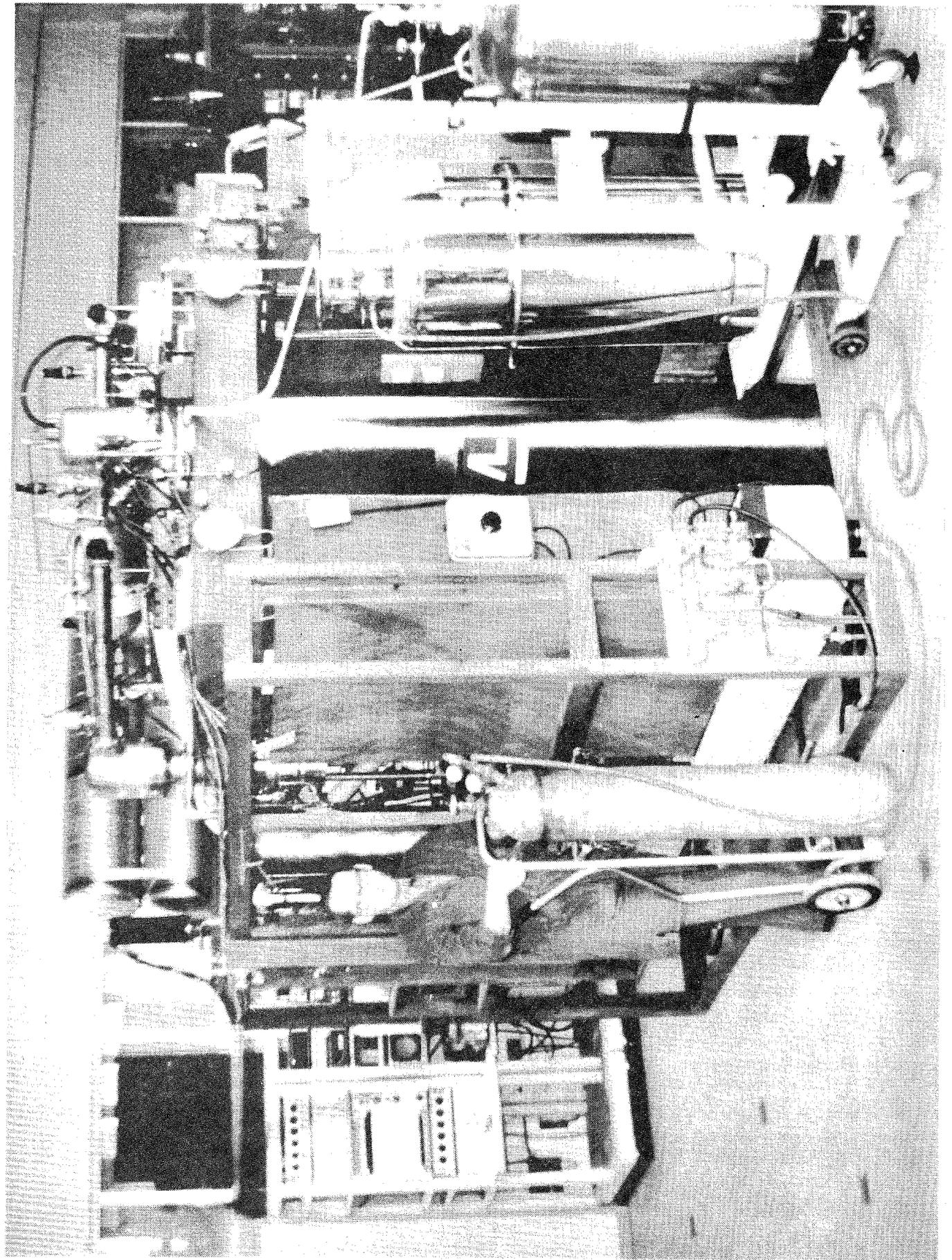


FIGURE 1

Vue générale du réfrigérateur côté cryostat

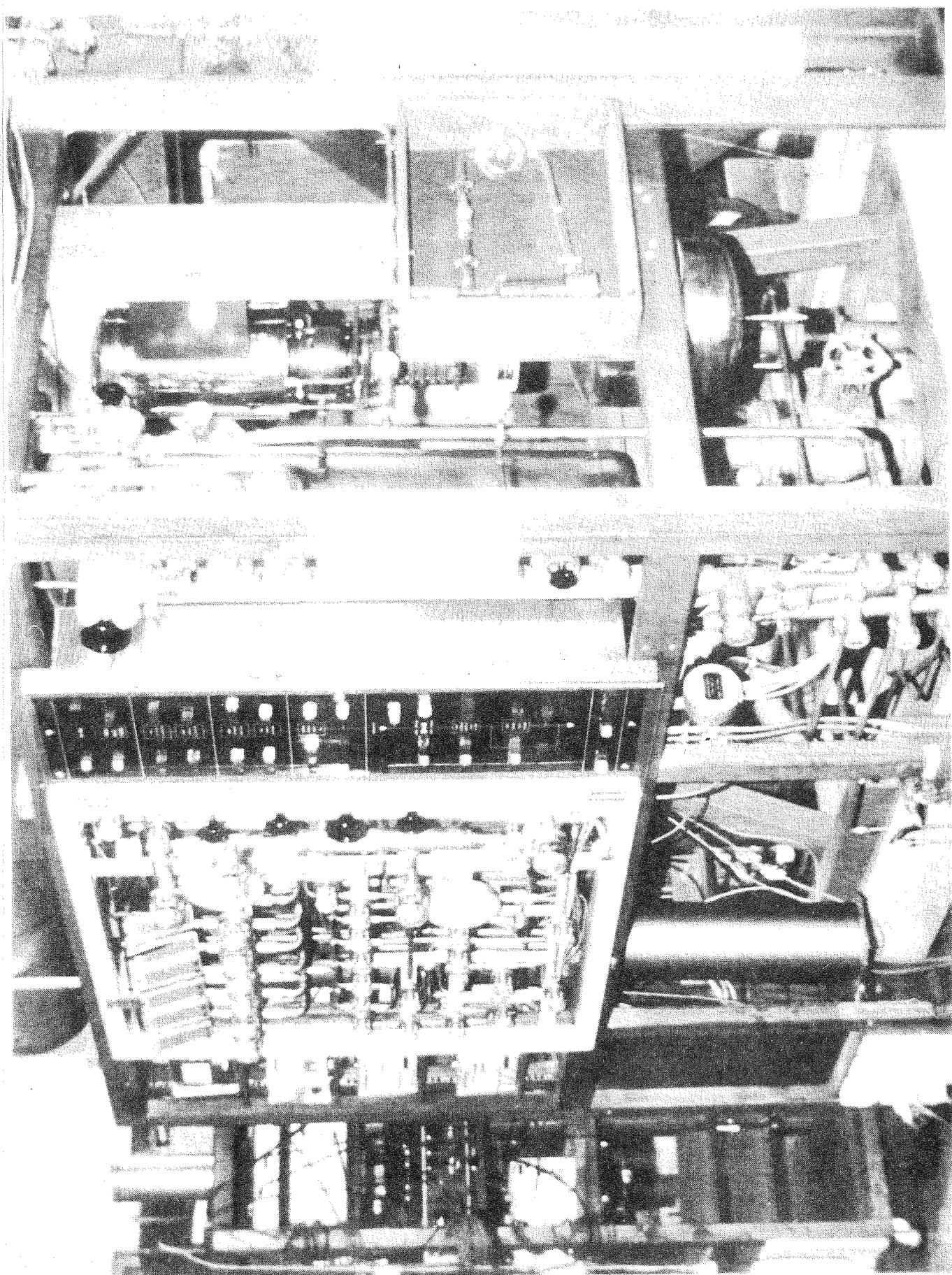


FIGURE 1 BIS

Vue générale du réfrigérateur côté tableau de vannes

pompes à diffusion, les circuits de gaz et tous les appareils de mesure se trouvent au-dessus du plancher dans la salle alors que les pompes mécaniques, toute l'infrastructure électrique et les branchements sur les circuits extérieurs d'hélium, d'eau, d'air comprimé et d'électricité, sont disposés dans la fosse.

B) Dispositifs antivibrations.

Afin de limiter au maximum l'effet des vibrations parasites sur la partie froide du réfrigérateur, le cryostat est fixé sur un dispositif antivibrations constitué de deux caisses en bois contenant du sable (partie amortissement) posées sur un bloc en béton (partie masse) lui-même posé sur un ensemble de ressorts (partie élasticité). Le tout pèse environ quatre tonnes et résonne à une fréquence de 2 Hertz. L'amortissement de l'ensemble est proche de la valeur critique et se fait par de la toile métallique enroulée dans les ressorts.

Toutes les connexions entre le cryostat et les différents circuits de pompage sont des liaisons souples pour éviter la transmission des vibrations. Toutes les pompes mécaniques, génératrices de vibrations importantes, sont découplées plusieurs fois par des liaisons souples. Ces liaisons sont simplement du caoutchouc à vide lorsqu'il s'agit d'un vide primaire ou des soufflets métalliques pour le vide secondaire ou pour tous les circuits où l' ^3He circule. Pour le pompage du mélange ^3He - ^4He , la liaison cryostat-booster (voir plus loin) qui est la plus grosse canalisation de l'appareil (diamètre 220 mm) la connexion se fait par un gros soufflet métallique compensé par un deuxième soufflet en opposition pour contrebalancer la force de rappel de la pression atmosphérique (figure 2).

C) Le cryostat.

Le cryostat a été conçu dans un souci de volume expérimental important et de faible consommation d'hélium pour ne pas perturber trop souvent les expériences avec les opérations de siphonnage. Il a un diamètre intérieur de 250 mm ce qui permet d'avoir une enceinte à vide (calorimètre) de 220 mm de diamètre utilisable. Cela permet aussi de loger une bobine supraconductrice de taille importante. La hauteur

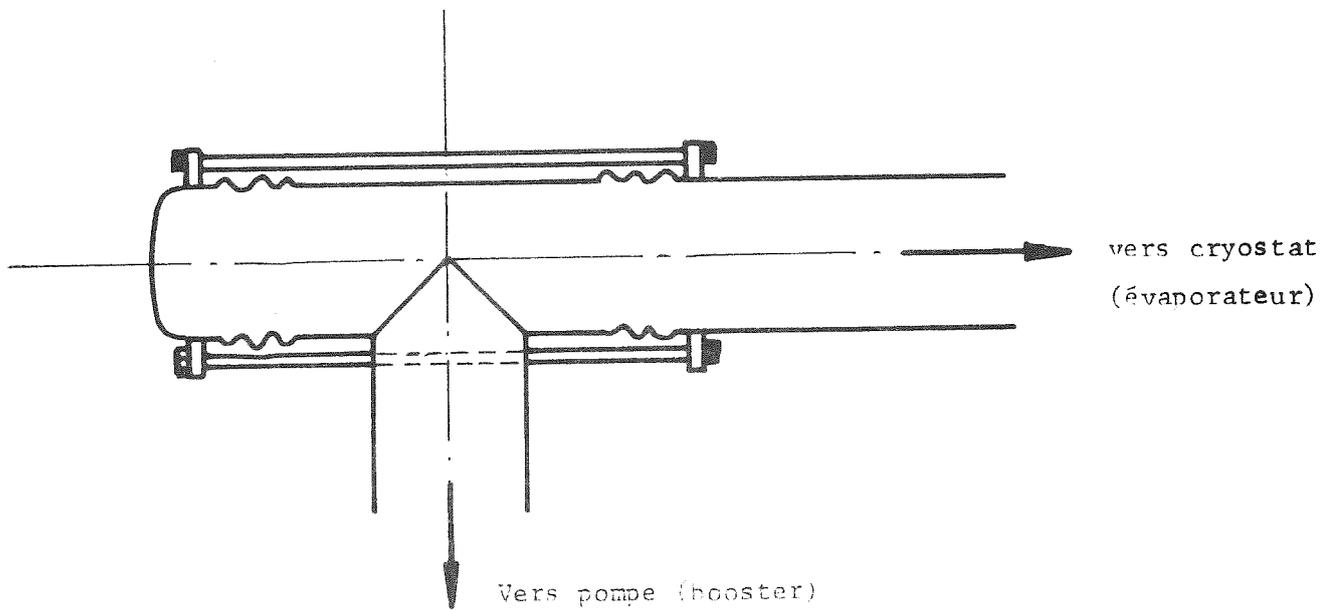


FIGURE 2

Schéma du système anti-vibration à soufflets compensés

totale du cryostat est de 2,70 m. Cette hauteur permet de donner à l'enceinte à vide une hauteur de 1 m, de disposer d'un volume d'hélium liquide de 30 l et d'avoir malgré tout une faible consommation grâce à la distance importante entre le point à 4 K et le point à 300 K (rapport $\frac{S}{L} = 7,8 \times 10^{-2}$ cm).

La figure 3 est une représentation schématique de ce cryostat. Au centre on trouve la grosse canalisation de pompage du mélange. Dans sa partie supérieure, cette canalisation occupe pratiquement tout le diamètre disponible de façon à présenter le minimum de perte de charge dans cette zone (voir calculs plus loin). Il ne reste qu'un espace circulaire pour le pompage des vapeurs de l'hélium du bain. Tous les autres tuyaux passent donc à ce niveau à l'intérieur du tuyau de pompage du mélange. Dans sa partie inférieure, ce tuyau est muni d'écrans à radiations et de bouchons de vidange permettant éventuellement d'évacuer l'huile qui se serait accumulée. La partie externe du cryostat se compose d'un ensemble de vases solidaires. Cet ensemble comprend un espace pour le vide d'isolement, un espace pour l'azote liquide et un espace externe rempli de matériau superisolant. La consommation en azote liquide est très faible (de l'ordre de 30 à 40 litres par semaine). L'ensemble de ces vases pèse environ 250 kg et est descendu dans la fosse pour le démontage de la partie interne à l'aide d'un treuil électrique.

Le remplissage en hélium liquide du cryostat (d'une capacité de 30 l) se fait avec des siphons fixes à raccords démontables (raccords "Johnston"). Un premier siphon va jusqu'au fond du vase et est utilisé pour le prérefroidissement par les vapeurs lors du premier siphonnage. Un deuxième siphon s'arrête vers le milieu du vase et est utilisé pour les remplissages ultérieurs lorsque le cryostat est déjà froid.

Le niveau d'hélium liquide est mesuré à l'aide d'une jauge à fils supraconducteurs fabriquée au laboratoire. La consommation en hélium du vase varie entre 9 l/jour lorsqu'il est plein à 6,5 l/jour lorsqu'il est presque vide. Cela permet de siphonner l'hélium avec une période de trois jours.

D) Circuits de gaz.

Les différents circuits qui servent à véhiculer les fluides gazeux constituent un ensemble de tuyauteries assez complexe. Nous

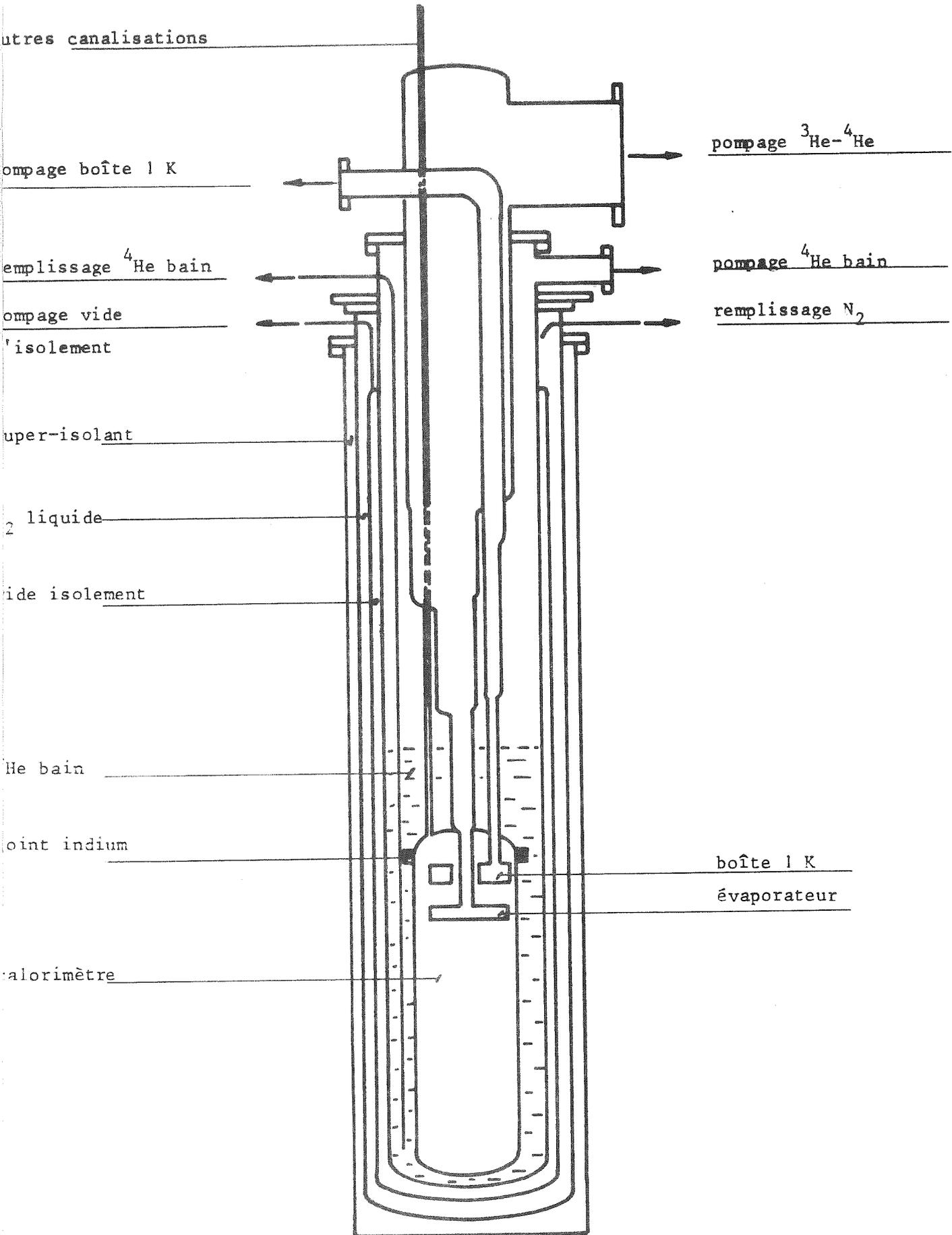


FIGURE 3

SCHEMA DU CRYOSTAT

avons néanmoins représenté sur la figure 5 une vue schématique des parties essentielles de ces circuits, mais dans un souci de clarté nous allons d'abord décrire le diagramme de fonctionnement représenté figure 4.

Le réfrigérateur est constitué essentiellement d'une enceinte à vide (appelée calorimètre) plongée dans un bain d' ^4He liquide et contenant :

- la boîte à mélange, les échangeurs de chaleur et l'évaporateur pour le circuit du mélange ^3He - ^4He .
- la boîte à un degré contenant de l' ^4He destinée à condenser le mélange du circuit précédent.

Les différents circuits de pompage sont classés selon leur fonction respective :

- a) Le circuit de pompage du mélange est fermé sur lui-même de façon à conserver toujours la même quantité de gaz. Lorsque le réfrigérateur ne fonctionne pas le mélange est stocké dans des réservoirs.
- b) Le circuit de pompage de la boîte à un degré est relié au gazomètre général où l'on récupère l' ^4He .
- c) Le bain d' ^4He en fonctionnement normal est sous une pression d'une atmosphère et est aussi relié au gazomètre. Mais lorsqu'on veut étalonner les thermomètres magnétiques au CMN on utilise un circuit qui permet de pomper sur le bain pour abaisser sa température jusqu'à 1,2 K.
- d) Le circuit de pompage du calorimètre permet de pomper le gaz d'échange (^4He ou ^3He) après le prérefroidissement de l'unité de dilution à 4 K.
- e) Le groupe de pompage auxiliaire peut être mis en communication avec n'importe quel autre circuit. Ses fonctions sont multiples mais on peut en distinguer essentiellement deux :
 - prévidage des différents circuits au début de l'expérience
 - entretien du vide sur l'analyseur de gaz.
- f) L'analyseur de gaz est un monopôle de marque Veeco SPI 10. Il a deux fonctions différentes selon le circuit auquel il est relié :
 - analyse du mélange à la sortie de l'évaporateur pour le contrôle de son fonctionnement.
 - détection des fuites sur le calorimètre.

Nous allons maintenant examiner en détail ces différents circuits en nous reportant au schéma de la figure 5.

- les opérations notées 0 sont des prévidages au début de l'expérience

- les opérations notées I ont lieu pendant le fonctionnement normal du réfrigérateur

- les autres opérations sont spécifiées directement

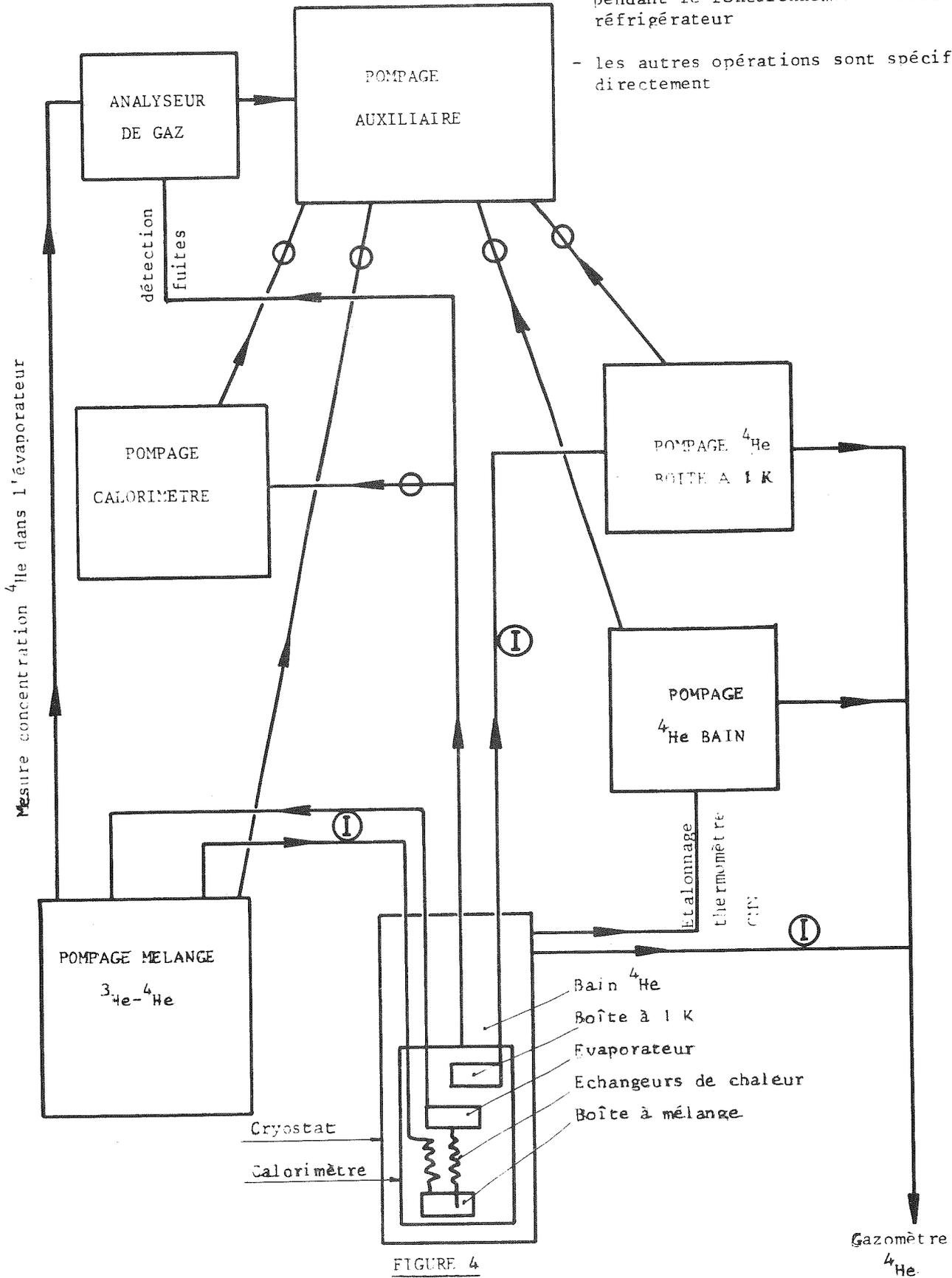


FIGURE 4

DIAGRAMME DE FONCTIONNEMENT DU REFRIGERATEUR

1) Circuit du mélange ^3He - ^4He :

Le groupe de pompage est constitué d'une pompe mécanique et d'un booster. La pompe primaire est une pompe Alcatel de type 2060 H. C'est une pompe hermétique à deux étages ayant une vitesse de pompage d'environ 50 m^3 par heure à 1 torr de pression. La pompe secondaire est un booster à vapeurs d'huile Edwards 9B3 ayant une vitesse de pompage nominale pour l'air de 850 litres par seconde. Il est fixé sur un bâti anti-vibratoire analogue à celui décrit précédemment pour le cryostat. Il est surmonté d'un baffle à chevrons refroidi à l'eau pour éviter la rétrodiffusion d'un éventuel brouillard d'huile, et d'une vanne papillon à commande électro-pneumatique pour la protection automatique de l'appareil.

Sur la figure 6 nous avons reporté les performances comparées de quatre groupes de pompage ayant des prix d'achat comparables. Dans tous les cas, la pompe primaire est la pompe Alcatel 2060 H. La pompe secondaire est soit un booster (Leybold 3000/7, Edwards 9B3 ou Bendix CVC KS200), soit une pompe de type roots (Alcatel MIV 350). Nous avons porté le débit en $\mu\text{mole/s}$ d' ^3He en fonction de la pression ou de la température de l'évaporateur (calculée d'après (3)) dans l'hypothèse où il n'y aurait pas de pertes de charge dans le circuit. Pour un réfrigérateur à dilution, si l'on veut que l'évaporateur (voir plus loin) sépare le mieux possible l' ^3He de l' ^4He , il faut pour un débit d' ^3He donné, que sa température soit la plus basse possible pour réduire au maximum la pression partielle de l' ^4He . Il faut donc travailler à faible pression et l'on voit bien sur la figure 6 que le booster Leybold répond le mieux au problème posé. Par contre une pompe de type roots qui est d'une utilisation plus commode, ne permet d'avoir de forts débits qu'à température d'évaporateur élevée. Nous avons utilisé un booster Edwards pour des raisons d'économie (nous disposions déjà de cette pompe au laboratoire). Dans le paragraphe suivant nous verrons comment les performances du groupe de pompage sont affectées par les pertes de charge dans les tuyaux de liaison entre la pompe et l'évaporateur.

Pour éviter à l'huile de la pompe primaire de remonter dans le booster par rétrodiffusion un piège à alumine est disposé entre les deux pompes. Un filtre à disques de papier est placé au refoulement de la pompe primaire pour empêcher l'huile d'être entraînée par l' ^3He .

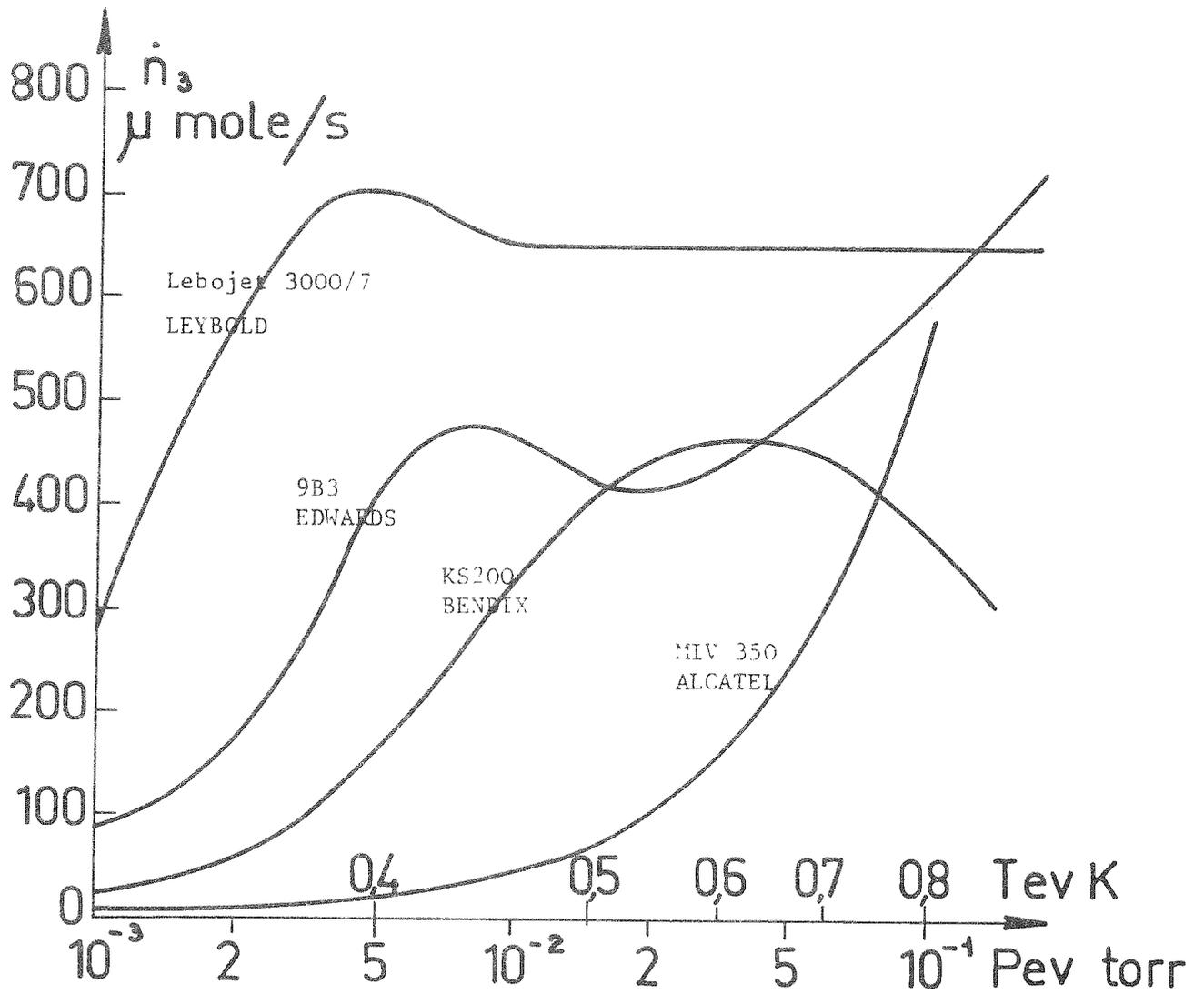


FIGURE 6

PERFORMANCES DE DIFFERENTES POMPES COMMERCIALES

Avant d'être réinjecté dans le cryostat l' ^3He passe dans un ensemble de deux pièges à charbon actif plongés dans l'azote liquide. Ces pièges sont montés en parallèle de façon à ce que l'un d'eux puisse être régénéré pendant que l'autre fonctionne en purificateur. Enfin, un dernier piège en poudre de cuivre frittée situé dans le bain d'hélium liquide est destiné à piéger l'hydrogène qui provient du cracking partiel de l'huile des pompes. Le débit de l' ^3He est mesuré par un débitmètre de masse à pont thermique construit au laboratoire.

2) Le circuit de pompage de la boîte à 1 K :

L' ^4He de la boîte à un degré est pompé avec une pompe mécanique du type Alcatel 1200. C'est une pompe à un étage ayant une vitesse de pompage de $200 \text{ m}^3/\text{heure}$. Elle est reliée à son refoulement au gazomètre de récupération d' ^4He par l'intermédiaire d'un piège à alumine.

3) Le circuit de l' ^4He provenant du bain :

Lors du fonctionnement normal du réfrigérateur le bain d' ^4He est maintenu à la pression atmosphérique et sa température est de 4,2 K. Les vapeurs sont donc évacuées vers le gazomètre de récupération. Diverses connexions permettent d'admettre à travers un piège à azote liquide de l' ^4He dans d'autres circuits.

Cependant lorsqu'on veut étalonner les thermomètres à CMN on arrête la circulation du mélange et on met du gaz d'échange dans le calorimètre. En pompant sur le bain on abaisse sa température que l'on mesure entre 1,2 et 2 K à l'aide d'un manomètre à huile. Le pompage se fait avec la pompe de la boîte à un degré (Alcatel 1200) en commutant les circuits.

4) Le circuit de vide du calorimètre :

Le pompage du gaz d'échange du calorimètre se fait par un tuyau de pompage principal. Un tuyau secondaire en attente est monté en parallèle. Ils sont reliés à un groupe de pompage constitué d'une pompe à diffusion de 400 l/s et d'une pompe mécanique de $12 \text{ m}^3/\text{heure}$. Ce circuit est relié au circuit de vide auxiliaire (voir paragraphe suivant) pour le prévidage, pour l'admission de gaz d'échange dans le calorimètre et pour le contrôle du vide avec un détecteur de fuite.

5) Le circuit de vide auxiliaire :

C'est un groupe de pompage indépendant avec une pompe à diffusion et une pompe mécanique analogues à celles du calorimètre. Il peut être connecté sur tous les circuits du réfrigérateur pour le prévidage, pour la circulation ou pour l'analyse des gaz. Il est équipé d'un analyseur de gaz (Veeco SPI10) qui peut servir de détecteur de fuite.

E) Calcul des canalisations de pompage.

Dans ce paragraphe nous allons donner un aperçu rapide de la façon de procéder pour le calcul des dimensions des tuyaux de pompage.

1) Position du problème :

Quel que soit le circuit que l'on considère, le problème général est le même. On dispose d'un groupe de pompage donné, fonctionnant à la température ambiante et on veut le relier à une enceinte placée à basse température et contenant un fluide cryogénique. En général, les longueurs des tuyaux de liaison sont déterminées par des considérations géométriques ou de conduction thermique. Il s'agit alors de calculer les diamètres des différents tubes de façon à utiliser au mieux les performances du groupe de pompage tout en restant dans des limites raisonnables. On veut aussi une fois que le système est bien défini pouvoir calculer le débit de gaz pompé en fonction de la température de l'enceinte donc en fonction de la pression de vapeur régnant dans celle-ci.

Dans le cas du pompage du mélange $^3\text{He}-^4\text{He}$, pour des débits de quelques centaines de micro-moles par seconde d' ^3He , et pour des pressions évaporateur de l'ordre de 10^{-2} à 10^{-1} torr qui permettent d'avoir un rapport $^3\text{He}/^4\text{He}$ élevé, on s'aperçoit que pour les groupes de pompage que nous envisageons ici on ne pourra pas tolérer une perte de charge importante dans les tuyaux de la liaison. Il faudra donc des diamètres de tuyau relativement importants (voir calcul de conductance plus loin).

2) Principe de calcul :

Nous allons exposer les principes généraux et les appliquer

au cas du circuit de pompage du mélange $^3\text{He}-^4\text{He}$. Considérons la figure 7 qui donne le schéma de ce circuit. A l'intérieur du cryostat la température du gaz pompé varie depuis celle de l'évaporateur jusqu'à la température ambiante. On divise donc cette partie du circuit en portions isothermes et on calcule le diamètre optimum dans chaque portion. La difficulté est de prévoir la température qu'aura le gaz dans ces portions. La seule grandeur qui se conserve le long de tout le circuit est le débit molaire \dot{n} (mole/s). Si l'on considère une portion i de ce circuit où le gaz circule à la température T_i à la pression moyenne p_i et dont la conductance à cette pression est C_i , on peut écrire la perte de charge sous la forme :

$$\Delta p_i = \dot{n} R \frac{T_i}{C_i} \quad \text{où } R \text{ est la constante molaire des gaz parfaits}$$

$$R = 8,31 \times 10^7 \text{ erg.K}^{-1} \text{ mole}^{-1}$$

Si l'on somme cette expression sur le circuit entier on obtient :

$$p_e - p_o = \sum_i \Delta p_i = \dot{n} R \sum_i \frac{T_i}{C_i}$$

p_e est la pression dans l'évaporateur et p_o la pression dans la pompe.

On connaît d'autre part la vitesse de pompage S de la pompe en fonction de la pression p_o . Cette pompe fonctionnant à la température T_o (température ambiante en général) on peut écrire :

$$\dot{n} = \frac{1}{R} S \frac{p_o}{T_o}$$

Si l'on paramètre le système en fonction de p_o par exemple, on pourra calculer le débit et ensuite la pression dans l'évaporateur. Pour cela il faut d'abord calculer les conductances des différentes portions du circuit.

La formule de Knudsen que l'on trouve dans tous les manuels de technique du vide donne la conductance d'une canalisation circulaire de diamètre D et de longueur L :

$$C = \left(\frac{\pi}{128\eta} \frac{D^4 p}{L} \right) + \left(\frac{1}{6} \sqrt{\frac{2\pi kT}{m}} \frac{D^3}{L} \right) \left[\frac{1 + \sqrt{\frac{m}{kT}} \frac{Dp}{\eta}}{1 + 1,24 \sqrt{\frac{m}{kT}} \frac{Dp}{\eta}} \right]$$

k = constante de Boltzmann

η = viscosité du gaz (pour l' ^3He $\eta = 4,217 T + 0,647$ en cgs).

m = masse molaire

T = température du gaz

p = pression moyenne dans la conduite.

Le régime d'écoulement est caractérisé par le rapport du diamètre de la canalisation au libre parcours moyen des molécules du gaz. Pour l'hélium (^3He et ^4He) on définit la quantité :

$$A = \frac{D \cdot P}{T^{1,147}}$$

D'après la valeur que prend A , l'écoulement se fait selon trois régimes.

$$\text{en CGS } \begin{cases} A > 10 & \text{régime visqueux} \\ 10 > A > 0,1 & \text{régime intermédiaire} \\ A < 0,1 & \text{régime moléculaire} \end{cases}$$

Pour tous les régimes d'écoulement on peut écrire la conductance d'un tuyau parcouru par de l' ^3He sous la forme :

$$C = f(A) \frac{\sqrt{T} D^3}{L} 10^3 \text{ en cgs avec } f(A) = 5,8 A + 2,2 \left(\frac{1 + 45 A}{1 + 56 A} \right)$$

La conductance dépend donc de la température mais aussi de la pression du gaz. Le calcul exact d'un circuit comportant plusieurs sections à des températures et des pressions différentes devient alors très long. On préfère en pratique faire le calcul par approximations successives en faisant des hypothèses sur la pression moyenne régnant dans le circuit. Dans notre cas où les pertes de charge ne sont pas trop importantes, on admettra que $\Delta p_i < p_o$ et p_e . On prendra par exemple une pression moyenne pour le calcul de la conductance qui sera égale à p_o .

3) Exemple de calcul :

Reportons-nous à la figure 7. Il faut bien se rendre compte que les deux quantités qu'il faut comparer sont :

$$\frac{T_o}{S} \text{ qui est caractéristique de la pompe,}$$

et $\sum_i \frac{T_i}{C_i}$ qui est caractéristique de la perte de charge dans le circuit.

Si l'on veut que les pertes de charge n'affectent pas trop

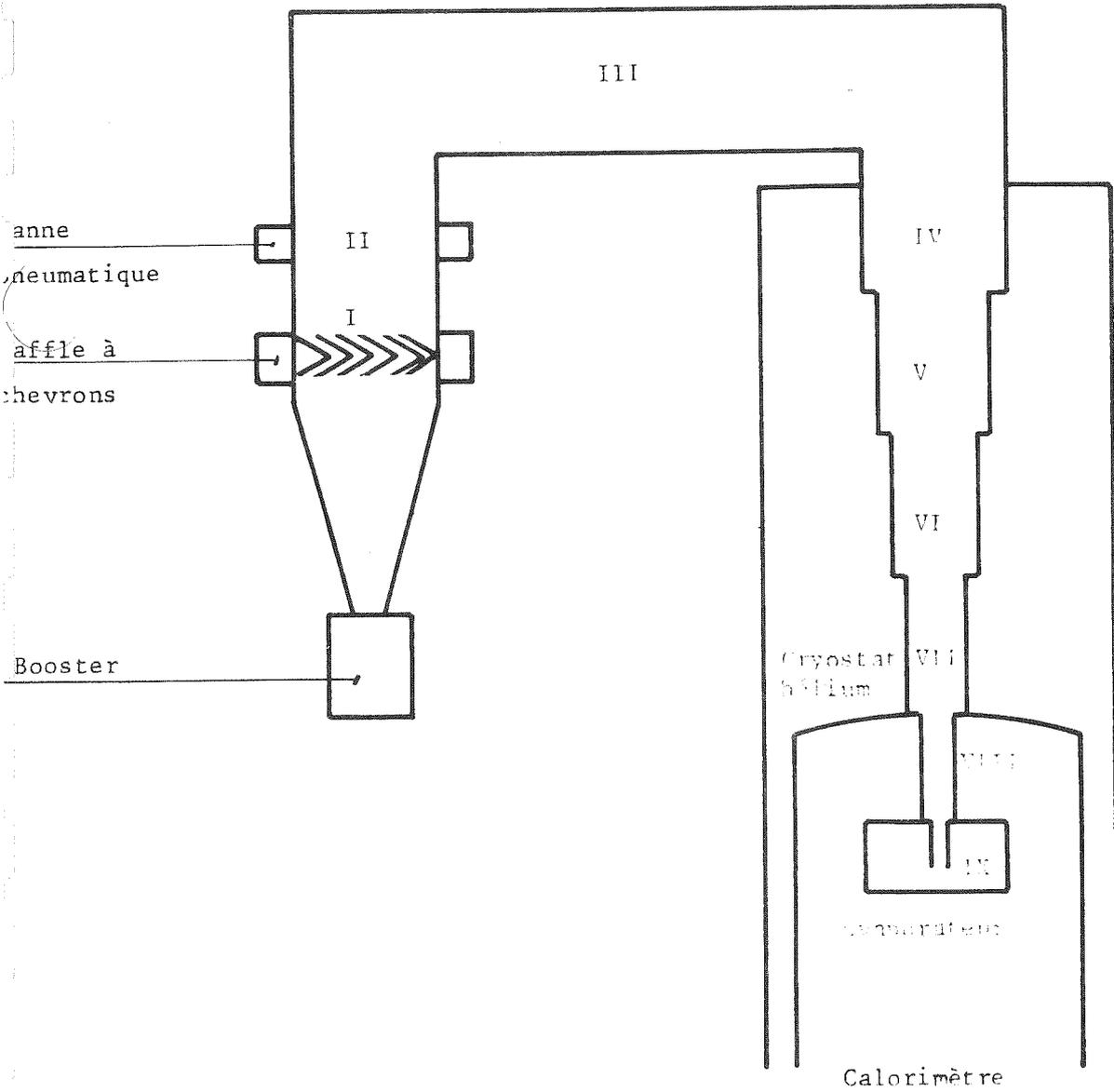


FIGURE 7

SCHEMA DES CANALISATIONS DE POUPAGE DE MELANGE

les performances de la pompe il faut que l'on ait :

$$\sum_i \frac{T_i}{C_i} < \frac{T_o}{S}$$

En pratique, on se fixe une valeur de $\sum_i \frac{T_i}{C_i}$ et on détermine les différentes portions du circuit de façon à rester à $\frac{T_i}{C_i}$ constant. Dans le cas de notre circuit le baffle à eau et la vanne pneumatique représentés par les n° I et II sont déjà déterminés. Ils ont une conductance pour l'air qui est donnée par le constructeur et qui est respectivement de 1700 et 4000 1/s en région moléculaire. Pour l'³He on multiplie la conductance par un facteur 1,7⁽⁵⁾. Pour les autres parties du circuit on s'aperçoit vite que ce qui limite le pompage est la partie qui se trouve à la température ambiante. On détermine donc cette partie dans des proportions raisonnables et on calcule les autres parties de façon à ce que leur conductance soit du même ordre de grandeur. Nous donnons ici le calcul de notre circuit pour de l'³He à une pression moyenne $p = 10^{-2}$ torr, c'est-à-dire 13,1 barye.

DENOMINATION DE LA PORTION	N°	DIAMETRE cm	LONGUEUR cm	TEMPERATURE K	A cgs	f(A) cgs	$\frac{C}{T} \times 10^{-3}$ cgs
Baffle	I	23	-	300	-	-	10
Vanne	II	23	-	300	-	-	23
Tube de liaison	III	22	200	300	0,42	4,2	12,8
"	IV	22	60	300	0,42	4,2	42,8
"	V	12	35	77	1,07	8,0	44,9
"	VI	9	40	30	2,37	15,5	51
"	VII	3,5	20	4	9,3	55	59
"	VIII	1,5	10	1	19,5	114	38
Diaphragme évaporateur	IX	0,6	1	0,5	17,2	101	31

On obtient donc :

$$\sum_i \frac{T_i}{C_i} = 3,6 \times 10^{-4} \quad \text{avec} \quad \frac{T_o}{S} = \frac{300}{500 \times 10^3 \times 1,7} = 3,5 \times 10^{-4}$$

Pour cette pression le débit va être :

$$\dot{n} = \frac{1}{R} S \frac{P_o}{T_o} = 4,43 \times 10^{-4} = \underline{443 \mu\text{m/s}}$$

La pression dans l'évaporateur sera alors :

$$P_e = P_o + \dot{n} R \sum_i \frac{T_i}{C_i} = 13 + 13,1 = 26 \text{ barye} = \underline{2 \times 10^{-2} \text{ torr}}$$

Si l'on fait le même calcul pour une pression de 10^{-3} torr, on obtient

$$\sum_i \frac{T_i}{C_i} = 1,18 \times 10^{-3} \text{ et } \frac{T_o}{S} = 2,07 \times 10^{-4}$$

Le débit sera donc $\dot{n} = \underline{75 \mu\text{mole/s}}$ et la pression évaporateur

$$P_e = 1,3 + 7,3 = 8,6 \text{ barye} = \underline{6 \times 10^{-3} \text{ torr}} .$$

Pour résumer, on voit que dans notre appareil et pour la gamme de débit qui nous intéresse :

- les lignes de pompage qui se trouvent à la température ambiante fonctionnent en régime intermédiaire alors que celles qui sont à basse température fonctionnent en régime visqueux.
- la perte de charge due au circuit de pompage est plus élevée que la valeur de la pression à la pompe. Elle est en proportion d'autant plus importante que la pression est basse et donc le débit faible.
- aux forts débits la perte de charge la plus importante a lieu dans les parties du circuit qui sont à la température ambiante alors qu'aux faibles débits ce sont les tuyaux au niveau de l'évaporateur qui limitent le plus la vitesse de pompage.

F) Protection de l'appareil - Sécurité de fonctionnement.

Notre réfrigérateur à dilution étant destiné à fonctionner parfois pendant des temps très longs, nous avons conçu un système global de sécurités susceptible de parer à toutes les éventualités et surtout d'éviter une perte accidentelle de la quantité importante d' ^3He qui se trouve dans l'appareil. Les principaux types de pannes que l'on peut envisager sont les suivants :

- coupure de courant électrique
- arrêt de circulation d'eau (refroidissement de pompes)

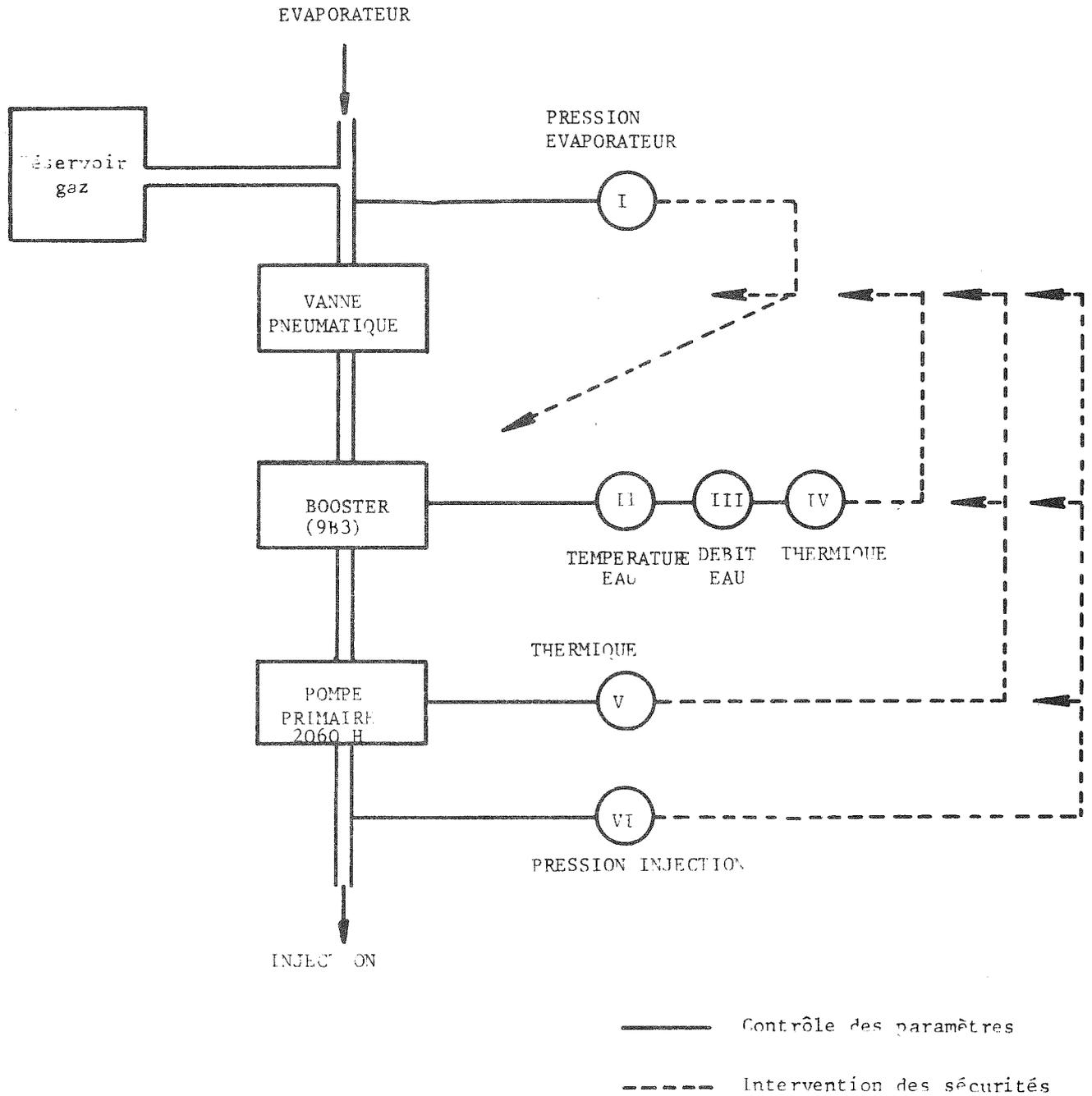


FIGURE 8

DIAGRAMME DE FONCTIONNEMENT DES SECURITES DU CIRCUIT $^3\text{He}-^4\text{He}$

- baisse de pression de l'air comprimé (commande de la vanne pneumatique)
- fuite dans le calorimètre ou sur un circuit à température ambiante
- bouchage du circuit de réfrigération d'³He.

Le système de sécurité surveille en permanence l'ensemble des organes actifs de la machine pendant son fonctionnement. Cependant on peut classer les différents contrôles en trois groupes :

1) Contrôles généraux pour le fonctionnement de toutes les pompes :

Toutes les pompes primaires et secondaires possèdent une sécurité thermique qui contrôle l'intensité du courant d'alimentation. Toutes les pompes secondaires comportent en outre un contrôle de la température de l'eau de refroidissement. Toutes ces sécurités sont indépendantes et en cas de panne n'arrêtent que l'organe sur lequel est détecté le défaut.

2) Contrôle du fonctionnement du circuit d'³He-⁴He :

En plus des sécurités citées en paragraphe précédent, les organes qui concernent le circuit du mélange comportent un ensemble de sécurités particulières et interdépendantes. Le diagramme de fonctionnement de ce système est représenté sur la figure 8. Le circuit en amont de la vanne pneumatique est toujours relié aux réservoirs de stockage de gaz de façon à récupérer le mélange si cette vanne se ferme. Les différents contrôles sont les suivants (de haut en bas sur le diagramme) :

- pression évaporateur. C'est une jauge de Pirani qui déclenche un signal lorsque la pression dépasse 10^{-1} torr.
- température et débit d'eau de refroidissement ainsi qu'intensité de courant d'alimentation pour le booster.
- intensité du courant pour la pompe primaire.
- pression d'injection du mélange. C'est une jauge de pression qui déclenche un signal lorsque la pression dépasse une atmosphère.

Ces différentes sécurités agissent en cascade dans le sens amont. Cela signifie que lorsqu'une sécurité déclenche sur un organe donné, elle arrête aussi tous les organes en amont. Par exemple, lorsque la pompe primaire s'arrête, le booster s'arrête aussi et la vanne pneumatique se ferme. Par contre, si le booster s'arrête, la vanne pneumatique se ferme mais la pompe primaire continue à fonctionner. Il y a cependant une exception à cette règle : lorsque la vanne pneumatique

se ferme toute seule le booster s'arrête aussi ; ceci pour le cas où la vanne se serait fermée parce que la jauge de pression évaporateur se serait déclenchée. En effet, ce déclenchement peut être dû à une fuite sur le booster lui-même et il faut donc prévoir cette éventualité et l'arrêter lui aussi. Pour illustrer le fonctionnement de ce système, nous allons prendre deux exemples :

a) Fuite d'hélium dans le calorimètre :

L'ensemble du circuit dans le calorimètre se réchauffe et la pression évaporateur augmente. La jauge I se déclenche, ferme la vanne pneumatique et arrête le booster. Le mélange est alors récupéré dans les réservoirs de gaz.

b) Fuite d'air dans une partie quelconque du circuit à l'extérieur du cryostat :

Lorsque le piège à charbon est saturé et n'arrive plus à piéger l'air, l'impédance de condensation du mélange se bouche. La pression d'injection augmente et la jauge VI se déclenche. Tout le système de pompage s'arrête et le mélange est récupéré comme précédemment.

Signalons aussi que l'air comprimé est stocké dans un réservoir muni d'un clapet anti-retour pour prévenir une baisse de pression qui empêcherait la vanne pneumatique de fonctionner.

3) Contrôle du courant d'alimentation générale de l'appareil :

Afin de prévenir les pannes de courant du réseau de courte durée, nous avons conçu un système permettant la remise en marche automatique de tout l'appareil. Trois cas peuvent se présenter :

- si la panne de courant dure plus de 30 secondes, le système est arrêté définitivement,
- si la panne de courant dure moins de 30 secondes, toutes les fonctions sont remises en marche. Cependant certains des paramètres qui sont contrôlés par les sécurités ont pu atteindre pendant le bref arrêt des valeurs anormales (par exemple, la pression de l'évaporateur a pu dépasser 10^{-1} torr). Pour cela les sécurités sont mises hors circuit pendant 30 secondes supplémentaires. Si au bout de ce temps, tout est redevenu normal, le réfrigérateur recommencera à fonctionner dans les mêmes conditions qu'avant la panne et seule une lampe s'allumera pour témoigner de l'incident,

- si au bout de ces 30 secondes supplémentaires, un seul des paramètres n'a pas atteint sa valeur normale, le système est arrêté définitivement.

II - PARTIE BASSE TEMPERATURE DU REFRIGERATEUR

Dans ce qui suit nous allons décrire uniquement les points particuliers qui caractérisent la partie du réfrigérateur située à l'intérieur de l'enceinte de vide (abusivement appelée par la suite calorimètre). Le circuit général est tout à fait classique. Il comporte une boîte contenant de l' ^4He pompé à 1,2 K sur laquelle se condense l' ^3He , un ensemble d'échangeurs de chaleur, une boîte à mélange et un évaporateur. Un soin particulier a été apporté lors de la conception à la possibilité de séparer facilement les différentes parties du circuit, par exemple pour des tests.

A) La boîte à un degré.

Elle est d'un volume assez important (700 cm^3) pour pouvoir fournir pendant suffisamment longtemps (lors de la condensation du mélange) une puissance frigorifique importante. Au début de l'expérience on la remplit à partir du bain à 4 K à l'aide d'une microvanne (figure 5) actionnée de l'extérieur du cryostat. Pendant le fonctionnement normal, elle est alimentée de façon permanente par un capillaire qui assure la détente de l' ^4He liquide depuis le bain. Ce système très commode s'est maintenant généralisé sur presque tous les réfrigérateurs à dilution. Le calcul des dimensions de ce capillaire n'est pas possible car on ignore le profil de température. En général, on préfère les déterminer empiriquement. Dans notre cas, c'est un tuyau de 0,2 mm de diamètre intérieur et de 40 cm de long ce qui donne une valeur théorique de l'impédance de 10^{10} cm^{-3} . Elle permet d'alimenter correctement la boîte à un degré jusqu'à ce que le débit d' ^3He à la condensation atteigne $800 \mu\text{mole/s}$.

B) L'impédance variable.

La condensation du mélange s'effectue dans une petite boîte

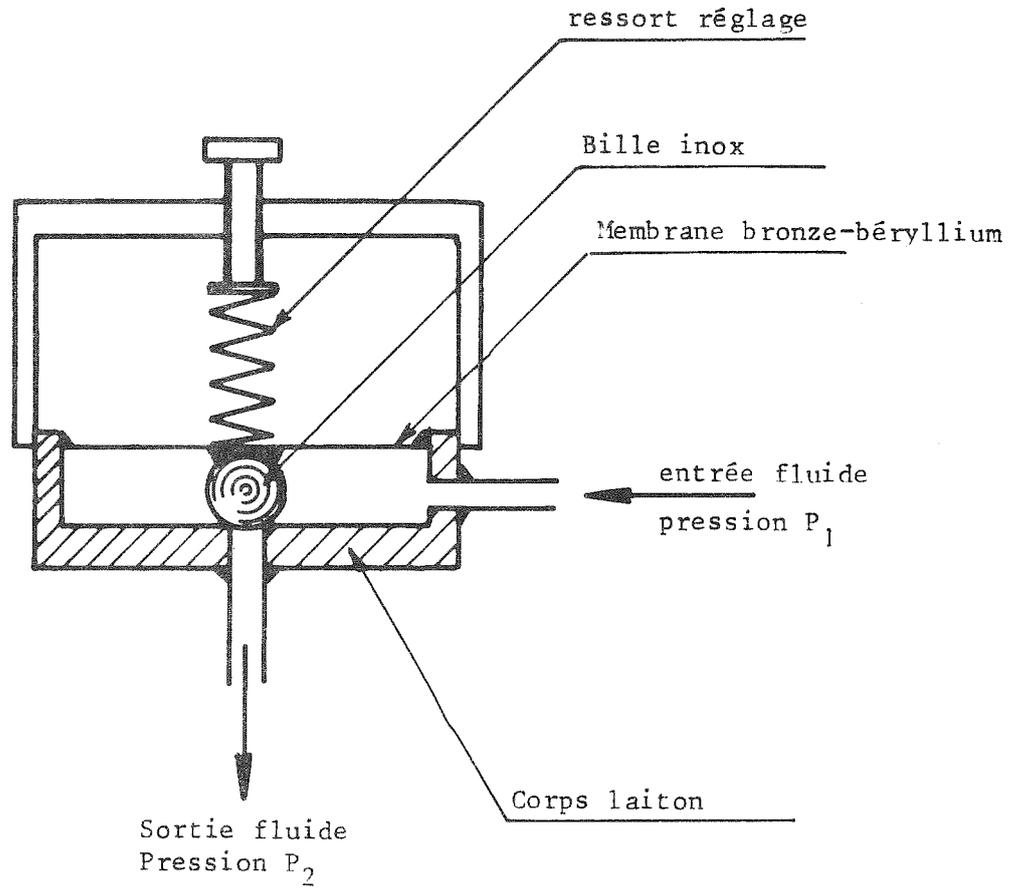


FIGURE 9

SCHEMA DE L'IMPEDANCE VARIABLE

remplie de poudre de cuivre frittée, soudée sur la boîte à 1 K. Pour de l' ^3He pur la pression de condensation à 1,2 K est au minimum de 20 torr . Or la pression dans le circuit de dilution est essentiellement déterminée par celle de l'évaporateur (10^{-2} à 10^{-3} torr), les effets de pression hydrostatique et de perte de charge par viscosité restant très faibles dans les autres parties du circuit. Il faut donc créer une perte de charge d'au moins 20 torr après la boîte de condensation. Habituellement on utilise pour cela une impédance constituée par un capillaire de dimensions appropriées. Parfois certains auteurs utilisent deux capillaires en série pour éviter que le liquide ne se vaporise à nouveau après la détente. Dans notre laboratoire, nous avons toujours employé un seul capillaire sans jamais constater de troubles de fonctionnement. Cependant, la valeur de cette impédance est fixe et cela présente certains inconvénients : la pression de condensation au refoulement de la pompe primaire est proportionnelle au débit. Cela signifie que la quantité d' ^3He enfermée dans cette portion du circuit (essentiellement dans le volume mort de la pompe) varie avec le débit. Comme la quantité totale d' ^3He dans la machine est constante cela implique que le niveau de séparation de phase dans la boîte à mélange se déplace lorsqu'on change le débit. Il risque même de sortir de la boîte à mélange. Pour éviter cela, nous avons construit une impédance dont la valeur varie avec la pression⁽⁶⁾⁽⁷⁾ (figure 9). Le liquide qui entre à la pression P_1 déforme élastiquement une membrane en bronze-béryllium et soulève la bille en acier qui au repos s'ajuste sur l'orifice de sortie. La valeur de l'impédance est déterminée par la distance d entre la bille et l'orifice. Si l'on assimile l'ouverture vue par le liquide à un diaphragme de section rectangulaire, son impédance en régime visqueux varie avec le carré de la plus petite longueur, donc $Z = \alpha d^2$. D'autre part, on admettra que pour de faibles déplacements, la déformation de la plaque est linéaire avec la pression : $d = \beta P_1$. On a donc $Z = \alpha \beta^2 P_1^2$, α et β étant des constantes. Le débit devrait donc être proportionnel au carré de la pression d'injection. Les points expérimentaux de la courbe $\sqrt{\dot{n}}$ en fonction de P_1 qui sont reportés sur la figure 10 semblent bien confirmer cette hypothèse.

Une telle impédance variable permet par exemple de passer d'un débit de 200 à 600 $\mu\text{mole/s}$ avec une variation de 100 torr seulement de la pression de condensation. Avec le circuit de pompage qui équipe

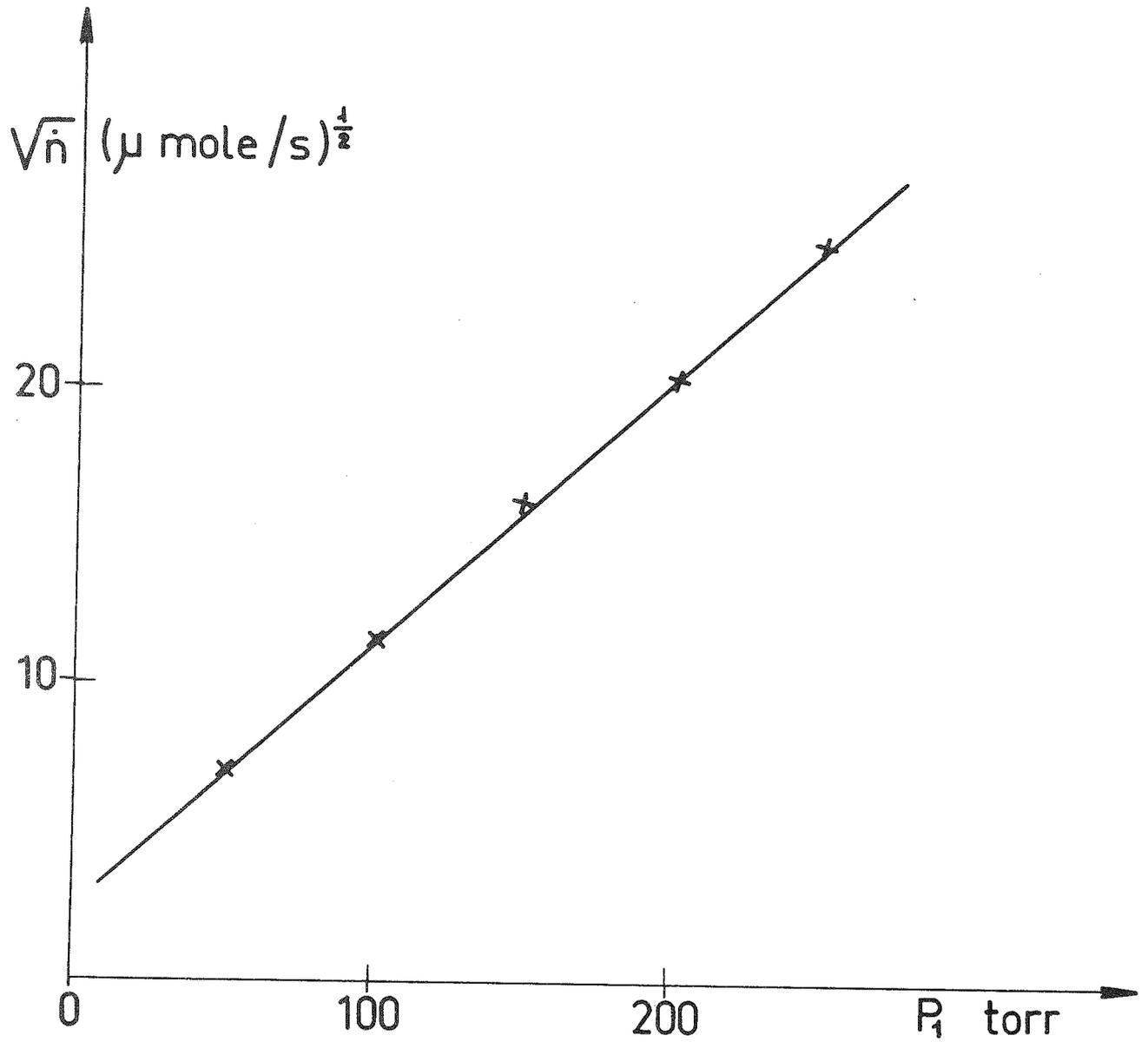


FIGURE 10
CARACTERISTIQUES DE L'IMPEDANCE VARIABLE

notre réfrigérateur, cela signifie une variation de $0,6 \text{ cm}^3$ du volume de la phase concentrée dans la boîte à mélange alors qu'avec une impédance de valeur fixe compatible avec cet appareil on aurait une variation de $2,4 \text{ cm}^3$ dans les mêmes conditions. Un autre avantage de ce type d'impédance variable se retrouve pendant la condensation initiale du mélange au début de l'expérience. En effet, sous une pression d'une atmosphère, l'extrapolation de la courbe de la figure 10 donne un débit de l'ordre de $4600 \text{ } \mu\text{mole/s}$. En pratique, on obtient effectivement des débits de cette valeur si l'on condense sous une atmosphère de pression. Cela permet de condenser les 400 l de mélange nécessaires à l'appareil (voir plus loin) en 1 heure au lieu de 8 heures avec une impédance à valeur fixe. Cependant, lorsque l'on condense avec des débits aussi importants, la température de la boîte à un degré remonte à environ 2 K , et elle se vide assez rapidement. Il faut donc la remplir plusieurs fois à l'aide de la microvanne pendant la durée de la condensation.

C) L'évaporateur.

Le rôle de l'évaporateur est d'extraire l' ^3He de la phase diluée alors que sa concentration n'est que de l'ordre de 1 % (voir réf. 3). Lorsque nous avons construit notre réfrigérateur, il était généralement admis que pour obtenir des très basses températures, il est important que l' ^3He injecté dans la phase concentrée soit très pur. Il fallait donc faire un évaporateur performant. WHEATLEY⁽³⁾ obtenait une concentration minimum en ^4He de 1,3 % pour un débit global de $20 \text{ } \mu\text{mole/s}$ et plus tard KIRK et ADAMS⁽⁸⁾ avec un évaporateur très sophistiqué arrivaient à 0,4 % pour un débit de $40 \text{ } \mu\text{mole/s}$. Cependant ces performances devenaient toujours mauvaises aux plus forts débits. Dans notre laboratoire, FROSSATI a entrepris des recherches visant à obtenir une faible concentration d' ^4He à forts débits. Il est apparu à la suite de ces études que l'évaporateur devait aussi rester le plus froid possible pour diminuer l'apport de chaleur dans la phase diluée des premiers échangeurs (voir plus loin "échangeur coaxial tubulaire"). Actuellement il n'est pas certain que la concentration en ^4He soit un facteur si important. Cependant le problème de la minimisation de l'apport de chaleur reste primordial.

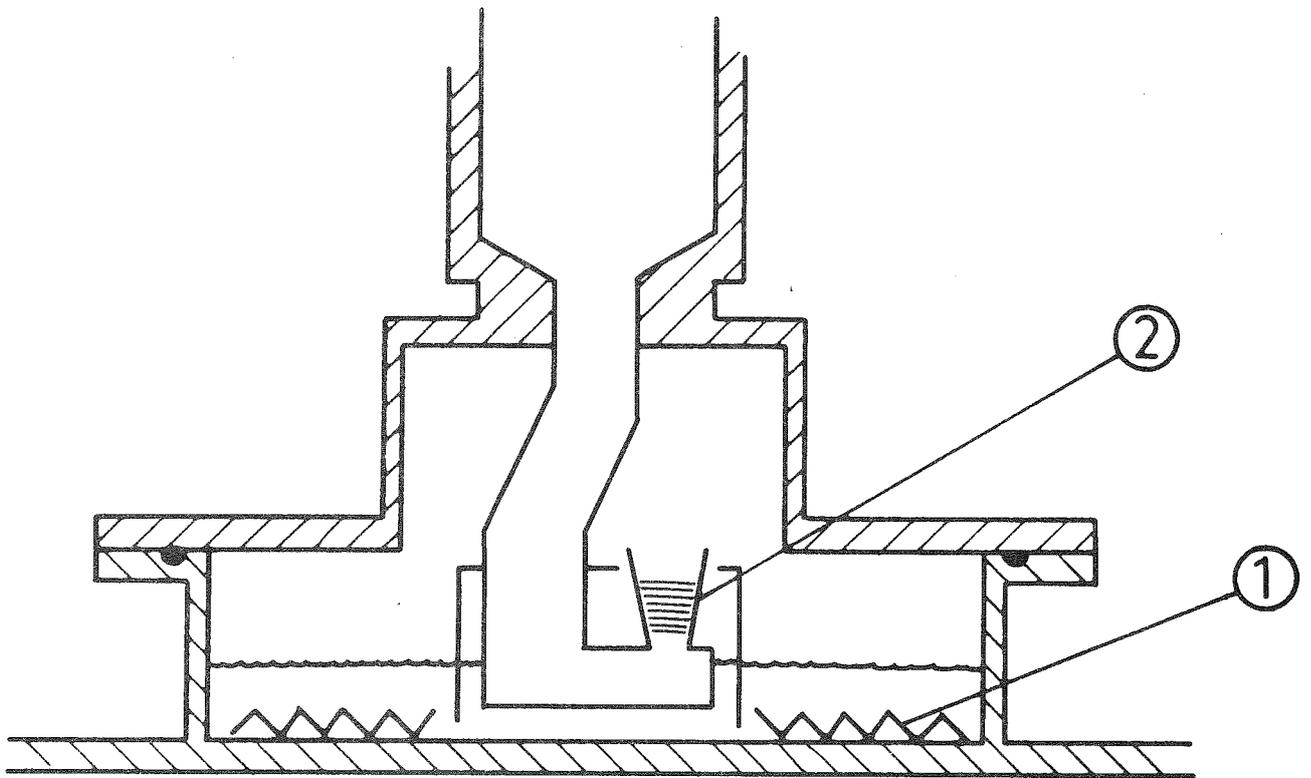


FIGURE 11

SCHEMA DE L'EVAPORATEUR

- (1) Résistance de chauffage principale
- (2) Brûleur de film

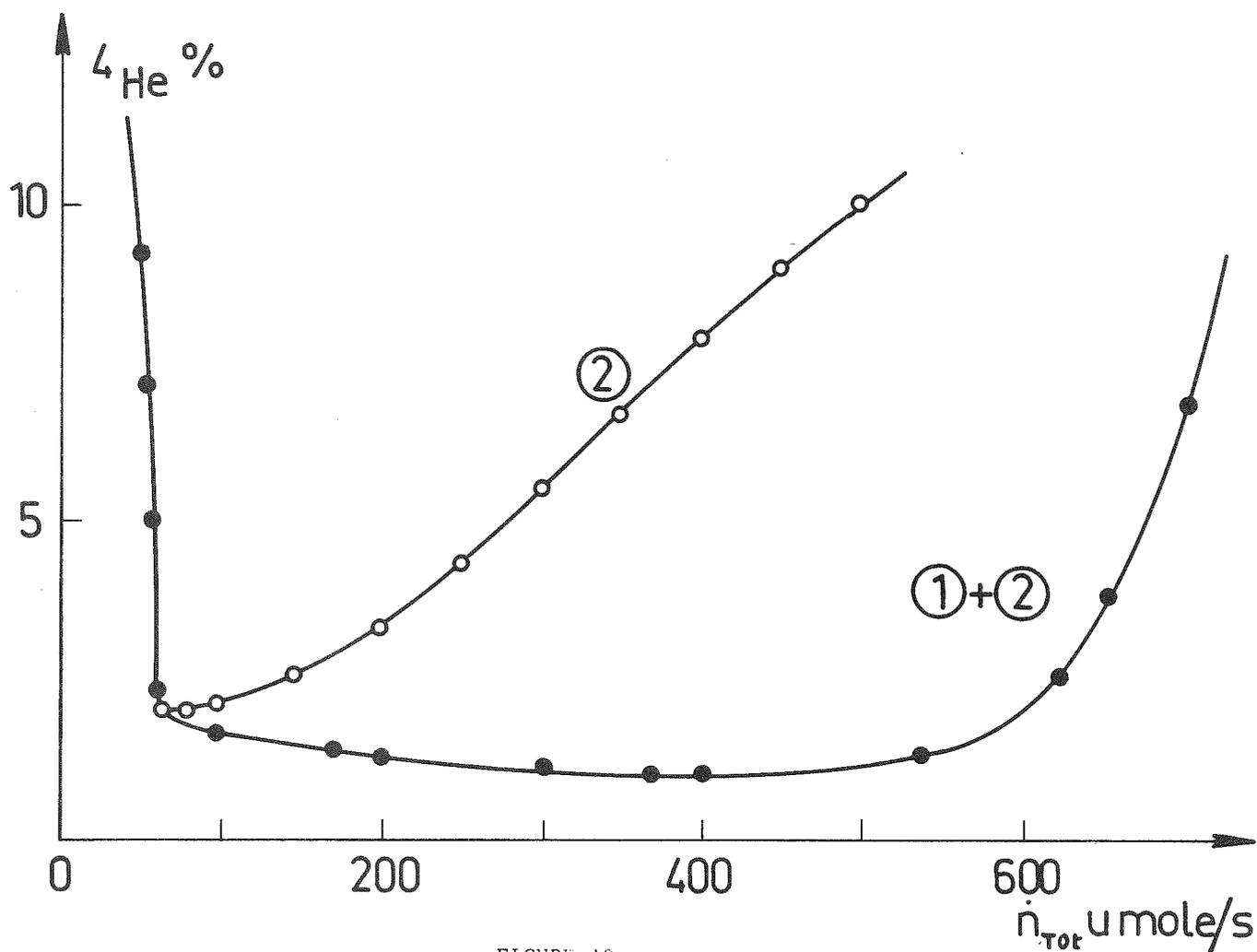


FIGURE 12

POURCENTAGE D' ^4He DANS LES VAPEURS DE L'EVAPORATEUR EN FONCTION DU DEBIT TOTAL

(2) Chauffage du brûleur de film seulement

(1)+(2) Chauffage de la résistance principale et du brûleur de film

Fort de cette expérience, nous avons construit un évaporateur dont le schéma est donné par la figure 11. Il comporte deux résistances de chauffage. La résistance principale notée (1) est noyée directement dans le liquide afin d'éviter d'évaporer le film d' ^4He superfluide comme cela se produit lorsqu'on chauffe le corps en cuivre de l'évaporateur.

La deuxième résistance (2) appelée "brûleur de film" est destinée à évaporer le film superfluide avant qu'il ne pénètre dans le tuyau de pompage et ne soit aspiré par la pompe. Le baffle en cuivre recondense les vapeurs d' ^4He provenant de cette évaporation.

Sur la figure 12, on a porté la concentration en ^4He du gaz pompé en fonction du débit total. La courbe (2) est obtenue lorsqu'on chauffe uniquement par le brûleur de film. Dans ce cas, en dessous d'une certaine puissance critique (correspondant au minimum de la courbe), le film n'est pas supprimé et l'on pompe beaucoup d' ^4He . Pour les plus fortes puissances, il est probable qu'on chauffe le baffle en cuivre et qu'on évapore en partie le film d' ^4He qui s'y trouve. La courbe notée (1)+(2) est tracée en chauffant le brûleur de film à la puissance critique, le reste de la puissance étant dissipée dans la résistance principale. La concentration en ^4He reste dans ce cas inférieure à 1,5 % pour une gamme de débits compris entre 60 et 600 $\mu\text{mole/s}$. Cette performance intéressante est due non seulement à l'évaporateur lui-même, mais aussi au groupe de pompage qui est capable de maintenir une pression très basse dans cette gamme de débits.

Sur la figure 13 sont portés le débit d' ^3He , le débit d' ^4He et la température de l'évaporateur en fonction de la puissance totale de chauffage, dans le cas où le brûleur de film est chauffé avec la puissance critique. Le débit d' ^3He est directement proportionnel à la puissance totale et dépend très peu de la fraction de puissance dissipée dans le brûleur de film.

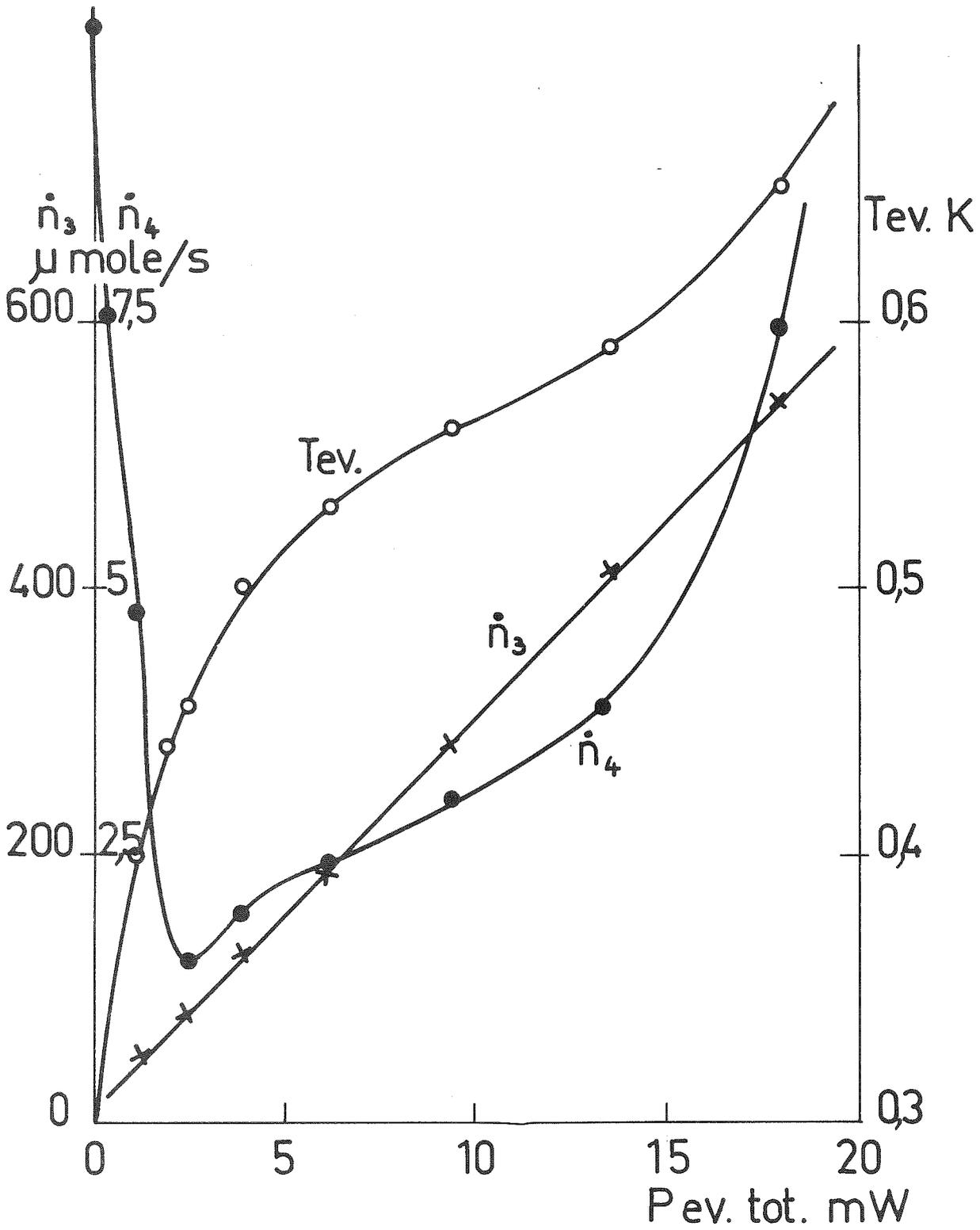


FIGURE 13

Débit ^3He , débit ^4He et température de l'évaporateur en fonction de la puissance de chauffage totale

D) Les échangeurs de chaleur.

Les échangeurs de chaleur constituent la partie la plus importante d'un réfrigérateur à dilution. Ce sont essentiellement eux qui déterminent la température minimum et la puissance frigorifique que l'on peut obtenir. Ils ont fait l'objet de nombreuses études et d'améliorations constantes dans notre laboratoire au cours de ces dernières années surtout grâce à G. FROSSATI⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾. Ceux qui équipent actuellement notre appareil et qui vont être décrits ici, constituent l'avant-dernière génération. Une version plus récente et encore plus performante est utilisée à l'heure actuelle par Frossati sur son réfrigérateur.

1) Principes généraux :

Le problème des échangeurs de chaleur a été abondamment traité dans la littérature. Pour en avoir une bonne vue d'ensemble, on peut consulter par exemple la référence (2). Nous n'avons pas l'intention ici de retraiter ce problème. Nous allons simplement donner les lignes directrices qui sont nécessaires pour comprendre la façon de calculer un ensemble d'échangeurs de chaleur.

La relation de base qui donne la température minimum de la boîte à mélange dans le cas idéal pour un échangeur continu est⁽¹¹⁾⁽¹²⁾:

$$T_{MC}^2 = 12,8 R_{Km} \frac{\dot{n}}{\sigma} \quad (1)$$

où T_{MC} est la température de la boîte à mélange en K. $R_{Km} = R_K T^3$ est le coefficient de résistivité thermique de Kapitza en $K^4 m^2 / W$.

\dot{n} : débit molaire d'³He en moles/s

σ : surface totale d'échange en m^2 .

Le cas idéal est celui d'un échangeur où toute la chaleur du liquide chaud va au liquide froid, où l'on néglige les effets de viscosité et de conduction du liquide et où la charge thermique de la boîte à mélange est nulle.

Par exemple, pour l'échangeur tubulaire coaxial en Cu-Ni (voir plus loin) qui constitue la première partie des échangeurs de notre appareil et dont la surface d'échange est de 287 cm^2 le calcul donne une température $T_{MC} = 42 \text{ mK}$ pour un débit de $400 \text{ } \mu\text{moles/s}$ ce qui est

bien vérifié par l'expérience.

D'autre part, la puissance frigorifique en W donnée par le bilan d'enthalpie dans la boîte à mélange est :

$$\dot{Q} = \dot{n}(96 T_{MC}^2 - 12 T_c^2) \quad (2)$$

avec T_c : température de la phase concentrée lorsqu'elle pénètre dans la boîte à mélange, en K.

La viscosité de l'hélium est de la forme :

$$\eta = \frac{\gamma}{T^2} \quad (3)$$

où $\gamma = 2 \times 10^{-7}$ N sec/m² pour la phase concentrée et $0,5 \times 10^{-7}$ N sec/m² pour la phase diluée.

Enfin, la conductibilité thermique du liquide pour les températures inférieures à 20 mK est donnée par :

$$K = \frac{A}{T} \quad (4)$$

avec $A = 35 \times 10^{-5}$ W/m pour la phase concentrée et 26×10^{-5} W/m pour la phase diluée.

En conséquence de la relation (3), lorsqu'on veut construire un échangeur fonctionnant à la plus basse température possible, il faut augmenter le diamètre des conduits où circule le liquide pour diminuer le réchauffement visqueux ($\dot{Q}_v \sim \eta \dot{n}^2$). Mais la conduction thermique due au liquide le long de ces conduits ($\dot{Q}_c \sim \frac{S}{L} K$) augmentera, ceci d'autant plus vite que la conductibilité augmente aussi lorsque la température baisse d'après la relation (4). La chaleur qui arrive par conduction dans la boîte à mélange va donc devenir importante alors que d'après (2) la puissance frigorifique diminuera. C'est pour cet ensemble de raisons que l'obtention de températures toujours plus basses nécessite un compromis qui est de plus en plus difficile à réaliser.

La seule manière de compenser l'augmentation d'apport de chaleur sur la boîte à mélange dû à la conduction thermique est d'augmenter la puissance frigorifique, donc le débit d'après la relation (2). Pour cette raison, nous avons construit un réfrigérateur capable de

débit 600 $\mu\text{moles/s}$. Cependant, quand on augmente le débit si on veut rester à la même température T_{MC} , il faut augmenter la surface d'échange :

- pour compenser l'augmentation de réchauffement visqueux,
- pour satisfaire à la relation (1).

Finalement, toutes ces considérations amènent à augmenter considérablement la surface d'échange. On y arrive assez facilement en utilisant des poudres métalliques frittées, sans trop augmenter pour cela le volume total de liquide mis en jeu.

2) Réalisation pratique :

a) L'échangeur coaxial tubulaire :

Cet échangeur est destiné à abaisser rapidement la température à la sortie de l'évaporateur jusqu'à environ 50 mK, c'est-à-dire à faire le lien avec les échangeurs à poudre frittée dont nous parlons au paragraphe suivant. On préfère utiliser un échangeur tubulaire dans cette gamme de température car il permet de limiter la conduction thermique vers les étages à plus basse température plus facilement que des échangeurs à poudre. D'autre part, une faible surface d'échange est suffisante pour atteindre 50 mK.

L'échangeur tubulaire est simplement constitué de deux tubes coaxiaux en Cu-Ni.

La phase concentrée circule dans le tube intérieur et la phase diluée circule à contre-courant dans l'espace annulaire compris entre celui-ci et le tube extérieur. Pour le calcul de ces échangeurs, il faut tenir compte de deux phénomènes importants :

- a) Nous avons constaté expérimentalement (voir réf. 11) que lorsque le tube de la phase diluée était trop étroit dans la zone proche de l'évaporateur ($T > 200$ mK) le débit en ^3He était limité. Il semble que ce soit uniquement une question de diamètre et non d'impédance ce qui fait penser à un phénomène de vitesse critique.
- b) Si l'on augmente trop ce diamètre, la conduction thermique entre l'évaporateur et les parties plus froides devient très grande car la conductivité de la phase diluée est importante dans cette gamme de température (voir réf. 3).

Il faut donc non seulement augmenter le diamètre du tube extérieur, mais également augmenter sa longueur en conséquence. Nous

n'exposerons pas ici la méthode de calcul pour cet échangeur qui est très classique. Dans le paragraphe suivant, nous montrerons comment on calcule les échangeurs continus avec poudre frittée. Ces calculs s'appliquent évidemment aussi au cas de l'échangeur tubulaire. En pratique, notre échangeur tubulaire comprend 4 sections différentes, toutes en tubes de Cu-Ni. Le tube intérieur est enroulé en hélice à l'intérieur du tube extérieur.

COTE CONCENTRE		COTE DILUE		
LONGUEUR	DIAMETRE	LONGUEUR	DIAMETRE	SURFACE D'ECHANGE RAMENEE AU COTE CONCENTRE
1,5 m	0,3 x 0,5 mm	0,3 m	3,5 x 4 mm	14 cm ²
1,5 m	0,5 x 1 mm	0,3 m	3,5 x 4 mm	23 cm ²
4 m	1 x 1,5 mm	0,8 m	4 x 4,5 mm	125 cm ²
4 m	1 x 1,5 mm	0,8 m	4,5 x 5 mm	125 cm ²

b) Les échangeurs à poudre métallique frittée :

Les échangeurs à grande surface d'échange situés à la suite de l'échangeur tubulaire ont été construits avec de la poudre d'Ag frittée. Nous utilisons préférentiellement la poudre d'Ag car elle est relativement peu sensible aux agents chimiques de l'atmosphère : elle ne s'oxyde pas du tout ce qui est très important pour des grains très fins. D'autre part, cette poudre se fritte à faible température (200°C sous une atmosphère d'hydrogène pendant 1/2 heure) ce qui simplifie beaucoup l'opération. La poudre qui a été utilisée pour nos échangeurs est disponible commercialement. Elle a une granulométrie de 0,5 µm et une surface spécifique mesurée par la méthode BET de 0,2 m²/gr. Il est possible de trouver actuellement sur le marché de la poudre d'Ag de 0,07 µm d'une surface spécifique 10 fois supérieure.

La valeur de la résistance thermique de Kapitza dont nous avons besoin pour le calcul des échangeurs est très différente pour une

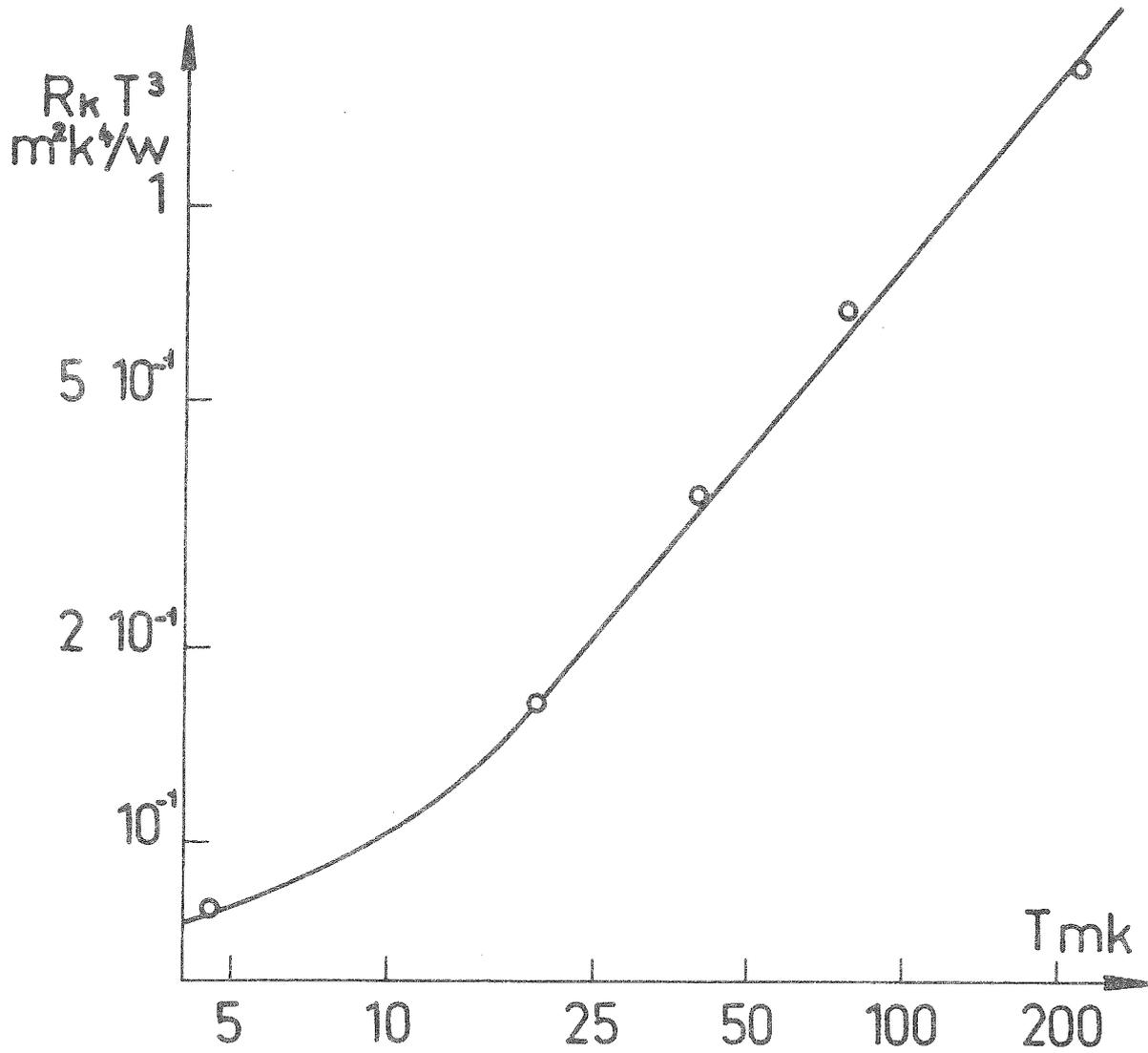


FIGURE 14

Coefficient de la résistivité de Kapitza pour de la poudre d'argent de $0,5 \mu\text{m}$, de surface spécifique $0,2 \text{ m}^2/\text{g}$ immergée dans la phase diluée

poudre et pour le même matériau massif. Ceci peut être imputé à une perturbation de la propagation des phonons dans le milieu fritté par suite des effets de taille, à une modification du matériau lors du frittage et à un effet de conduction dans le liquide en géométrie restreinte⁽¹³⁾. Nous avons mesuré indépendamment la valeur de cette résistance pour la poudre d'Ag de 0,5 μm plongée dans la phase diluée. La figure 14 montre la courbe mesurée $R_{KM} = R_K T^3$ en fonction de la température. En dessous de 10 mK la valeur de R_{KM} varie peu et est égale environ à 0,1 $\text{m}^2\text{K}^4/\text{W}$ alors que pour l'argent massif on trouve 0,01 à 0,02 $\text{m}^2\text{K}^4/\text{W}$ (voir par exemple la référence 14).

La géométrie des échangeurs a beaucoup évolué au cours du temps au laboratoire. Les échangeurs de la génération précédant ceux dont il est question ici étaient constitués de parties métalliques et de parties en matière plastique (araldite), le tout étant solidaire. Lors du refroidissement, la différence de contraction entre métal et matière plastique pouvait mener à la rupture. Dans nos échangeurs les parties métalliques sont mécaniquement complètement désolidarisées des parties en araldite et pendant le refroidissement elles se déplacent sans problème, les unes par rapport aux autres. Actuellement, la dernière génération d'échangeurs construits par Frossati est entièrement métallique et utilise une poudre d'argent plus fine (0,07 μm). La figure 15 montre la section type d'un échangeur selon la géométrie que nous avons adoptée. Il y a quatre échangeurs de symétrie de révolution montés en série, chacun ayant ses dimensions propres selon la température (voir photographie de la figure 16). Dans la section, on voit que le canal de la phase diluée est concentrique à celui de la phase concentrée. La poudre est frittée sur les deux faces d'une mince feuille d'Ag (25 μm d'épaisseur) qui sert de paroi de séparation. Le fluide qui circule dans l'échangeur joue en fait un double rôle selon l'idée due à NIINIKOSKI⁽¹⁵⁾ :

- circulation à travers un canal de section optimisée pour la gamme de température où fonctionne l'échangeur,
- transfert de chaleur entre les grains de la poudre et l'hélium du canal.

Ce transfert qui est possible aux plus basses températures grâce à la grande conductivité thermique du fluide, s'effectue d'abord à travers la multitude de canaux qui existent dans le fritté et ensuite à travers un canal étroit que nous appellerons "chemin thermique" (voir figure 5)

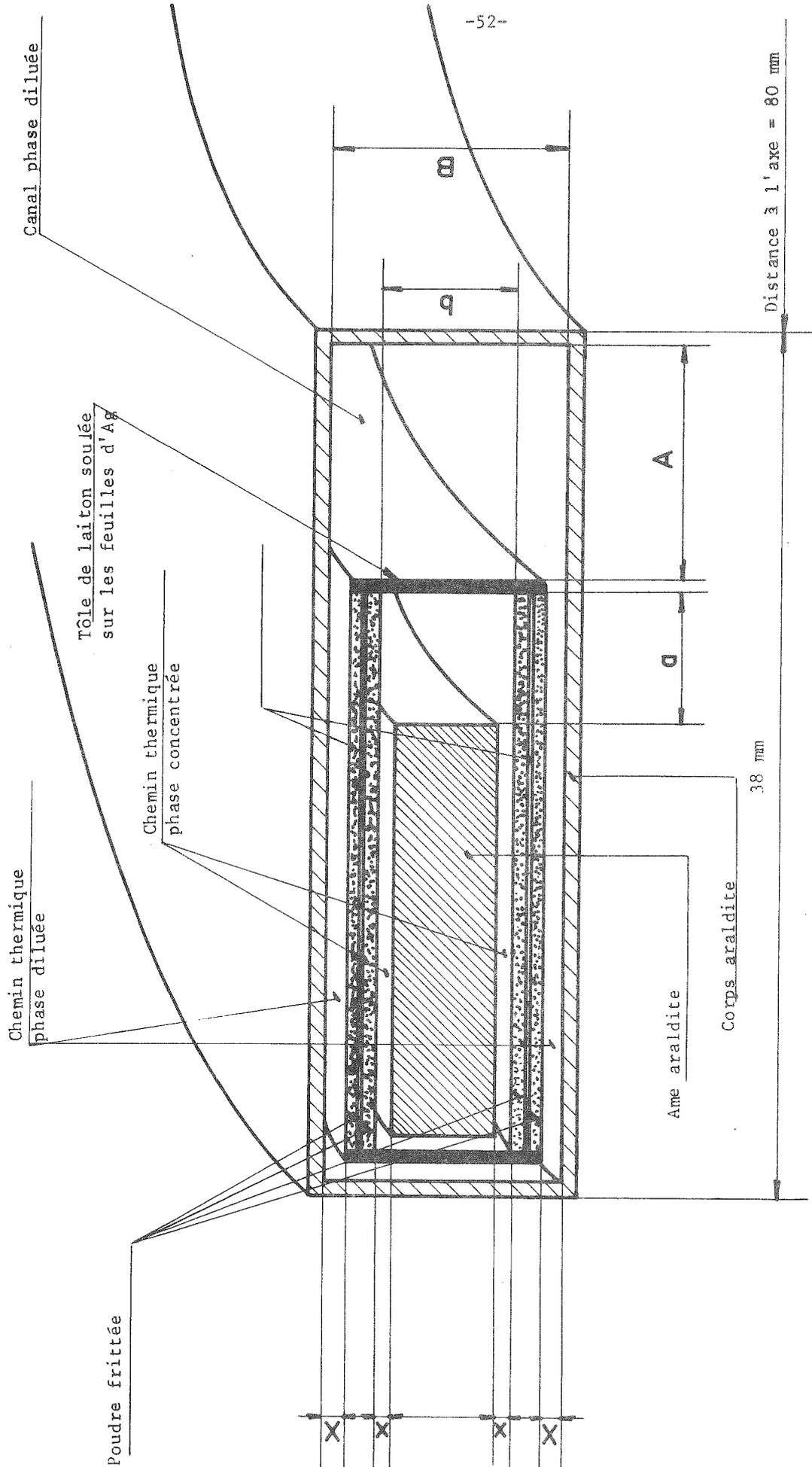


FIGURE 15
GEOMETRIE DES ECHANGEURS A POUDRE D'ARGENT FRITTEE

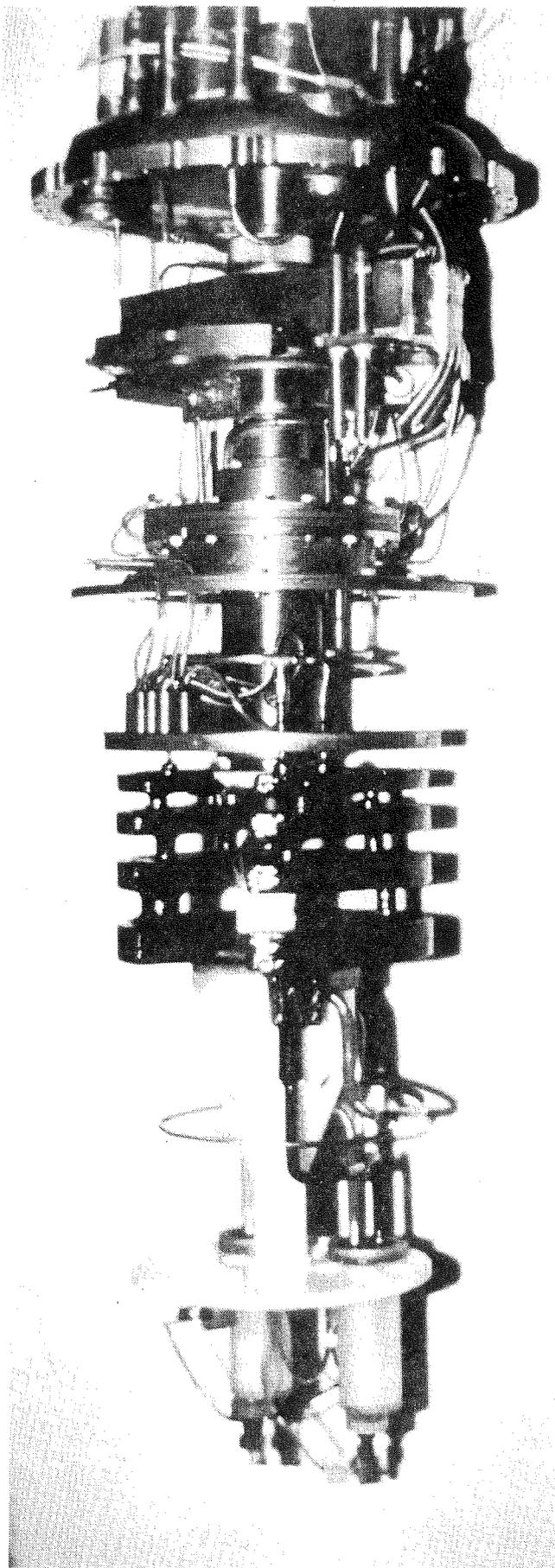


FIGURE 16

Vue de la partie interne du réfrigérateur équipé d'une double boîte à mélange

Les dimensions de ces canaux et du chemin thermique sont si faibles (voir tableau) que le fluide y reste probablement immobilisé par viscosité.

Le calcul de la dimension des canaux se fait en minimisant la somme de l'énergie transmise par conduction et de l'énergie due au frottement visqueux :

$$\dot{Q}_{\text{total}} = \dot{Q}_{\text{conduction}} + \dot{Q}_{\text{viscosité}}$$

On obtient ainsi une dimension optimale qui est fonction essentiellement de la température, du débit et de la longueur. Par exemple, pour un tube de section circulaire, le diamètre optimal est donné par :

$$d_{\text{opt}} = \left(\frac{1024 L^2 \dot{n}^2 V^2 \gamma}{\pi^2 K T \Delta T} \right)^{1/6}$$

(voir le calcul au 3e chapitre de cette thèse).

Il suffit alors de calculer l'épaisseur de la couche de poudre frittée de telle façon que l'énergie transmise par conduction le long de l'échangeur soit faible devant l'énergie échangée entre les deux phases. Ceci constitue la définition même d'un échangeur de chaleur continu. La méthode de calcul qui vient d'être exposée est en fait relativement récente. A l'époque où nous avons construit nos échangeurs, nous utilisions encore la formule de Wheatley (3) donnant le réchauffement visqueux le long d'un tube :

$$\frac{\Delta T}{T} = C \frac{\dot{n}_3 Z}{T^4}$$

où Z est l'impédance géométrique du tube et C une constante.

Dans cette méthode on fixe le réchauffement visqueux et on détermine ensuite la géométrie pour avoir la conduction thermique minimum. La méthode de calcul actuelle qui permet une meilleure approche du problème donne en général des dimensions plus grandes pour les canaux. Cela signifie que nos échangeurs calculés avec l'ancienne méthode ont sans doute un taux de réchauffement visqueux trop important. Le tableau II donne les caractéristiques détaillées de chaque échangeur ainsi que les grandeurs principales calculées pour un débit nominal de 500 $\mu\text{moles/s}$. Seul le quatrième échangeur possède une géométrie avec "chemin thermique". Dans les trois premiers échangeurs, la géométrie

est simplifiée ; le canal de circulation occupe tout l'espace disponible nécessitant une importante quantité d'hélium. Dans le quatrième échangeur fonctionnant à plus basse température, la conduction thermique de l'hélium devient suffisante pour que la géométrie avec "chemin thermique" puisse être adoptée.

Les abréviations suivantes sont utilisées dans ce tableau :

- C : colonne correspondant à la phase concentrée
- D : colonne correspondant à la phase diluée
- e : épaisseur de la couche de poudre frittée sur chaque face de la feuille d'Ag
- σ : surface d'échange calculée pour un compactage de 50 % avec des sphères de 0,5 μ de diamètre

Les diamètres a, A, b, B, x, X sont définis par la figure 14.

- T_{MC} : température de la boîte à mélange qui serait placée après cet échangeur
- Q_C : chaleur transmise par conduction dans le liquide le long de l'échangeur
- Q_e : chaleur échangée entre les deux phases dans cet échangeur
- $\frac{\Delta T}{T}$: réchauffement du liquide par frottement visqueux
- V : volume du liquide contenu dans les canaux et dans les pores de la poudre pour la phase considérée.

3) Résultats expérimentaux :

Sur la figure (17) nous avons porté la température T_{MC} de la boîte à mélange en fonction du débit \dot{n}_3 . La température est mesurée à l'aide d'un thermomètre magnétique au CMN étalonné avec la tension de vapeur de l'⁴He entre 1 et 2 K.

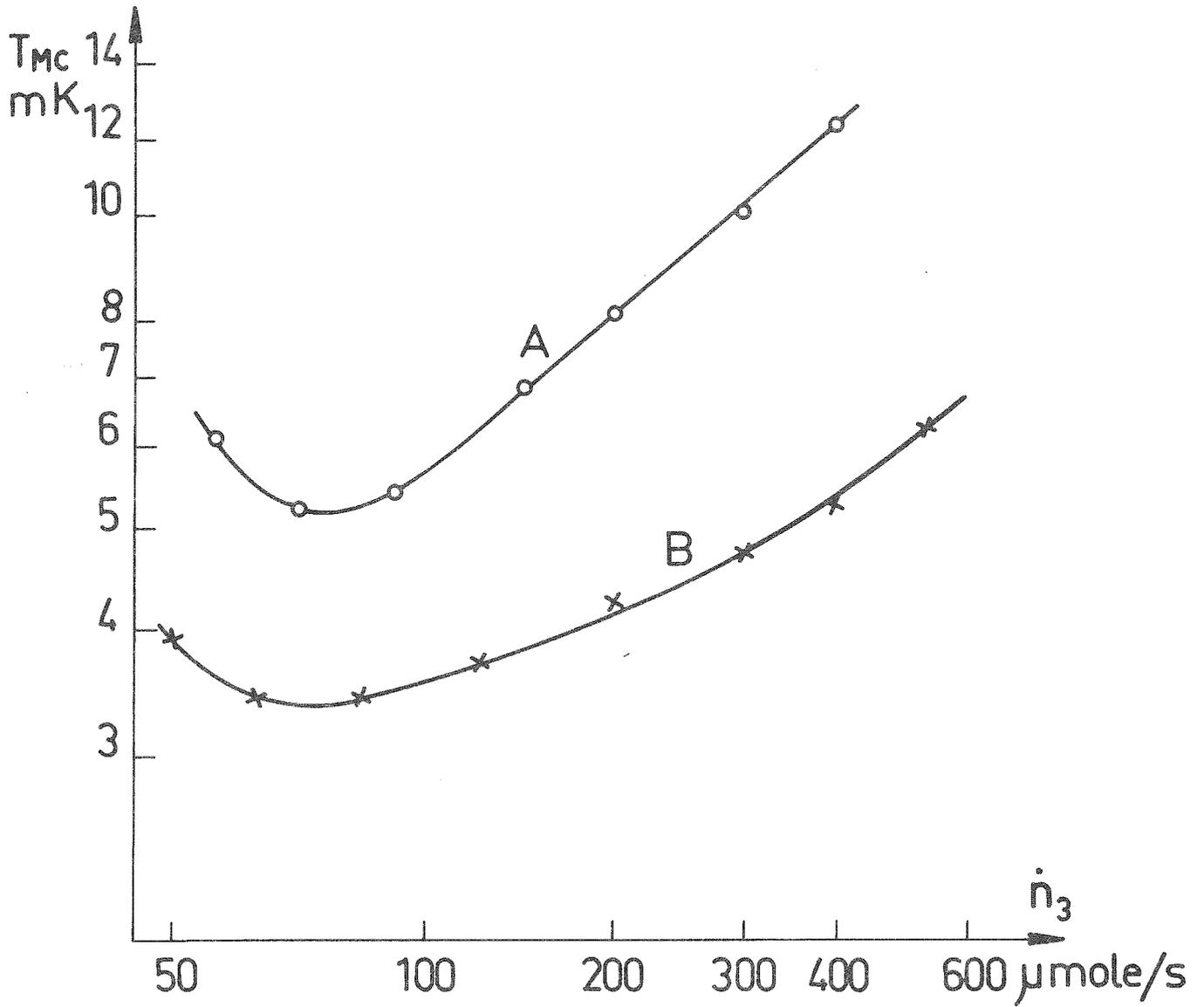


FIGURE 17

Température de la boîte à mélange en fonction du débit

A : avec les deux premiers échangeurs

B : avec les quatre échangeurs

TABLEAU II

CARACTERISTIQUE DES ECHANGEURS DE CHALEUR A Poudre D'Ag FRITTEE

N° ECHANGEUR	I	I	II	II	III	III	IV	IV
PHASE	C	D	C	D	C	D	C	D
e mm	0,5	0,5	0,5	0,5	1	1	2	2
σ_{BET} m ²	8	8	8	8	16	16	32	32
a mm	30		30		30		3	
A mm		32		32		32		5
b mm	0,4		0,6		0,9		3	
B mm		2,4		5,6		8		5
x mm	-		-		-		0,3	
X mm		-		-		-		0,4
T _{MC} mK	30		14		7,6		5,0	
\dot{Q}_c erg/s	0,2	5	0,08	0,29	0,14	0,39	0,08	0,08
\dot{Q}_e erg/s	1160		126		50		8,3	
$\frac{\Delta T}{T}$	$3,8 \times 10^{-3}$	$1,6 \times 10^{-4}$	6×10^{-3}	8×10^{-4}	5×10^{-3}	5×10^{-3}	5×10^{-3}	5×10^{-3}
V cm ³	5,2	8,1	6,8	18	7,3	30	8,7	25

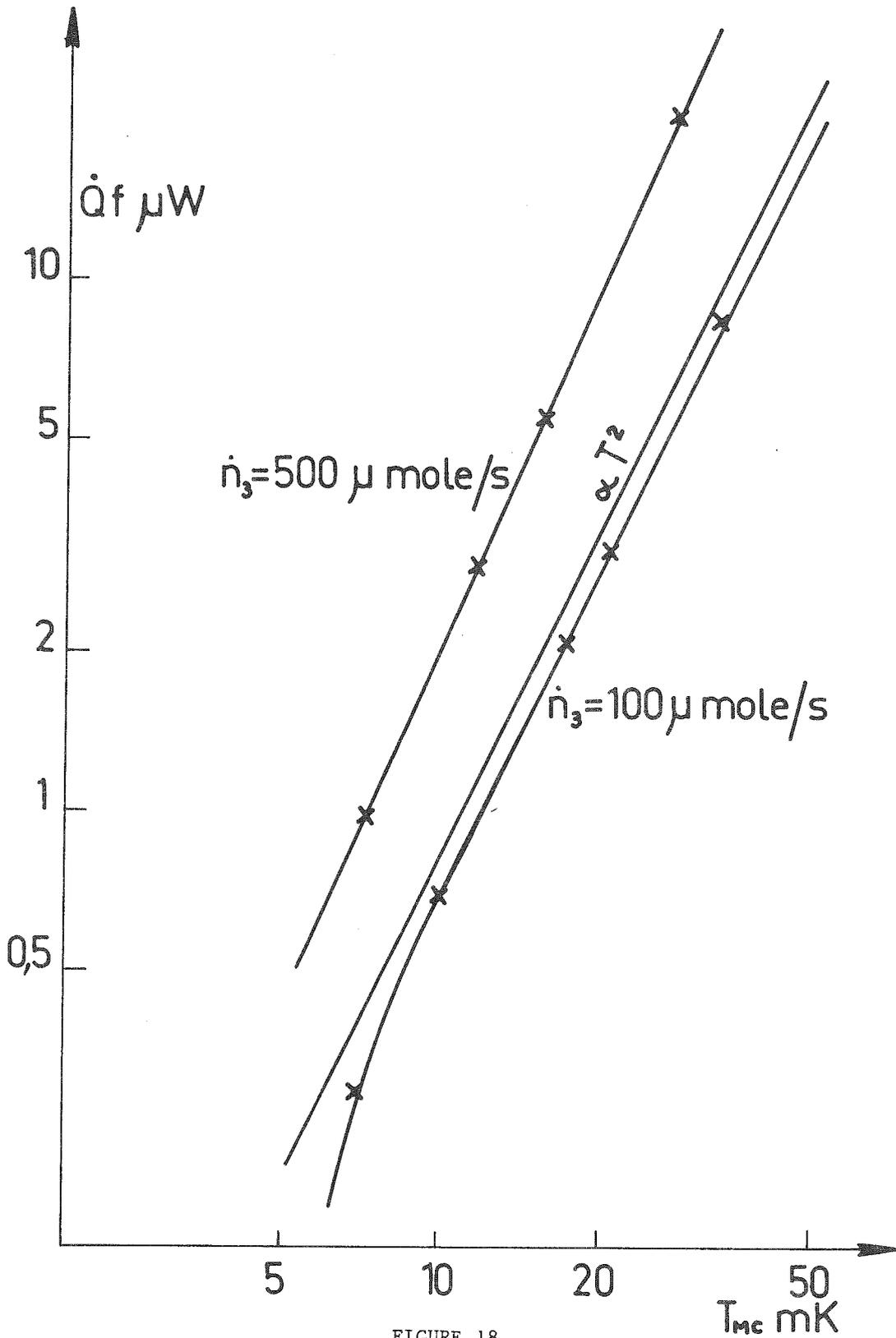


FIGURE 18

Puissance frigorifique du réfrigérateur mesurée par chauffage de la boîte à mélange

La courbe A concerne les mesures faites avec les deux premiers échangeurs seulement. La courbe B est tracée avec les quatre échangeurs. Entre la courbe B et la courbe A la surface d'échange a quadruplé (voir tableau). On vérifie pour les forts débits que la relation (1) est bien vérifiée, c'est-à-dire que la température est effectivement divisée par un facteur deux. Cependant pour les plus faibles débits, les pertes dues à la conduction et à la viscosité deviennent prédominantes dans les deux derniers échangeurs et l'abaissement de température est moins important. La courbe B présente donc un minimum plus aplati. La température minimale que l'on peut atteindre avec cet appareil est de 3,4 mK pour $\dot{n}_3 = 70 \mu\text{mole/s}$ ce qui d'après la formule générale (11) :

$$T_{mc}^2 = 12,8 R_{Km} \frac{\dot{n}}{\sigma} + 1,22 \times 10^{-2} \frac{\dot{Q}}{\dot{n}} \text{ en unités SI}$$

donne une résistance de Kapitza $R_{Km} = 4 \times 10^{-1} \text{ m}^2\text{K}^4/\text{W}$ et des pertes $\dot{Q} = 33 \text{ nW}$.

La puissance frigorifique mesurée en chauffant la boîte à mélange est donnée figure 18 pour deux valeurs différentes du débit \dot{n}_3 en fonction de la température. Elle suit bien à haute température, quand les pertes intrinsèques au système deviennent négligeables, une loi en T^2 conformément à la relation simplifiée :

$$\dot{Q} = 80 \dot{n}_3 T_{MC}^2$$

Depuis que cet appareil a été construit, Frossati a encore amélioré les performances de son réfrigérateur et a ainsi pu atteindre une température de $T_{MC} = 2 \text{ mK}$ en mode continu.

E) Connexions démontables.

Avant de clore ce chapitre, il faut parler de la manière originale dont toutes les parties du circuit du mélange se trouvant dans l'enceinte à vide sont assemblées dans notre réfrigérateur. Afin de permettre un démontage facile des différents constituants du circuit, les connexions des tubes de liaison sont démontables. Il s'agit simplement de tubes de PVC souple qui sont emmanchés sur les deux tubes métalliques que l'on veut connecter. Lorsque l'ensemble se refroidit,

la matière plastique se contracte plus que le tube métallique ce qui suffit à assurer une étanchéité parfaite à froid même pour l'hélium superfluide.

Après une utilisation systématique de ce procédé depuis presque deux ans, nous pouvons affirmer qu'il est beaucoup plus fiable que ce que l'on pourrait penser a priori. Il est extrêmement facile de faire ces connexions et cela ne nécessite aucune précaution particulière. On enduit simplement les tubes métalliques de graisse à vide pour faciliter le montage. Le procédé permet un démontage très rapide des différentes parties du circuit soit pour des tests, soit par exemple pour enlever la boîte à mélange lorsqu'on veut changer d'échantillon de mesure. Un autre avantage réside dans la propreté du procédé. En effet, il n'est plus nécessaire de faire de soudures sur le réfrigérateur même. On prépare les soudures à part dans de bonnes conditions de travail et on termine le montage sur le réfrigérateur avec les connexions en PVC, sans salir l'appareil.

CONCLUSION :

En conclusion de ce chapitre, nous remarquons que le réfrigérateur à dilution qui y est décrit constitue une machine très performante sur laquelle diverses sortes d'expériences peuvent être effectuées. On dispose d'un volume expérimental important avec un point froid stable à une température de l'ordre de 3 mK. L'appareil a été utilisé jusqu'à présent pour faire les expériences sur les doubles boîtes à mélange qui sont décrites au 3e chapitre de cette thèse. Des expériences d'échos dipolaires dans les substances amorphes ont été également effectuées et nous en parlons dans le 4e chapitre. Nous avons aussi commencé des expériences de désaimantation nucléaire avec du Pr In_3 . Pour cela nous avons monté directement dans la boîte à mélange une bobine supraconductrice capable de produire un champ magnétique de 50 kOe. Le Pr In_3 refroidit de l' ^3He qui est mis sous pression grâce à un circuit séparé. La température est mesurée à l'aide d'un thermomètre utilisant une technique de résonance magnétique nucléaire pulsée du platine.

Remarquons pour finir que ces appareils sont tout de même des machines complexes, sophistiquées et d'un emploi qui nécessite une certaine habitude. En particulier, un aspect important a été passé sous

silence jusqu'à présent car il n'apporte pas grand chose du point de vue de la connaissance scientifique. Pourtant il a absorbé une partie très importante de notre temps de travail et nous a fait gaspiller beaucoup d'énergie nerveuse. Nous voulons parler du problème des défauts d'étanchéité plus communément appelés "fuites". L'absence de fuites est une condition impérative à tout fonctionnement normal d'un réfrigérateur à dilution. Or, par sa complexité, il est difficile de trouver un appareil où la probabilité de fuites est plus élevée.

C'est un problème très rébarbatif auquel il n'existe aucune solution simple. C'est pourquoi les chercheurs n'aiment pas beaucoup modifier les circuits de leurs appareils et c'est probablement pourquoi les réfrigérateurs à dilution n'ont évolué que de façon très ponctuelle au cours de leur histoire.

Mais ne soyons pas trop pessimistes, actuellement nos machines fonctionnent bien, sont relativement fiables et nous permettent presque chaque fois qu'on le leur demande de flirter avec le zéro absolu.

REFERENCES

- 1 - Y. LAUMOND, Thèse Grenoble (1972) non publiée.
- 2 - O.V. LOUNASMAA, Experimental Principles and Methods below 1 K, Academic Press (1974).
- 3 - J.C. WHEATLEY, O.E. VILCHES and W.R. ABEL, Physics 4 (1968) 1 et aussi J.C. WHEATLEY, R.E. RAPP and R.T. JOHNSON, J. Low Temp. Phys. 4 (1971) 1.
- 4 - B.S. NEGANOV, Report P.13-4014 Droubna (1968).
- 5 - L. RIDDIFORD and R.F. COE, J. Sci. Instr. 31 (1954) 33.
- 6 - P. ROUBEAU, Communication Privée.
- 7 - A.P. SEVERIJNS, L.T. 14 Proceedings, Otaniemi (1975) North-Holland.
- 8 - W.P.KIRK and E.D. ADAMS, Cryogenics (mars 1974) 147.
- 9 - G. FROSSATI and D. THOULOZE, ICEC 5 Proceedings, Kyoto 1974., IPC Science and Techn. Press.
- 10 - G. FROSSATI and D. THOULOZE, ICEC 6 Proceedings, Grenoble 1976.
- 11 - G. FROSSATI, H. GODFRIN, B. HEBRAL, G. SCHUMACHER and D. THOULOZE, Proceedings of the Int. Symp. on Phys. U.T. Hakoné 1977, à paraître au J. of the Phys. Soc. of Japan.
- 12 - R. RADEBAUGH and J.D. SIEGWARTH, Cryogenics, October 1971.
- 13 - R. RADEBAUGH, J.C. HOLSTE and J.D. SIEGWARTH, ICEC 5 Proceedings, Kyoto 1974.
- 14 - A.C. ANDERSON and W.L. JOHNSON, J. Low Temp. Phys. 7 (1972) 1.
- 15 - T.O. NIINIKOSKI, Nucl. Instr. Methods 97 (1971) 95.

CHAPITRE II

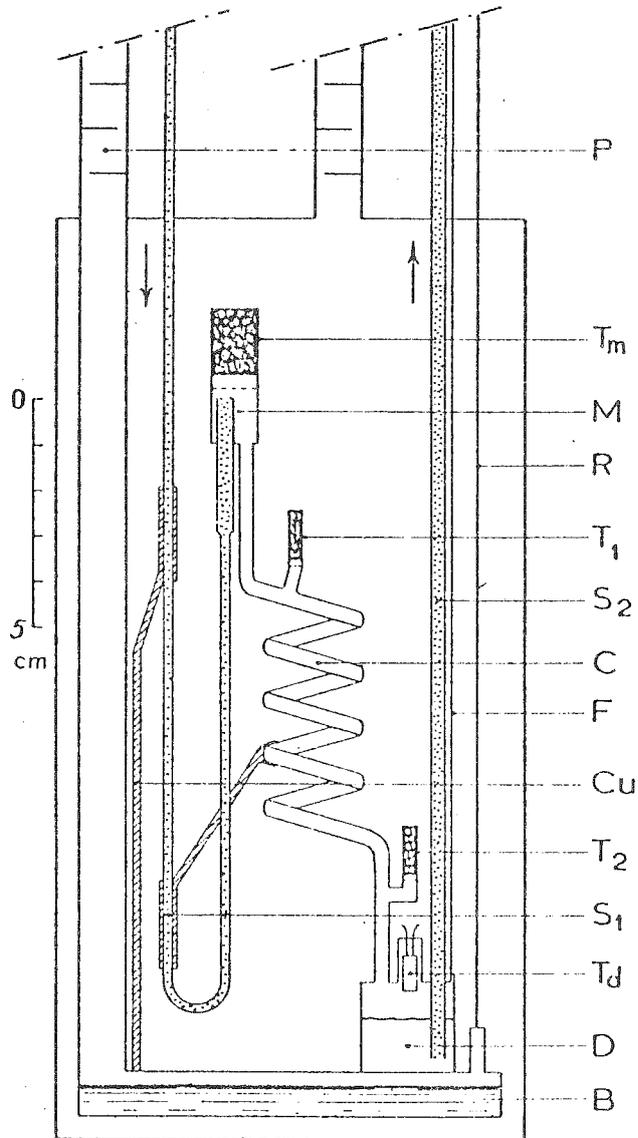
REFRIGERATEURS A DILUTION A CIRCULATION D'⁴He

Les premières études concernant la réfrigération à dilution par circulation d' ^4He ont commencé vers 1966 au "Kamerlingh Onnes Laboratory" à Leiden⁽¹⁾. Depuis cette époque, plusieurs versions d'appareils basées sur ce principe ont été construites à Leiden⁽²⁾⁽³⁾⁽⁴⁾. Nous allons d'abord décrire et donner le principe de fonctionnement de la version correspondant à la référence (3) qui est la version la plus élaborée. La référence (4) correspond à un développement ultérieur de l'appareil par adjonction d'une cellule à effet Pomeranchuk. Ensuite nous décrirons l'appareil que nous avons construit à Grenoble et en analysant son fonctionnement nous montrerons les différences par rapport à l'appareil de Leiden.

Mais avant de poursuivre, rappelons d'abord ce qu'est un réfrigérateur à circulation d' ^4He par opposition à un réfrigérateur conventionnel. Dans un réfrigérateur conventionnel, l' ^3He , en circulant, est dilué dans de l' ^4He superfluide dans la boîte à mélange. La "quasi-évaporation" de l' ^3He qui en résulte produit le froid. L' ^4He peut être considéré comme immobile et jouant simplement le rôle du vide. L' ^3He est ensuite séparé de l' ^4He à plus haute température dans une boîte appelée évaporateur. Dans un réfrigérateur à circulation d' ^4He , la situation est un peu plus compliquée puisque les deux fluides circulent, mais la circulation de l' ^3He est libre et découle naturellement du processus. Il y a toujours une boîte à mélange (M) dans laquelle s'effectue la dilution, mais c'est cette fois-ci l'apport d' ^4He dans cette boîte qui en est responsable. L' ^3He qui s'y trouvait au préalable forme donc la phase diluée qui par gravité descend à travers un capillaire vers une deuxième boîte située plus bas et appelée boîte à démixion (D). Dans cette dernière, on sépare l' ^3He de l' ^4He qui est ensuite réinjecté dans la boîte à mélange à l'aide d'une pompe. L' ^3He libéré dans la boîte à démixion remonte dans le capillaire par différence de densité jusqu'à la boîte à mélange où le processus recommence.

I - LE REFRIGERATEUR DE LEIDEN

L'appareil, représenté par la figure 1, est constitué de deux étages dont les circuits sont complètement indépendants. Le



P pumping tube; T_m thermometer; *M* mixing chamber; *R* ^3He return line; T_1 thermometer; S_2 superleak; *C* counterflow capillary; *F* filling capillary; *Cu* copper heat links; T_2 thermometer; S_1 superleak; T_d thermometer; *D* demixing chamber; *B* ^3He bath. Superfluid ^4He is circulated in the direction of the arrows.

FIGURE 1

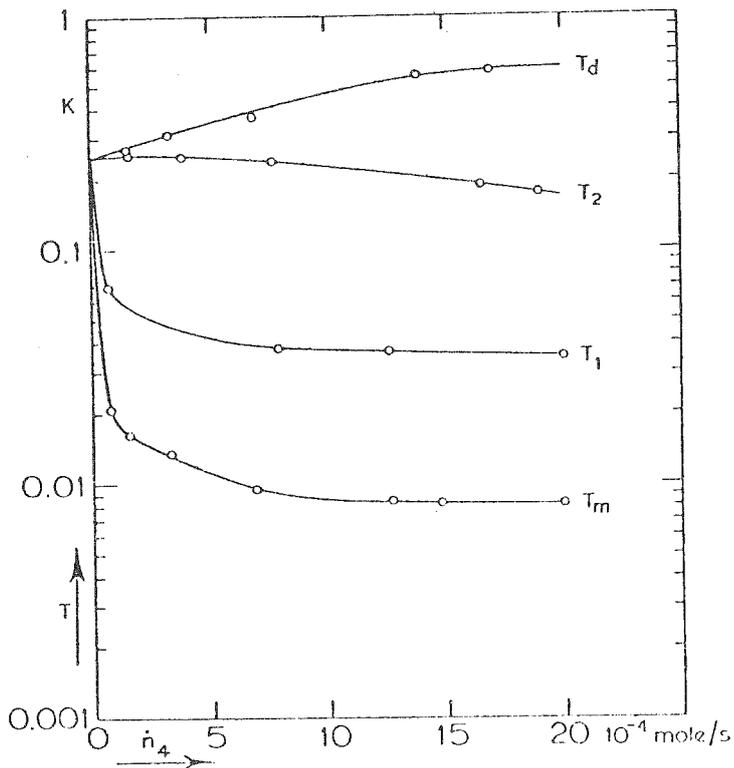
SCHEMA DU REFRIGERATEUR DE LEIDEN

premier étage est un réfrigérateur à ^3He classique (B) fonctionnant en mode continu. Il est destiné à prérefroidir (jusqu'à 0,3 K) le deuxième étage qui est le réfrigérateur à circulation d' ^4He proprement dit. Celui-ci consiste essentiellement en deux boîtes M et D reliées par un capillaire C. Le système est rempli de mélange dilué d' ^3He - ^4He en concentration et volume tels que la séparation de phase soit située dans la boîte D. Dans la boîte M et le capillaire C, il n'y a donc au début de l'expérience que de la phase concentrée, c'est-à-dire de l' ^3He pratiquement pur. On injecte alors à travers la superfuite S_1 de l' ^4He superfluide dans la boîte M. Celle-ci joue le rôle de chambre à mélange dans laquelle le froid est produit par "quasi-évaporation" de l' ^3He . La phase diluée ainsi produite dans M descend par gravité dans le capillaire C et rejoint la boîte D.

Afin de boucler le circuit d' ^4He pour travailler en mode continu, l' ^4He est extrait de la boîte D à l'aide d'une seconde superfuite S_2 . La boîte D est appelée chambre de démixion. L'extraction de l' ^4He dans la phase diluée (la démixion) est le processus inverse du mélange. Cette démixion produit de la chaleur qui est absorbée par le premier étage et libère de l' ^3He pur qui rejoint la phase concentrée. Cet ^3He en excès remonte le long du capillaire par différence de densité et finalement est redilué dans la boîte à mélange M. La circulation de l' ^4He est assurée soit à la température ambiante par une pompe mécanique, soit à basse température par une pompe à effet fontaine.

Lorsque l'équilibre dynamique est atteint, l' ^4He circule dans les superfuites avec un débit \dot{n}_4 , la phase diluée froide produite dans M descend le long du capillaire C par gravité et c'est la phase concentrée plus chaude produite par la démixion, qui remonte le long de celui-ci. Les deux phases circulent donc à contre-courant dans le même tube en y échangeant leur chaleur. Dans le capillaire C l'échange a lieu directement à l'interface entre les deux phases liquides, sans paroi de séparation comme dans le cas des réfrigérateurs à dilution conventionnels. C'est là que réside le principal intérêt de ce type d'appareil puisque la quantité de chaleur échangée n'est pas limitée par la résistance de Kapitza.

La figure 2 donne les performances du réfrigérateur de Leiden. Les températures T_m , T_1 et T_2 sont mesurées par des thermomètres magnétiques au CMN, T_d est mesurée par une résistance de carbone.



The temperature of the mixing chamber T_m , the demixing chamber T_d , and the temperatures T_1 and T_2 in the counterflow capillary as a function of the ^4He circulation rate \dot{n}_4 .

FIGURE 2

PERFORMANCES DU REFRIGERATEUR DE LEIDEN

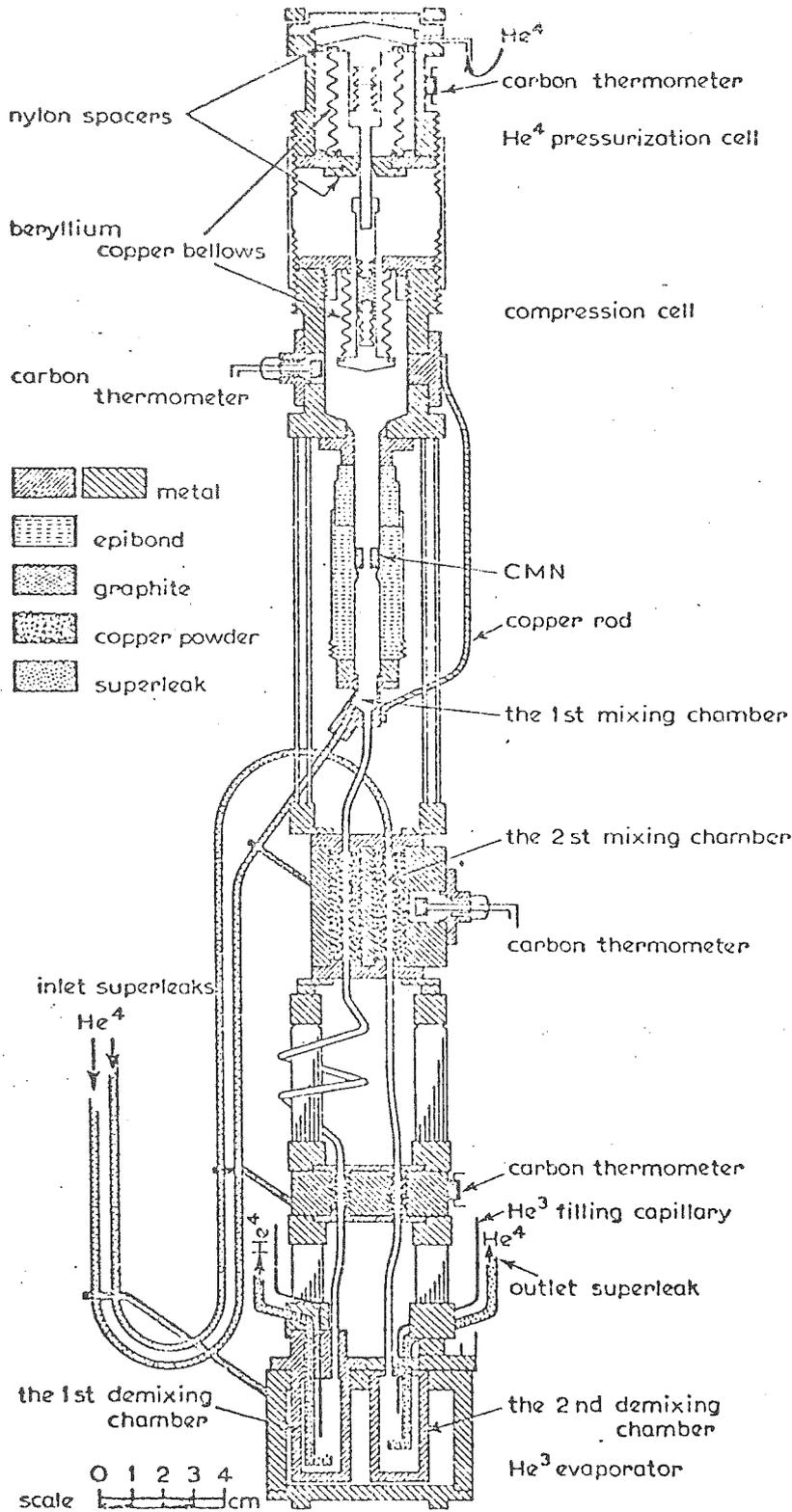


FIGURE 3
Réfrigérateur à deux étages de circulation d'⁴He équipé d'une cellule à effet Pomeranchuk (Leiden)

Lorsque le débit d' ^4He augmente, la température de la boîte à mélange ainsi que celles mesurées le long du capillaire diminuent. Par contre, à cause de la chaleur de démixon, la température T_d augmente jusqu'à 0,7 K pour $\dot{n}_4 = 2 \times 10^{-3}$ mole S^{-1} .

Différentes configurations géométriques du capillaire ont été testées avec parfois des résultats inattendus. La plus basse température a été obtenue pour un tube de 2,5 mm de diamètre interne et de 27 cm de long enroulé en hélice. Dans ce cas, $T_m = 8,3$ mK pour un débit $\dot{n}_4 = 1,5 \times 10^{-3}$ mole. S^{-1} .

Remarquons que le système peut fonctionner sous pression. Le groupe de Leiden a développé récemment⁽⁴⁾ un appareil à deux étages de circulation d' ^4He . Le deuxième étage est équipé d'un système de pressurisation d' ^4He analogue à celui d'une cellule à effet Pomeranchuk. Après refroidissement à environ 25 mK, sous une pression de 25 bars, tout le mélange contenu dans l'étage le plus froid est comprimé jusqu'à la pression correspondant à la courbe de fusion. Dans la boîte à mélange, la compression produit un refroidissement par effet Pomeranchuk et l'on atteint par cette méthode une température minimale de l'ordre de 2 mK. Il semble toutefois que cet appareillage reste très complexe (voir figure 3) et qu'une meilleure connaissance des phénomènes devrait permettre d'améliorer encore les performances.

II - LE REFRIGERATEUR DE GRENOBLE

Le réfrigérateur à circulation d' ^4He tel qu'il a été conçu à Leiden pose certains problèmes au niveau du prérefroidissement par le réfrigérateur à ^3He . En effet, la température de départ est relativement élevée (0,3 K) et lorsque le système fonctionne avec un débit d' ^4He important (2×10^{-3} mole S^{-1}) l'énergie fournie par le processus de démixon devient telle (de l'ordre de 5 mW) que la température de la chambre à démixon atteint 0,7 K. En pratique, c'est un véritable échangeur de chaleur qu'il faut mettre entre le réfrigérateur à ^3He et la chambre à démixon.

En 1975, simultanément à Grenoble⁽⁵⁾ et à Eindhoven au laboratoire de recherche de la Compagnie Philips⁽⁶⁾ des perfectionnements analogues ont été proposés en vue d'améliorer le fonctionnement

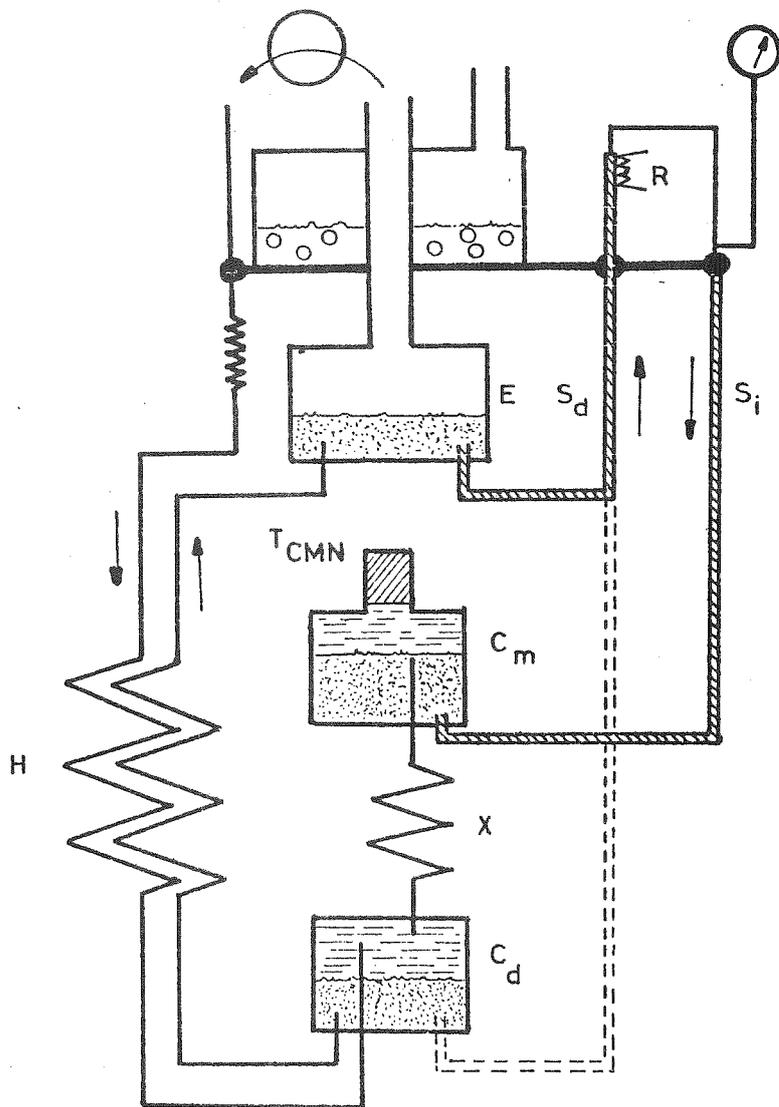


FIGURE 4

SCHEMA DU REFRIGERATEUR DE GRENOBLE

- | | |
|--|--------------------------------|
| C_m : chambre de mélange | T_{CMN} : thermomètre |
| C_d : chambre de démixion | X : capillaire |
| S_i : superfuite d'injection | S_d : superfuite de démixion |
| R : résistance de chauffage de la pompe fontaine | H : échangeur de chaleur |
| E : évaporateur | |

de la machine de Leiden. Nous décrirons ici uniquement la machine de Grenoble, celle d'Eindhoven étant conçue sur le même principe, mais semble-t-il n'ayant pas encore fonctionné au mieux de ses possibilités.

Dans la machine de Grenoble, le prérefroidissement (1er étage) se fait avec un réfrigérateur à dilution conventionnel à la place d'un réfrigérateur à ^3He . Cependant, au lieu d'avoir une boîte à mélange du 1er étage indépendante de la boîte à démixion du 2ème étage avec un simple couplage thermique entre les deux, nous les avons groupées en une seule boîte (figure 4). L'unique surface de séparation de phases de cette boîte Cd, au niveau de laquelle s'opèrent les mécanismes de transfert d' ^3He d'une phase dans l'autre, joue donc un double rôle. C'est là que se fait la démixion du 2ème étage avec dégagement de chaleur et c'est là aussi que se fait la dilution du 1er étage avec absorption de chaleur. Il faut donc que le débit en ^3He du 1er étage soit suffisant pour que la puissance frigorifique de la dilution compense à la fois la chaleur produite par la démixion et les apports d'énergie parasites.

Le capillaire appelé X sur la figure 4 joue le même rôle que le capillaire C du réfrigérateur de Leiden. Cependant, il est disposé de façon à dépasser à l'intérieur de la boîte à mélange C_m , et par effet de "trop-plein", à créer réellement une surface de séparation de phase dans la boîte. Le problème des superfuites est traité dans l'annexe I. Notons cependant ici que la superfuite de démixion S_d peut invariablement prendre naissance directement dans la boîte à démixion ou plus simplement dans l'évaporateur du réfrigérateur conventionnel (1er étage). Dans notre appareil, la circulation de ^4He est assurée par une pompe à effet fontaine entièrement disposée dans la partie froide. Il n'est donc pas possible de mesurer directement le débit d' ^4He . Cependant (voir annexe I), il est possible de l'évaluer grossièrement en mesurant la puissance de chauffage de la pompe fontaine. Le réfrigérateur conventionnel qui constitue le premier étage comprend la boîte à un degré, l'évaporateur et un échangeur continu coaxial en Cu-Ni très simple qui permet de refroidir une boîte à mélange classique à une température de 20 mK environ.

La figure 5 donne les résultats d'un grand nombre de mesures effectuées sur notre appareil. Les températures portées en ordonnée sont mesurées avec un thermomètre magnétique au CMN dans la

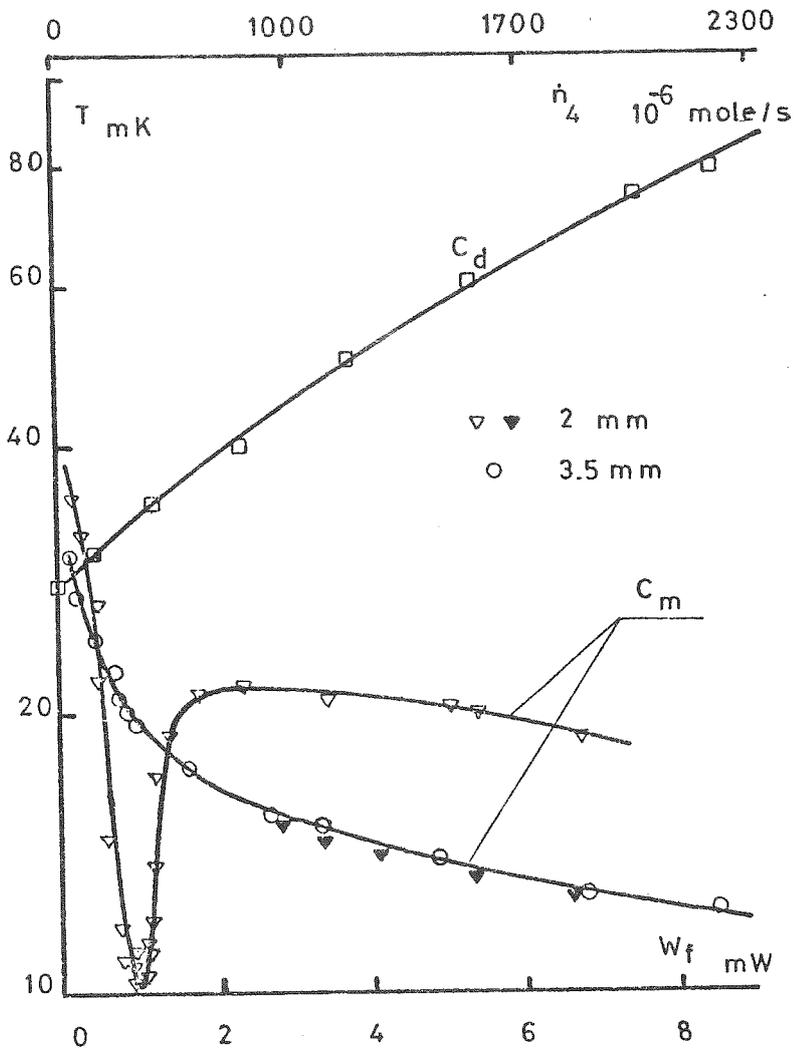


FIGURE 5

Températures de la chambre de mélange C_m et de la chambre de démixion C_d en fonction de la puissance de chauffage W_f de la pompe à effet fontaine et du débit correspondant estimé \dot{n}_4

boîte à mélange C_m et avec une résistance de carbone dans la boîte à démixion C_d . En abscisse, nous avons porté la puissance de chauffage de la pompe à effet fontaine et sur une autre échelle la correspondance estimée du débit d' ^4He . Les expériences ont été faites avec différentes configurations géométriques de capillaire et de boîtes à mélange et à démixion. Dans tous les cas, le capillaire était enroulé en hélice, sa longueur totale étant normalisée à 1 m et la distance entre les boîtes D et M étant d'environ 10 cm. Différents diamètres ont été essayés, de 1 à 4 mm ; dans certains cas, le diamètre était variable le long du capillaire, entre les deux boîtes D et M. Il est certain qu'à l'heure actuelle, aussi bien dans notre groupe que dans le groupe de Leiden, tous les phénomènes qui régissent le fonctionnement de ces appareils sont loin d'être clairs. Le nombre des paramètres entrant en jeu est considérable et certains aspects sont totalement ignorés, comme par exemple la façon dont se propagent les deux phases dans le capillaire. On peut cependant tirer quelques enseignements importants de ces expériences.

De façon générale, on observe trois types de comportements :

1) Capillaire de diamètre interne supérieur à 2 mm :

C'est le cas du fonctionnement correct. Les températures sont égales dans les deux boîtes lorsque l' ^4He ne circule pas. Si l'on fait circuler l' ^4He , la boîte à démixion se réchauffe tandis que la boîte à mélange se refroidit de façon monotone. Le diamètre du capillaire, à condition d'être supérieur à 2 mm n'influe pas de façon sensible sur les performances de l'appareil.

2) Capillaire de diamètre inférieur à 2 mm :

Dans ce cas, il ne se produit aucun refroidissement dans la boîte à mélange. Selon toute vraisemblance l' ^3He n'arrive pas à remonter le long du tube et il ne se produit aucune dilution dans la boîte à mélange. Le système est bloqué.

3) Dans l'une des expériences avec un capillaire de diamètre égal à 2 mm, la température de la boîte à mélange passe par un minimum très pointu. Au-delà d'une certaine valeur critique de \dot{n}_4 la boîte se réchauffe à nouveau et l'on se retrouve probablement dans le cas 2.

ANALYSE DU FONCTIONNEMENT DU REFRIGERATEUR :

A) Bilan molaire et puissance frigorifique.

Supposons que, à l'état stationnaire, l'équilibre thermodynamique soit réalisé en tout point du capillaire et des deux boîtes à mélange et à démixion. Cela signifie que l'équilibre des concentrations est réalisé aussi bien dans la phase diluée qui descend dans le capillaire que dans la phase concentrée qui monte, et que ces concentrations correspondent à celles de la courbe de séparation de phases. Appelons \dot{n}_d et \dot{n}_c le débit molaire des phases diluées et concentrées et X_d et X_c leur fraction molaire d' ^3He .

La conservation de la quantité d' ^4He permet d'écrire :

$$\dot{n}_4 = (1 - X_d)\dot{n}_d - (1 - X_c)\dot{n}_c$$

Et la conservation de la quantité d' ^3He donne :

$$X_d \dot{n}_d = X_c \dot{n}_c$$

On obtient alors :

$$\dot{n}_d = \frac{X_c}{(X_c - X_d)} \dot{n}_4 \quad \text{et} \quad \dot{n}_c = \frac{X_d}{(X_c - X_d)} \dot{n}_4$$

Pour des températures inférieures à 0,1 K, on peut considérer que $X_c = 1$ (voir courbe de séparation de phases). La phase montante peut être alors considérée comme de l' ^3He pur et

$$\dot{n}_c = \frac{X_d}{1 - X_d} \dot{n}_4 = \dot{n}_3$$

On peut donc parler aux très basses températures pour un réfrigérateur à circulation d' ^4He d'un débit d' ^3He équivalent.

La puissance frigorifique de la boîte à mélange s'écrit :

$$\begin{aligned} \dot{Q}_m &= H_d T_d^2 \dot{n}_d - H_c T_c^2 \dot{n}_c \\ &= H_d T_d^2 \frac{\dot{n}_4}{1 - X_d} - H_c T_c^2 \dot{n}_4 \frac{X_d}{1 - X_d} \end{aligned}$$

$H_d T_d^2$ est l'enthalpie molaire de la phase diluée à la température T_d et $H_c T_c^2$ est l'enthalpie molaire de la phase concentrée à la température T_c . T_d est en fait la température T_m de la boîte à mélange et T_c est la température de la phase concentrée lorsqu'elle entre dans la boîte à mélange.

Faisons apparaître le débit équivalent en ^3He et les enthalpies par mole d' ^3He :

$$\frac{Q_m}{\dot{n}_4} \frac{1 - X_d}{X_d} = \frac{H_d}{X_d} T_m^2 - H_c T_c^2$$

Le terme $\frac{H_d}{X_d}$ est l'enthalpie de la phase diluée par mole d' ^3He (H_{d3}) et H_c est l'enthalpie de la phase concentrée également par mole d' ^3He puisqu'elle est constituée d' ^3He pratiquement pur (H_{c3}).

On obtient alors :

$$\frac{Q_m}{\dot{n}_3} = H_{d3} T_m^2 - H_{c3} T_c^2$$

On obtient effectivement la même puissance frigorifique que celle d'un réfrigérateur conventionnel ⁽⁷⁾⁽⁸⁾ avec un débit équivalent donné par $\dot{n}_3 = \dot{n}_4 \frac{1 - X_d}{X_d}$, correspondant au rapport des concentrations.

B) Echange de chaleur dans le capillaire.

Les phénomènes qui se produisent dans le capillaire sont encore très mal connus. Un seul point doit être admis : une certaine quantité de phase diluée descend par différence de densité alors qu'une quantité correspondante de phase concentrée remonte en échangeant de la chaleur avec la phase à contre-courant. Ce processus est nécessaire pour expliquer la production continue de froid dans la boîte à mélange. Cependant aucune hypothèse n'est faite sur la façon dont se propagent les deux phases. On peut imaginer différents mécanismes mais les modèles sont toujours très complexes car les paramètres sont nombreux. La phase concentrée peut par exemple remonter sous forme de gouttes dans la phase diluée qui occuperait le reste du volume du capillaire. Le contraire est également possible, la phase diluée descendant alors sous forme de gouttes. On peut même imaginer que l' ^3He forme une colonne

centrale, de diamètre mal défini, la phase diluée occupant l'espace annulaire restant (voir en annexe II les simulations à température ambiante). Bien sûr, ces différentes possibilités conduisent à des fonctionnements différents, surtout en ce qui concerne l'échange. Nous allons simplement essayer dans ce qui suit d'éclaircir un peu quelques points particuliers.

1) Blocage de la circulation d'³He par tension de surface :

Le fait que la circulation d'³He se bloque lorsque le diamètre du capillaire est inférieur à 2 mm, suggère que l'³He est maintenu par tension superficielle à l'orifice du tube. Nous avons vérifié que ce blocage se produit uniquement au niveau de l'orifice inférieur du capillaire, dans la boîte à démixion, en faisant varier le diamètre de l'extrémité inférieure uniquement (1 - 1,5 - 2 et 3 mm), le reste du capillaire ayant toujours un diamètre de 2 mm. Le blocage se produit pour n'importe quelle valeur du débit \dot{n}_4 lorsque l'extrémité inférieure a un diamètre inférieur à 2 mm. D'autre part, cet effet de blocage paraît être insensible à la température de la boîte à démixion puisque le fait de la chauffer par exemple de 40 à 80 mK ne permet pas de rétablir la circulation.

Ecrivons que le poids apparent d'une goutte d'³He équilibré la force de tension de surface pour un tube de 2 mm de diamètre.

$$(D - d)Vg = \alpha p$$

D et d sont les masses volumiques respectives de la phase diluée et concentrée, V est le volume de la goutte ; p son périmètre et g l'accélération de la pesanteur. On trouve un coefficient de tension de surface $\alpha = 0,20 \text{ erg/cm}^2$. Des mesures systématiques faites par ailleurs et selon une méthode différente⁽⁹⁾ donnent une valeur de α pour l'³He, tendant vers une constante aux plus basses températures : $\alpha = 0,16 \text{ erg/cm}^2$. Ceci renforce un peu l'hypothèse selon laquelle l'³He pourrait circuler sous forme de gouttes à contre-courant dans la phase diluée.

2) Blocage de la circulation d'³He par viscosité :

Si l'on admet que ce sont effectivement des gouttes d'³He qui remontent et que le reste du volume du capillaire est rempli de phase diluée qui descend, la loi de Stokes donne la vitesse de sédimentation libre des gouttes :

$$6\pi a \eta V_0 = mg(1 - \frac{d}{D}) \sin \theta$$

a est le rayon de la goutte, η la viscosité du milieu (phase diluée : $\eta = \frac{0,5 \times 10^{-7}}{T^2}$). V_0 la vitesse relative, m la masse de la goutte, d et D les densités respectives des deux phases, le capillaire étant enroulé en hélice, l'angle θ est la pente de l'hélice ($\theta = 3^\circ$ dans notre cas). Considérons la courbe qui comporte un minimum sur la figure 5. Le blocage se produit pour un débit d'⁴He de 400 μ mole/s. Dans un capillaire de 2 mm cela correspond à une vitesse $V_0 = 0,41$ cm/s. A une température de 10 mK (celle où se produit le blocage), on obtient un diamètre critique des gouttes précisément égal à 2 mm. Il semble donc plausible que dans le cas de cette expérience le blocage soit dû à la viscosité de la phase diluée qui dans la partie froide du tube, c'est-à-dire près de la boîte à mélange, empêche les gouttes d'³He de remonter à partir d'un certain débit.

3) Mécanisme d'échange de chaleur dans le capillaire :

Deux types de mécanismes d'échange peuvent être envisagés :

- échange par "évaporation" :

Par suite du gradient thermique le long du capillaire, la phase diluée qui se déplaçait à pression osmotique constante voit sa concentration en ³He augmenter lorsqu'elle descend vers la boîte à démixion. Comme la masse totale d'³He se conserve, la phase diluée emprunte l'³He dont elle a besoin à la phase concentrée. Cette évaporation partielle des gouttes d'³He est responsable en partie de leur refroidissement. Cependant, le calcul montre que par exemple entre 50 et 10 mK seulement 2,5 % de la masse d'une goutte est évaporée, ce qui conduit à une quantité de chaleur échangée de l'ordre de quelques pour cent seulement de la chaleur qu'il faudrait enlever à la goutte pour un échange parfait.

- échange direct à l'interface des deux phases :

C'est probablement le processus d'échange le plus efficace.

a) Résistance de Kapitza entre les deux phases :

Le paramètre important dans ce mode d'échange est la résistance thermique entre les deux milieux. Si l'on admet que l'échange se fait par phonons et que l'on peut donc utiliser la théorie d'adaptation des impédances acoustiques de Kalatnikov :

$$\frac{dQ}{Sdt} = \frac{2\pi k_B^4}{h^3} \left(\frac{\pi^4}{15}\right) \frac{\Gamma_1}{C_{11}^2} (T_1^4 - T_2^4)$$

(pour l'explication détaillée de cette relation, voir référence 10)

on trouve avec une vitesse du son à basse température dans l'³He de l'ordre de $C_{11} = 240$ m/s et dans la phase diluée de $C_{22} = 190$ m/s une valeur du paramètre Γ_1 (voir réf. 10) = 0,4. On obtient alors une valeur du coefficient de résistivité thermique de Kapitza :

$$\frac{S\Delta T}{Q} = R_K T^3 = 4 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ K}^4 / \text{W}$$

Ceci est une valeur 10^3 fois plus faible que les valeurs habituelles entre l'hélium et un solide.

b) Calcul de la température minimale :

La valeur de la résistance de Kapitza que l'on vient de trouver permet d'effectuer le calcul de l'échange de chaleur dans l'hypothèse où ce sont des gouttes d'³He qui remontent dans la phase diluée, par analogie avec le calcul qui est fait pour un échangeur conventionnel⁽¹¹⁾. Dans ce qui suit, on négligera les effets de réchauffement par viscosité ou par conduction. Considérons une goutte de phase concentrée de rayon r , de surface S_c contenant N_c moles d'³He. L'enthalpie de cette goutte qui se trouve à une température T_c s'écrit :

$$H_c = \frac{1}{2} N_c \Gamma T_c^2$$

Si l'on suppose que l'échange est parfait, la chaleur dégagée par la phase concentrée doit se retrouver intégralement dans la phase diluée dont la température est T_d et dont l'enthalpie s'écrit :

$$H_d = \frac{1}{2} N_d \gamma T_d^2$$

où γ est le coefficient d'enthalpie par mole d' ^3He et N_d le nombre de moles d' ^3He . Donc $H_c = H_d$. Comme la quantité d' ^3He dans le système est conservative, le nombre de moles d' ^3He qui monte dans le capillaire est nécessairement égal au nombre de moles qui descendent sous forme diluée :

$$N_d = N_c$$

et par suite

$$\Gamma T_c^2 = \gamma T_d^2 \quad (1)$$

Au cours de sa progression dans le capillaire, la température de la goutte évolue en fonction du temps.

La quantité de chaleur échangée par unité de temps avec la phase diluée s'écrit :

$$N_c \Gamma T_c \frac{dT_c(t)}{dt} = \alpha S_c (T_c^4(t) - T_d^4(t)) \quad (2)$$

où

$$\alpha = \frac{1}{4R_K T^3}$$

En remplaçant T_d par sa valeur tirée de la relation (1) on a :

$$N_c \Gamma T_c \frac{dT_c(t)}{dt} = \alpha S_c T_c^4(t) \left[1 - \left(\frac{\Gamma}{\gamma} \right)^2 \right]$$

or

$$\left(\frac{\Gamma}{\gamma} \right)^2 = 2 \times 10^{-2} \ll 1$$

donc

$$N_c \Gamma \frac{dT_c(t)}{T_c^3(t)} = \alpha S_c dt$$

En intégrant :

$$-\frac{1}{2} \frac{N_c \Gamma}{\alpha S_c} [T_c^{-2}(t) - T_c^{-2}(0)] = t$$

Soit $t = 0$, l'instant où la goutte pénètre dans la boîte à mélange avec une température environ trois fois supérieure à la température de celle-ci :

$$T_c(0) = 3T_{Mc}$$

et - t, un instant quelconque où elle se trouve dans le capillaire à la température T_c . On obtient :

$$-\frac{1}{2} \frac{N_c \Gamma}{\alpha S_c} \left[\frac{1}{9T_{Mc}^2} - \frac{1}{T_c(t)^2} \right] = -t$$

donc

$$T_c(t)^2 = \frac{1}{\frac{1}{9T_{Mc}^2} - \frac{2\alpha S_c}{N_c \Gamma} t}$$

ou encore :

$$\frac{T_c(t)}{3T_{Mc}} = \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{t}{\tau}}}$$

avec

$$\frac{1}{\tau} = 18 \frac{\alpha S_c}{N_c \Gamma} T_{Mc}^2$$

Cette relation traduit le fait que, partant de la boîte à démixion, à une température pratiquement infinie devant T_{Mc} , la goutte aura besoin d'un temps τ pour atteindre la température $3 T_{Mc}$ à l'entrée de la boîte à mélange. τ est donc le temps caractéristique de l'échange. C'est le temps pendant lequel la goutte doit séjourner dans le capillaire pour que la température de la boîte à mélange soit T_{Mc} . Donc :

$$T_{Mc}^2 = \frac{1}{18} \frac{\Gamma}{\alpha} \frac{N_c}{S_c \tau} \quad (3)$$

Pour des gouttes sphériques de rayon r avec de 1^3He dont le volume molaire est V_c , on obtient :

$$T_{Mc}^2 = \frac{1}{54} \frac{\Gamma}{\alpha} \frac{r}{V_c \tau} \quad (4)$$

et pour une valeur de $R_K T^3 = \frac{1}{4\alpha} = 4 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{K}^4/\text{W}$ et des gouttes d' 1^3He de 2 mm de diamètre séjournant dans le capillaire pendant 30 s (temps donné par la loi de Stokes), on trouve une température :

$$T_{Mc} = 3,6 \text{ mK}$$

c) Notion de surface d'échange équivalente :

Le calcul analogue de T_{Mc} effectué dans le cas du réfrigérateur conventionnel donne ⁽¹¹⁾ :

$$T_{Mc}^2 = \frac{1}{18} \frac{\Gamma}{\alpha} \frac{\dot{n}_3}{\sigma}$$

où \dot{n}_3 est le débit d' 1^3He , σ la surface d'échange dans l'échangeur de

Chaleur.

La surface d'échange équivalente dans le cas d'un réfrigérateur à circulation d'⁴He peut donc s'écrire :

$$\frac{\dot{n}_3}{\sigma} = \frac{N_c}{S_c \tau} = \frac{r}{3V_c \tau}$$

$$\sigma = S_c \tau \frac{\dot{n}_3}{N_c}$$

Le rapport $\frac{\dot{n}_3}{N_c}$ exprime le nombre de gouttes traversant une section du capillaire par unité de temps. On retrouve donc un résultat qui se comprend bien intuitivement : la surface d'échange équivalente est la surface totale de toutes les gouttes se trouvant à un instant donné dans le capillaire.

La conséquence importante de ceci est que la température finale de la boîte à mélange est indépendante du débit puisque si celui-ci augmente, le nombre de gouttes augmente et la surface totale des gouttes aussi. Cela apparaît bien dans la relation (4) où le débit n'intervient pas et cela explique peut-être pourquoi dans les expériences aussi bien à Leiden qu'à Grenoble (voir figures 2 et 5), la température de M tend vers une limite aux grands débits. Notons que ce raisonnement est vrai si la phase concentrée circule sous forme de gouttes mais n'est pas vrai si on a une colonne continue.

C) Mesures de la puissance frigorifique - bilan des pertes.

Nous avons mesuré la puissance frigorifique de la boîte à mélange en la chauffant avec une résistance de constantan. Sur la figure 6, est portée la puissance de chauffage en fonction de la température T_m pour deux valeurs différentes du débit \dot{n}_4 . On peut voir qu'à puissance de chauffage égale, la température change peu lorsqu'on double le débit d'⁴He. On peut comparer ces données à la puissance frigorifique théorique équivalente obtenue à partir de celle d'un réfrigérateur conventionnel (voir plus haut) :

$$\dot{Q}_W + \dot{Q}_p = \frac{X_d}{1 - X_d} \dot{n}_4 (94 T_m^2 - 12 T_c^2) \text{ en W/S mole}$$

\dot{Q}_W est la puissance de chauffage que l'on applique à la boîte à

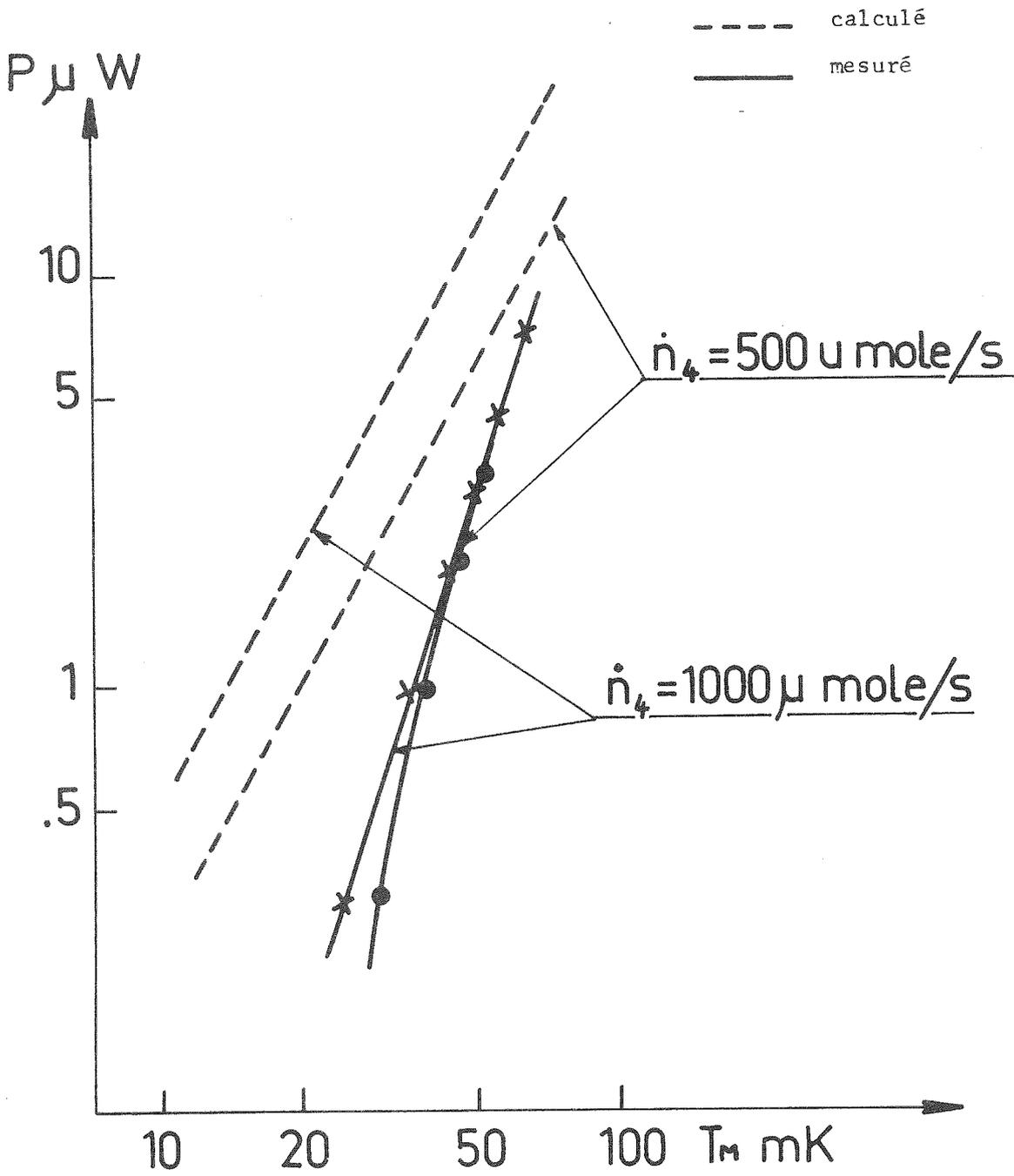


FIGURE 6

Puissance frigorifique mesurée et calculée en fonction de T_m pour deux valeurs de \dot{n}_4 avec un capillaire de 2 mm de diamètre

mélange et \dot{Q}_p sont les apports de chaleur parasites. \dot{Q}_p n'est pas connu mais on peut le considérer comme faible devant \dot{Q}_W . La température T_c de la phase concentrée qui entre dans la boîte à mélange est plus difficile à évaluer. Cependant, l'on sait que pour un réfrigérateur conventionnel le rapport $\frac{T_c}{T_m}$ est égal à 2,7 si la somme des charges thermiques est nulle et que ce rapport tend vers 1 lorsque ces charges thermiques deviennent importantes.

Si l'on prend l'hypothèse que $\dot{Q}_p \ll \dot{Q}_W$ et que $T_c = T_m$, on peut calculer la puissance frigorifique d'après la formule approchée :

$$\dot{Q}_f = \dot{Q}_W = \frac{Xd}{1 - Xd} \dot{n}_4 82 T_m^2$$

Sur la figure 6, les droites pointillées représentent la puissance frigorifique calculée de cette manière pour les mêmes débits en ^4He que pour les courbes mesurées. On voit que la capacité de la machine à produire du froid accuse un déficit important surtout aux basses températures.

Plusieurs hypothèses peuvent être avancées pour expliquer ce déficit :

- le débit d' ^4He n'est pas mesuré directement puisque la circulation se fait entièrement à basse température. Cependant, l'estimation de \dot{n}_4 est certainement relativement correcte (voir annexe 1).
- l' ^4He superfluide injecté dans la boîte à mélange séjourne peu de temps dans celle-ci et l'équilibre des concentrations n'a pas le temps de se faire entièrement.
- les apports de chaleur parasite sont trop importants.

Pour ce qui concerne les apports de chaleur parasites, nous allons essayer de les évaluer :

Hypothèse : $T_m = 10 \text{ mK}$, $\dot{n}_4 = 1000 \text{ } \mu\text{mole/s}$ et $T_D = 50 \text{ mK}$.

* Puissance frigorifique de la boîte à mélange : 5,7 ergs/s

* Conduction thermique le long du capillaire en tenant compte du tube lui-même (alliage de Cu-Ni), de la conduction des phases diluées et concentrés en proportion volumique de 6 %. On trouve un apport de chaleur dans C_m compris entre 0,05 et 0,08 erg/s.

* Energie cinétique de l' ^4He injecté dans C_m :

$$\dot{Q} = \frac{1}{2} \dot{m}_4 v_4^2$$

C'est une source de pertes importante : on trouve 0,18 erg/s.

* Enthalpie de l'⁴He superfluide injecté dans C_m :

$$\dot{Q} = 2 \times 10^{-2} \dot{n}_4 T^4$$

pour la partie normale, la partie superfluide étant sans entropie. On trouve 2×10^{-6} erg/s.

* Lorsqu'une goutte d'³He rejoint l'³He de la boîte à mélange, elle libère son énergie de tension de surface qui est dissipée en chaleur. Pour $\alpha = 0,2$ erg/cm² et un débit de 1000 μ mole/s d'⁴He et donc un débit d'³He de 60 μ mole/s on trouve que 0,5 bulles de 2 mm de diamètre pénètrent chaque seconde dans C_m. Elles libèrent alors une énergie de 7×10^{-3} erg/s.

* Lorsque les gouttes d'³He remontent dans le capillaire, elles perdent de l'énergie potentielle dont une partie se retrouve en énergie cinétique dans la boîte à mélange, l'autre partie étant dissipée par frottement visqueux contre la phase diluée. Une fraction de la chaleur dégagée par frottement visqueux est cédée à la phase diluée par le mécanisme d'échange de chaleur, le reste étant transporté dans la boîte à mélange. On peut évaluer l'énergie maximum qui serait dissipée dans C_m si l'échange était très mauvais et que rien n'était cédé à la phase diluée :

$$\dot{Q}_{\text{potentielle}} = m(D - d)gh$$

Pour une hauteur des spires de 5 cm et un débit d'³He de 60 μ mole/s on trouve :

$$\dot{Q}_p = 0,3 \text{ erg/s}$$

L'énergie cinétique des gouttes qui pénètrent dans la boîte à mélange calculée avec la vitesse donnée par la loi de Stokes donne :

$$\dot{Q}_c = \frac{1}{2} m_c V_c^2 = 3 \times 10^{-5} \text{ erg/s}$$

On peut donc constater que les pertes intrinsèques au système qui sont en tout de l'ordre de 0,5 erg/s sont faibles comparées à la puissance

frigorigique théorique du système.

Pour expliquer la faible puissance frigorigique mesurée, il faut donc invoquer ou une circulation d' ^4He trop faible, ou l'existence d'un apport de chaleur inconnu, ou la dilution incomplète de l' ^3He dans la boîte à mélange due à la grande vitesse de l' ^4He ce qui revient à avoir un débit effectif d' ^3He plus faible que celui que l'on aurait à l'équilibre.

CONCLUSION :

Ces quelques évaluations montrent bien comme sont complexes et mal compris les processus qui régissent le fonctionnement de ce type de réfrigérateur. Certains paramètres sont difficiles à contrôler. Un travail systématique important reste à faire et pourrait éclairer certains points, en particulier, la cinétique de la dilution dans la boîte à mélange et le mécanisme d'échange dans le capillaire. Certains antagonismes apparaissent déjà et ils peuvent constituer une limitation intrinsèque des performances de ces appareils. Par exemple, pour augmenter la surface d'échange, il faudrait diminuer le diamètre des gouttes à débit constant. Mais un processus qui fabriquerait de petites gouttes dépenserait beaucoup d'énergie sous forme de tension de surface, et la vitesse de sédimentation libre de petites gouttes serait tellement faible que le débit serait vite limité :

Un autre problème important est le fait que, contrairement à ce qui se passe pour un réfrigérateur conventionnel, on ne peut pas imposer n'importe quel débit puisque c'est la gravité qui est responsable du mouvement des fluides. Pour avoir une meilleure connaissance sur ce qui se passe dans le capillaire, on aurait pu faire des mesures complexes du type RMN sur l' ^3He ou des mesures de susceptibilité par SQUID le long du tube. Ceci aurait permis de savoir si le transfert se fait effectivement par bulles et éventuellement de mesurer leur vitesse.

Finalement, notre appareil qui n'est qu'une version simpliste pour des essais préliminaires permet tout de même d'atteindre une température de l'ordre de 10 mK comme l'appareil de Leiden. La différence avec la température déduite de la relation (3) provient soit d'un apport de chaleur important mais inconnu, ce qui semble confirmé par les mesures de puissance frigorigique, soit du fait

que le mécanisme d'échange ne correspond pas du tout au processus que nous avons décrit et qu'en particulier la théorie de la résistance de Kapitza n'est pas applicable à ce problème.

A N N E X E I

LES SUPERFUITES - LA POMPE A EFFET FONTAINE

Une superfuite est un milieu poreux dont la taille des pores est suffisamment petite pour freiner par viscosité les mouvements de la composante normale de l'He II alors que la composante superfluide circule d'autant mieux que sa vitesse critique est élevée dans une géométrie restreinte. Le potentiel chimique partiel μ est constant dans une superfuite ce qui revient à dire qu'un gradient de température donne naissance à un gradient de pression⁽¹³⁾ :

$$\text{grad } \mu = \frac{1}{\rho} \text{ grad } P - S \text{ grad } T$$

C'est l'effet fontaine.

Nos superfuites sont constituées d'un tube en Cu-Ni dans lequel on a fortement compacté (75 %) une poudre d' Al_2O_3 très fine. La granulométrie moyenne de cette poudre est de 100 Å. Dans le cas de notre réfrigération à circulation d' ^4He , les différentes superfuites ont des rôles spécifiques selon leur emplacement (figure 4). Cependant, deux propriétés importantes des superfuites sont utilisées dans tous les cas :

- faible conductivité thermique à basses températures même lorsqu'elles sont remplies d' ^4He superfluide⁽¹⁴⁾,
- possibilité de transporter des débits importants d'He superfluide à cause de la vitesse critique élevée dans les innombrables et très étroits canaux en parallèle que constituent les pores.

Il y a dans notre réfrigérateur trois superfuites différentes :

1) Superfuite d'injection S_1 :

Elle permet d'injecter l' ^4He dans la boîte à mélange. Elle joue le rôle de filtre dans le sens où elle ne laisse passer que la partie superfluide sans entropie de l'He II et limite donc les entrées de chaleur dans la boîte à mélange.

Elle limite aussi les entrées de chaleur par sa faible conduction thermique comparée à celle d'un simple capillaire rempli d'He II.

2) Superfuite de démixion S_d :

C'est elle qui est responsable de la séparation de l' ^4He et de l' ^3He dans la chambre à démixion. Elle joue donc le rôle de filtre mais elle joue également le rôle de transporteur d'He vers la pompe fontaine qui se trouve dans une partie plus chaude de l'appareil (boîte à un degré). Il faut signaler à cet effet qu'une simple fissure dans le milieu poreux rompt la continuité des canaux et diminue considérablement les possibilités de transport du fluide en réduisant à des valeurs très faibles le débit d' ^4He . Pour ce qui concerne la démixion, nous avons fait des mesures de concentration de l' ^3He résiduel qui éventuellement peut circuler avec l' ^4He . Nous avons trouvé des concentrations en ^3He inférieures à 40 ppm ce qui constitue la limite de détection de l'appareil utilisé (Analyseur de gaz Veeco SPI 10). D'autre part, nous n'avons jamais constaté de bouchage des pores par les atomes d' ^3He , contrairement à ce qui se passe dans la machine de Leiden où la poudre utilisée est plus grosse (1000 Å).

3) Pompe à effet fontaine :

Ce n'est que le prolongement de S_D , d'un côté thermalisé sur la boîte à un degré, de l'autre côté muni d'une résistance de chauffage et d'une résistance de mesure de température (figure 7). Un capillaire fait la liaison entre la pompe et la superfuite d'injection et un manomètre permet de mesurer la pression fontaine à la température ambiante. Lorsqu'on chauffe le poral de chauffage de 1 à 2,17 K selon le débit que l'on veut, la pression créée par l'effet fontaine donne lieu à une circulation du superfluide vers le point chaud. L'hélium superfluide passe alors à travers le capillaire à une vitesse largement supérieure à la vitesse critique avec formation de vortex et entraînement de la phase normale. Il est ensuite réinjecté dans la superfuite S_i après rethermalisation dans le poral à 1 K.

Ce type de pompe appelé pompe à vortex a été étudié en détail par STAAS⁽¹⁵⁾. Dans le cas de notre réfrigérateur, il suffit pour que l' ^4He circule que le gradient de pression fourni par la pompe soit supérieur à la différence de pression osmotique entre les deux boîtes C_d et C_m . Aux températures où nous travaillons cette différence

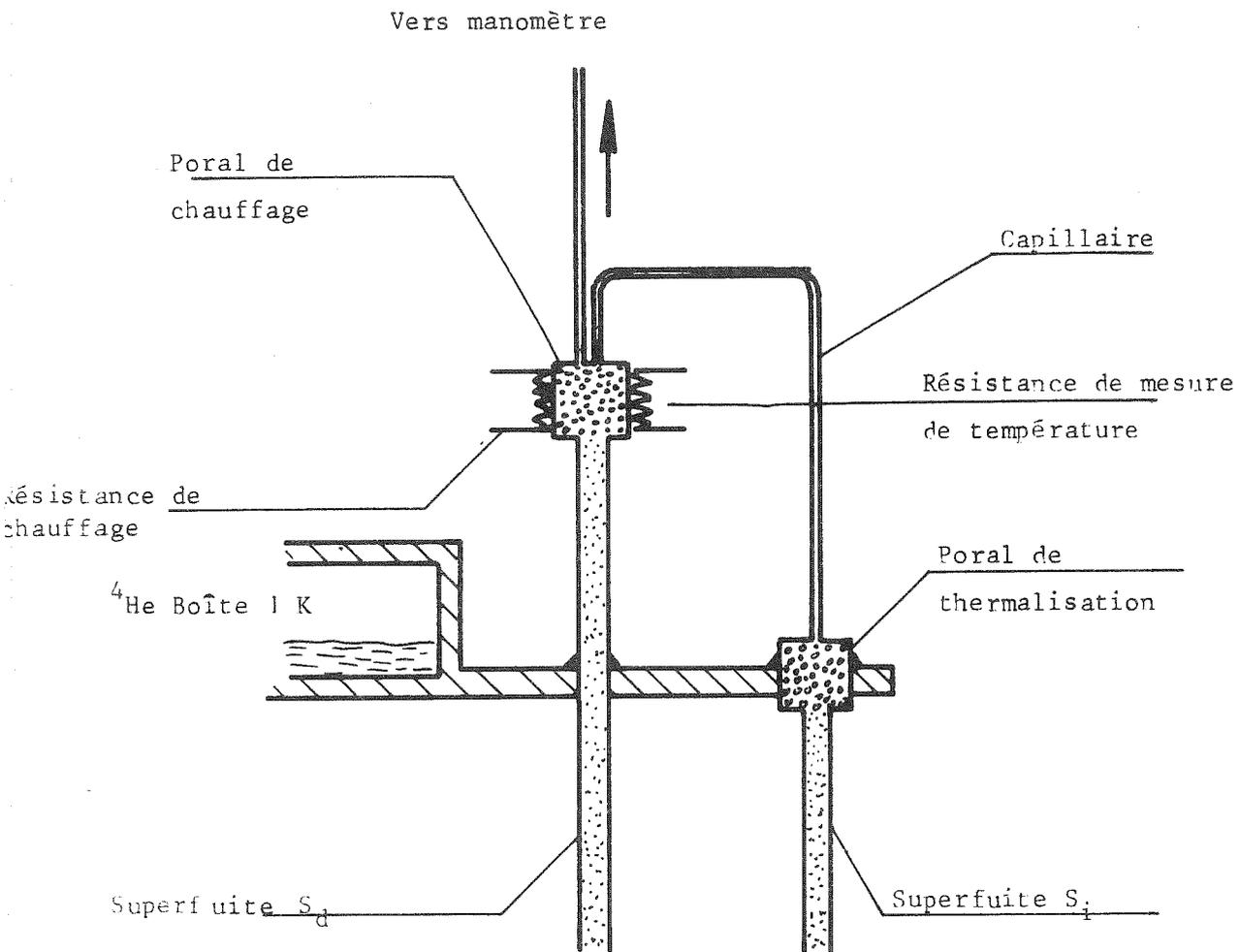


FIGURE 7

SCHEMA DE LA POMPE A EFFET FONTAINE

de pression osmotique est de quelques dizaines de torr alors que la pression fontaine peut atteindre plusieurs centaines de torr vers le point λ .

Sur la figure 8, nous avons porté les résultats de mesures faites avec une superfuite utilisée en pompe fontaine dans un cryostat séparé. Cette superfuite est faite de poudre d' Al_2O_3 de granulométrie 100 Å compactée dans un capillaire en Cu-Ni de 1,8 mm de diamètre intérieur et de 25 mm de long. La figure 8 donne le débit mesuré avec un débitmètre à la température ambiante en fonction de la température et de la puissance de chauffage de l'une des extrémités de la superfuite, l'autre étant maintenue à 1,3 K.

Dans le cas du réfrigérateur à circulation d' ^4He , nous avons utilisé deux circuits différents pour la pompe fontaine :

- circuit où le capillaire remonte à la température ambiante. L' ^4He est alors vaporisé, passe dans un débitmètre, est réinjecté dans le cryostat et recondensé sur la boîte à 1 K dans un échangeur de chaleur. Dans ce cas, le débit maximum est de l'ordre de 500 $\mu\text{mole/s}$.
- circuit entièrement à basses températures (comme sur figure 4) sans possibilité de mesurer le débit. Nous avons alors vérifié que pour $\dot{n}_4 < 500 \mu\text{mole/s}$, dans les deux circuits, pour une puissance de chauffage donnée, la température du poral de chauffage est la même, la pression d'injection est la même et que la boîte à démixion se réchauffe de la même valeur. Cela veut probablement dire que les débits sont équivalents et nous avons extrapolé les courbes de faibles débits obtenues avec le premier circuit pour estimer les débits dans le deuxième cas. On obtient alors un débit maximum d'environ 3000 $\mu\text{mole/s}$.

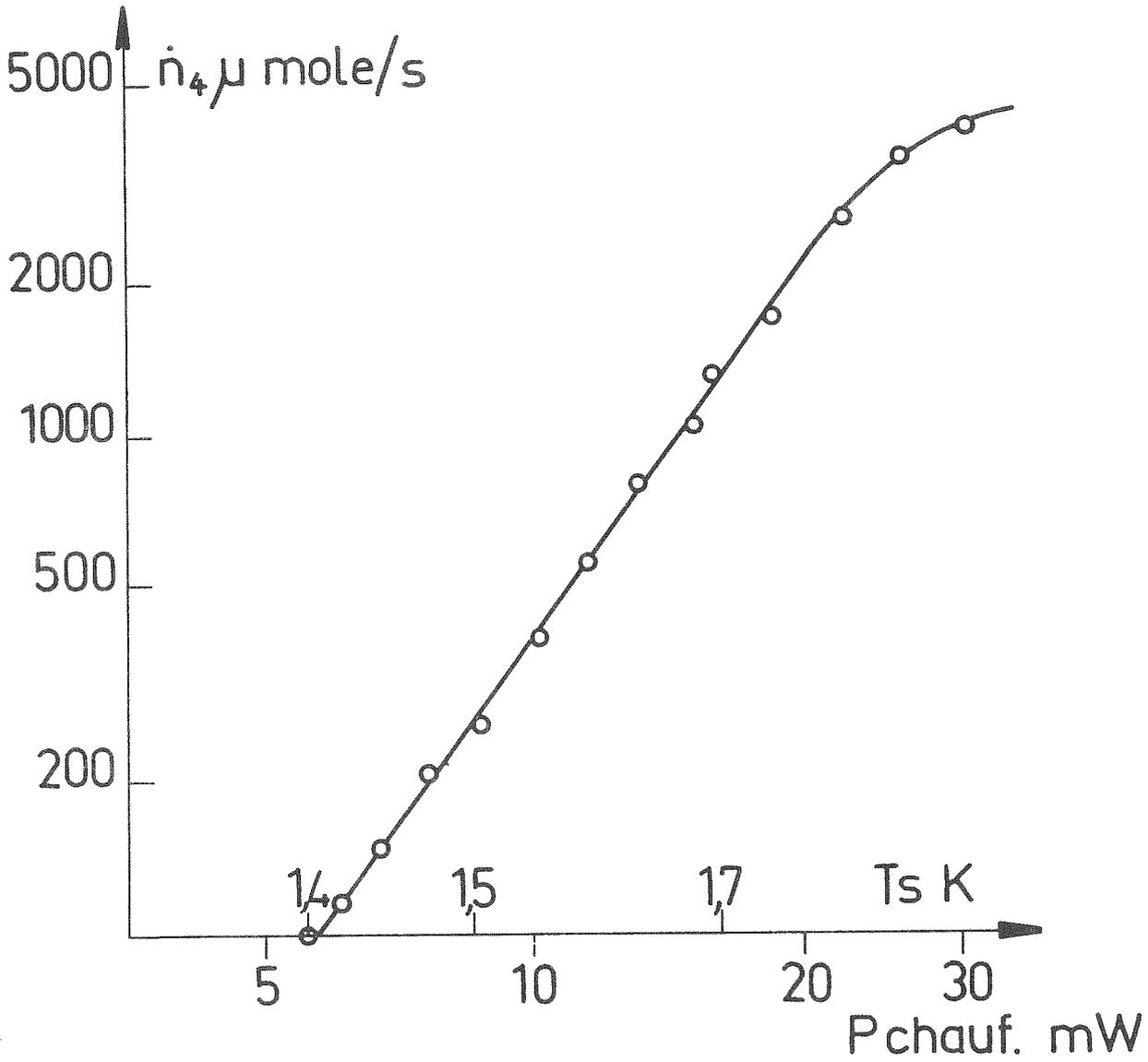


FIGURE 8

Débit de ^4He de la pompe à effet fontaine en fonction de la puissance et de la température de chauffage

A N N E X E II

SIMULATION DE CIRCULATION DIPHASIQUE A TEMPERATURE AMBIANTE

Dans le but d'aider un peu la compréhension du processus d'échange de chaleur dans un réfrigérateur à dilution à circulation d' ^4He , nous avons réalisé une maquette fonctionnant à température ambiante avec deux liquides conventionnels. La difficulté pour ce genre d'expérience est évidemment de trouver des liquides dont les propriétés qui nous intéressent ressemblent le plus à celles des phases concentrées et diluées de l'hélium.

Ces propriétés sont essentiellement les suivantes :

- rapport de densité comparable au rapport de densité phase concentrée/phase diluée,
- rapport de tension de surface comparable également,
- non miscibilité des deux liquides (il est impensable de trouver en plus des liquides ayant une miscibilité partielle de 6 %),
- possibilité de les discerner visuellement l'un de l'autre (par exemple par coloration de l'un des liquides).

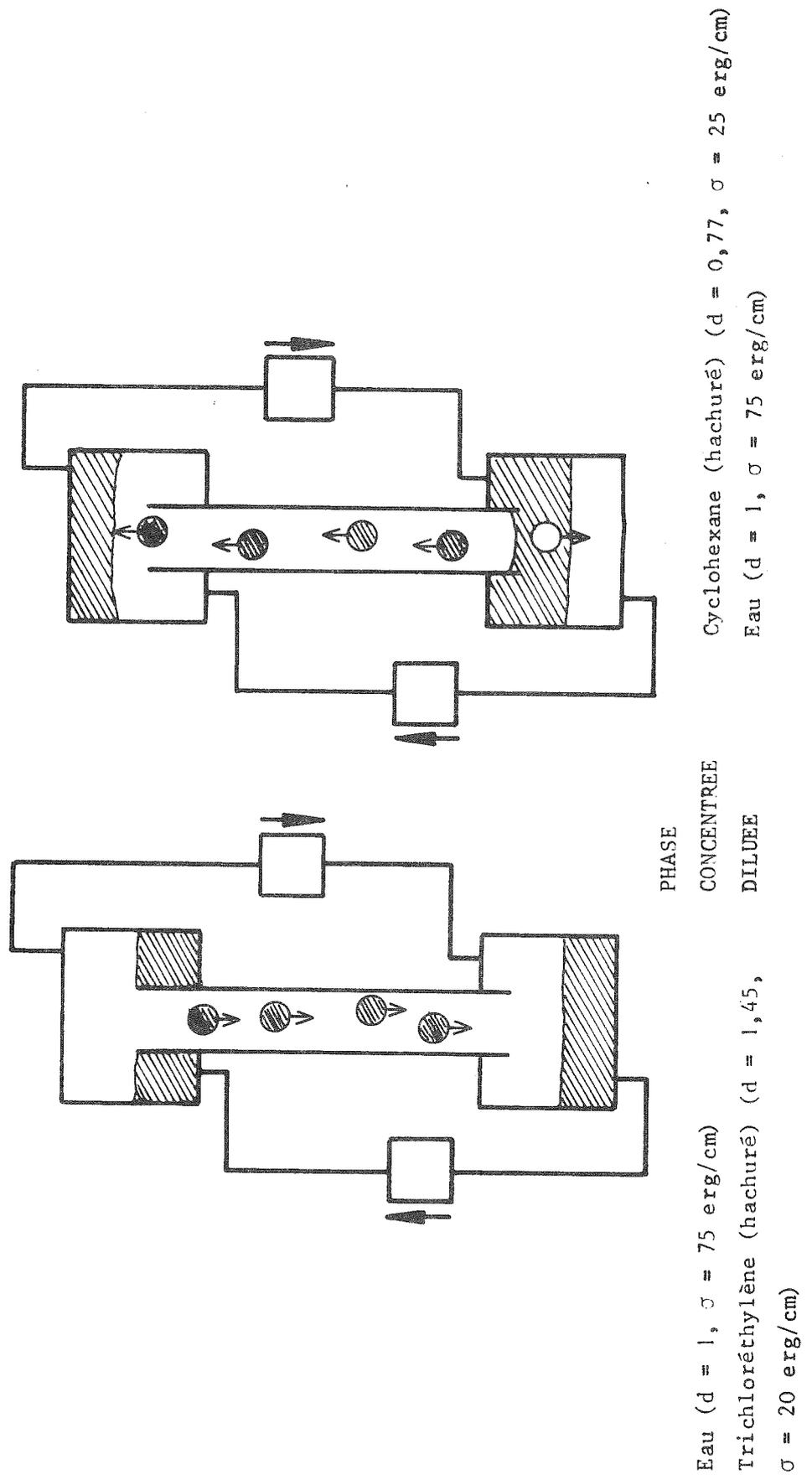
L'appareil que nous avons construit est en verre et est schématisé sur la figure 9. Dans le cas d'une miscibilité partielle d'un des constituants dans l'autre (réfrigérateur réel) on fait circuler uniquement un des constituants avec une pompe, l'autre étant transporté sous forme diluée dans le premier. Dans la maquette, où les deux liquides ne sont pas miscibles, on tourne la difficulté en faisant circuler chacun avec une pompe séparée.

Finalement, notre choix s'est porté sur deux groupes de liquides ce qui a permis de faire deux expériences contradictoires. Dans les deux cas, la miscibilité est nulle :

a) 1er groupe :

- trichloréthylène (densité $d = 1,45 \text{ g/cm}^3$, tension de surface $\sigma \approx 20 \text{ erg/cm}$) jouant le rôle de la phase diluée,
- eau colorée ($d = 1 \text{ g/cm}^3$, $\sigma = 75 \text{ erg/cm}$) jouant le rôle de la phase concentrée.

FIGURE 9
Simulation à la température ambiante d'un réfrigérateur à circulation d'⁴He



Ceci est le cas où le rapport des densités pour le modèle est comparable à celui du réfrigérateur réel. Par contre, le rapport de tension de surface est inversé. En effet, c'est la phase diluée qui a une plus forte tension de surface que la phase concentrée (voir réf. 9). Ce n'est donc pas avec ce groupe de liquides que l'on reproduit la réalité. Lorsque les pompes sont mises en route, les deux phases circulent bien à contre-courant dans le tube de liaison (équivalent du capillaire où se produit l'échange de chaleur). Le système est gravitationnellement stable et ce sont des gouttes de trichloréthylène qui se forment et qui descendent dans le tube alors que l'eau remplit le reste du volume.

b) 2ème groupe :

- cyclohexane ($d = 0,77 \text{ g/cm}^3$, $\sigma = 25 \text{ erg/cm}$) jouant le rôle de la phase concentrée,
- eau colorée ($d = 1 \text{ g/cm}^3$, $\sigma = 75 \text{ erg/cm}$) jouant le rôle de la phase diluée.

C'est le cas du réfrigérateur réel : le rapport de densité ainsi que le rapport de tension de surface correspondent à ceux de la réalité. Deux cas se présentent alors :

1°) lorsque le tube de liaison est gros (diamètre $> 15 \text{ mm}$), le cyclohexane remonte les parois du tube alors que l'eau redescend par le centre. C'est une situation gravitationnellement stable mais la surface de contact entre les deux phases est faible.

2°) lorsque le tube de liaison est plus étroit (diamètre $< 15 \text{ mm}$), le tube se remplit d'eau. Ce sont alors uniquement les forces de tension de surface à la base du tube qui empêchent la colonne d'eau (phase la plus lourde) de s'effondrer dans la boîte inférieure. Des gouttes de cyclohexane prennent alors naissance à la base du tube et remontent vers la boîte supérieure (voir figure 8).

Enfin, dans tous les cas, lorsque le tube est trop étroit (diamètre $< 10 \text{ mm}$), les forces de tensions de surface sont trop importantes et il n'y a plus aucune circulation stable.

CONCLUSION :

Nous avons pu mettre en évidence une circulation diphasique à contre-courant où l'un des constituants se déplace sous forme de gouttes. Ce processus qui était déjà pressenti dans le cas du

réfrigérateur à dilution à circulation d'⁴He semble donc réaliste. Apparemment c'est toujours la phase qui a la plus forte tension de surface qui remplit le capillaire, l'autre phase donnant naissance à un train de gouttes ce qui permet d'avoir une surface de contact importante.

Il est certain qu'il faut toujours faire très attention aux interprétations qui peuvent résulter de ce genre d'expérience. Cependant les problèmes soulevés par les machines à circulation d'⁴He sont tellement nombreux et difficiles à traduire par le calcul qu'une simulation simple comme celle qui vient d'être décrite constitue un réconfort moral non négligeable en permettant de concrétiser certaines idées.

REFERENCES

- 1 - K.W. TACONIS, P. DAS and R. de BRUYN OUBOTER, Proceedings 12th Int. Conf. of the Commission I of the Int. Inst. of Refrigeration, Madrid, Spain, p. 109 (1967).
- 2 - N.H. PENNING, K.W. TACONIS and R. de BRUYN OUBOTER, Physica 56 (1971) 171.
- 3 - N.H. PENNING, K.W. TACONIS and R. de BRUYN OUBOTER, Cryogenics 14 (1974) 53.
- 4 - T. SATOH, R.G. JURRIENS, K.W. TACONIS and R. de BRUYN OUBOTER, Physica 77B (1974) 523.
- 5 - G. FROSSATI, G. SCHUMACHER and D. THOULOZE, Proceedings L.T. 14, Otaniemi, Finland 1975, vol. 4, p. 13.
- 6 - F.A. STAAD and H.C.M. van der WAERDEN, Proceedings L.T. 14, Otaniemi, Finland 1975, vol. 4, p. 13.
- 7 - J.C. WHEATLEY, O.E. VILCHES and W.R. ABEL, Physics 4 (1968) 1.
- 8 - C. EBNER and D.O. EDWARDS, Physics Reports 2 (1970) 77.
- 9 - K.N. ZINOVYEVA, J. de Physique 31 C₃ (1970) 91.
- 10 - W.A. LITTLE, Can. J. Phys. 37 (1959) 334.
- 11 - B.S. NEGANOV, Rapport P. 13-4014, Dubna (1968).
- 12 - G. FROSSATI, H. GODFRIN, B. HEBRAL, G. SCHUMACHER and D. THOULOZE, à paraître au "Journal of the Phys. Society Japan", dans les Proceedings of the Symp. Phys. Ultralow Temp. (Hakoné, Japon 1977).
- 13 - voir par exemple "Properties of Liquid and Solid Helium", J. WILKS, Clarendon Press Oxford (1967) p. 39.
- 14 - J.N. HAASBROEK, Cryogenics (juin 1973) p. 373.
- 15 - F.A. STAAS and A.P. SEVERIJNS, Proceedings of ICEC 3, Pub. ILLIFFE Science and Techn. (G.B.) Berlin (1970) p. 320.

A N N E X E I I I

La publication qui fait l'objet de cette annexe a été présentée à la Conférence Internationale sur la Physique de Basses Températures à Otaniemi en Finlande en août 1975. Elle est publiée aux :

"Proceedings of the 14th Int. Conf. on L.T.P. (LT 14, 1975), North-Holland Publishing Compagny, Amsterdam ".

A DOUBLE He^3 AND He^4 CIRCULATING DILUTION REFRIGERATOR

G. Frossati, G. Schumacher and D. Thoulouze

Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, B.P.166
Centre de Tri, 38042 Grenoble-Cedex, France.

The high thermal resistances between a solid and a liquid makes the conventional heat exchangers in He^3 - He^4 dilution refrigerators rather inefficient at very low temperatures. To improve the heat exchange per unit surface, thin metal¹ or plastic plates² have been used. It has also been suggested³ to go to still thinner plates, with a thickness comparable to the wavelength of the dominant acoustical phonons, to obtain phonon tunnelling. The best way to overcome the difficulty seems to suppress the wall separating both phases. This has been realized in Leiden's group⁴ with a circulating He^4 dilution refrigerator.

We present here an extrapolation of their refrigerator where He^3 and He^4 are circulated (fig. 1). It consists of two chambers connected by a tube (X), the He^3 mixing into the He^4 in the upper one (C_m) with absorption of heat, and demixing in the lower one (C_d) with production of heat. The circulation of both phases in the tube is due to the density difference. The He^4 is injected in C_m through a superleak S_i and leaves C_d through another superleak S_d . In the Leiden experiment, the demixing chamber is cooled by a He^3 refrigerator. In our apparatus, the demixing chamber is also the mixing chamber of a classical dilution refrigerator, thus avoiding another wall separating both circuits. The first stage consists of a coaxial tube exchanger (H) and reaches a minimum temperature of 20 mK. The circulation of He^4 is obtained with a thermomechanical pump. He^4 supply can be assured by either removing it from C_d or from the still (E), without appreciable difference.

Different sizes of tube X which are expected to determine the heat exchange have been tried. The minimum stable temperature T_m in the upper mixing chamber, for different diameters and a standard length of 100 cm, are represented in fig. 2

as a function of the heating power W_f on the resistance R of the thermomechanical pump. The corresponding values of the He^4 flow rates (\dot{n}_4) have been roughly estimated by measuring it at room temperature. Also represented is the temperature of C_d . Three different behaviours may be distinguished according to the diameter of the tube :

- for 1 and 1.5 mm i.d., the He^3 cannot flow from C_d to C_m for any value of \dot{n}_4 . This was also observed in Leiden for diameters less than 1.8 mm.

- by increasing the diameter, C_m cools regularly with increasing He^4 flow rates, almost independently of the tube diameter, 2 mm or 3.5 mm.

- However in one experiment with 2 mm i.d. a steep decrease of T_m was observed for a critical range of \dot{n}_4 . For larger values it appeared that the He^3 did not circulate any more and C_m heated up after a short single cycle.

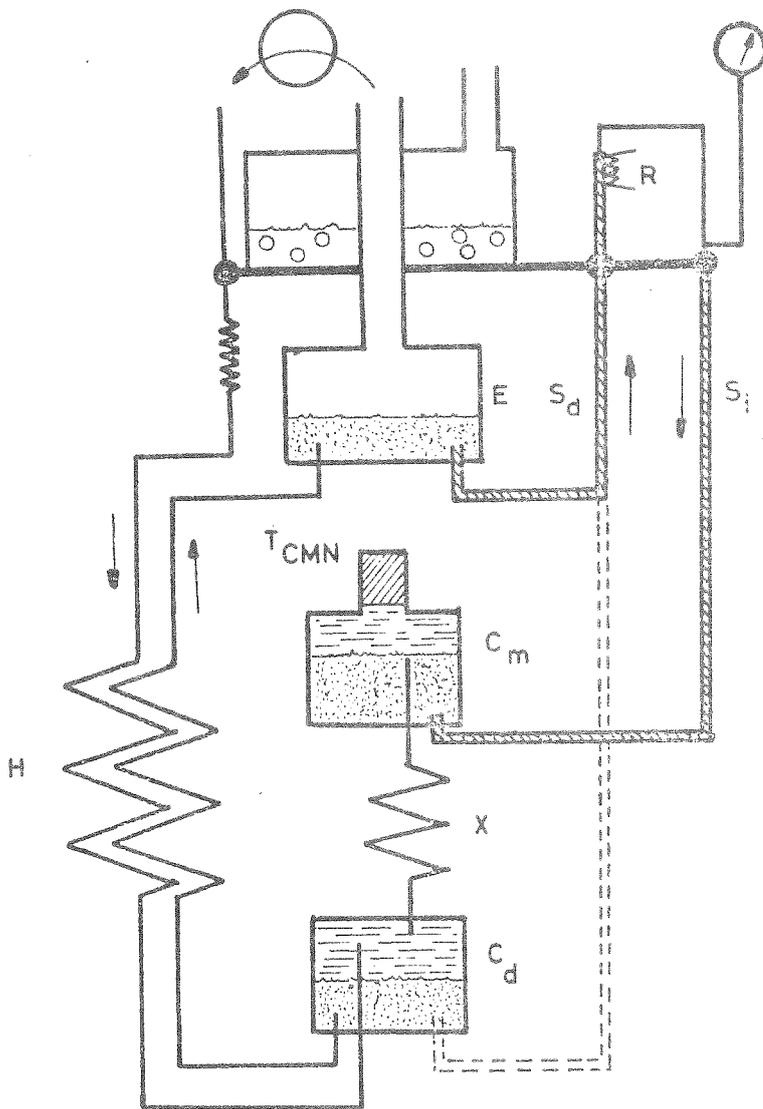


Fig. 1

the He^3 flow was perhaps due to some viscosity effects near C_m , we changed the cross section along the tube, with diameters increasing from the hot to the cold chamber, from 1 mm (and later 1.5 mm), to 2 and then 3.5 mm i.d., the total length being al-

With the idea that the blocking of

ways about 100 cm. As long as the hot part was less or equal to 1.5 mm i.d., the He³ circulation was blocked. Then it appears that the critical parameter for the He³ flow is the diameter of the hot end of the tube. If we suppose that the flow is made of He³ bubbles through the dilute phase, this agrees rather well with the classical calculation of the formation of a droplet which results of an equilibrium between the surface tension forces and the apparent weight of the

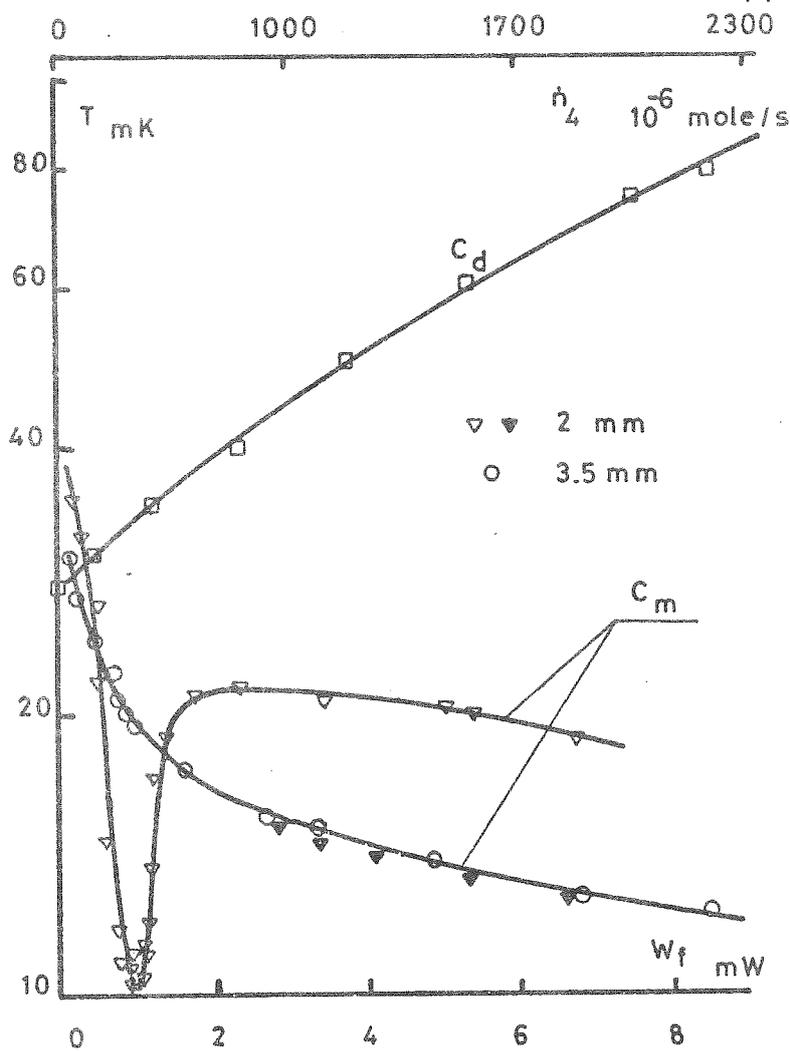


Fig. 2

droplet :

$$\pi d \cdot A = \frac{1}{6} \pi d^3 (\rho_d - \rho_c) g$$

This gives $d = 1.2$ mm with $A = 0.16$ dyne/cm.⁵

However one would have to take into account viscosity forces of the dilute flow on this bubble. This perhaps also produced the blocking of the He³ flow in the critical case after the steep decrease with 2 mm i.d.

It is possible to evaluate the exchange area if one knows the Kapitza resistance between both phases of He³. This may be estimated from the acoustic mismatch theory to

be about 4 000 times less than at the boundary plastic-helium, for example. One deduces an exchange area of about 4 mm^2 , corresponding roughly to the cross section of the tube or to the surface of a bubble with $d = 2$ mm. The calculated RC thermal time constant of such a bubble is for example 6 seconds at

20 mK and its velocity, deduced from Stoke's formula is found to be 3 cm/sec. The time the bubble remains inside the tube depends on the temperature profile of the dilute phase along the tube, but is at least of the order of the calculated time constant. The exchange seems thus very good and the mixing chamber temperature T_m should be limited by the heat leaks :

$$Q = 80 \dot{n} T_M^2 \quad T_M \propto \dot{n}^{-1/2} \dot{Q}^{1/2}$$

We usually found that the minimum temperature varies roughly as $\dot{n}^{-1/4}$. Hence we may suppose that the heat leaks \dot{Q} are slowly varying functions of \dot{n}_4 (as $\dot{n}^{1/2}$). It is also possible that the size of the bubbles decreases with increasing flow rate, thus increasing the exchange area.

It seems that by increasing the exchange surface and the flow rate, one may hope to reach temperatures lower than presently attained with solid walls separating both phases like in a classical dilution refrigerator.

We are grateful to Prof. A. Lacaze and P. Roubeau for helpful discussions.

References

1. P. Roubeau, D. Le Fur and J.A. Varoquaux, ICEC 3 Berlin 1970 p. 315.
2. G. Frossati and D. Thoulouze, ICEC 5 Kyoto 1974 p. 229.
3. H. Haug, K. Weiss and M. Van Hove, J. LowTemp. Phys. 4, 262 (1971)
4. N.H. Pennings, K.W. Taconis, and R. de Bruyn Ouboter Cryogenics, 14, 53 (1974)
5. K.N. Zinovyeva, J. de Physique, 31 C 3, 91 (1970).

CHAPITRE III

REFRIGERATEUR A DILUTION CONVENTIONNEL AVEC BOITES A MELANGE
MULTIPLES

Le travail exposé dans ce chapitre a fait l'objet d'une publication au "International Symposium on Physics at Ultralow Temperatures" à Hakoné (Japon) en septembre 1977 qui paraîtra aux comptes-rendus de la Conférence dans le "Journal of the Physical Society of Japan" et a été proposé pour publication à la revue "Cryogenics".

Nous présentons ici le texte intégral de cette dernière publication.

DOUBLE MIXING CHAMBER SYSTEM
ON DILUTION REFRIGERATION

Frossati G., Hébral B., Schumacher G., and Thoulouze D.

Centre de Recherches sur les Très Basses Températures,
C.N.R.S., BP 166 X, 38042 GRENOBLE-CEDEX, France.

Dilution refrigeration techniques have been considerably improved since the last ten years, but their performances are yet limited by the efficiency of the heat exchangers compared to the residual heat leak into the mixing chamber. Various techniques have been tried to improve this exchange. The best results have been obtained with very thin metallic powders providing exchange areas up to several hundred square meters⁽¹⁾, but also with direct exchange between both liquid phases by double ^3He and ^4He circulation.⁽²⁾⁽³⁾

One year ago, De Waele⁽⁴⁾ presented a refrigerator with two successive mixing chambers allowing to reach respectively 13.5 and 5.5 mK. In that case also, these very good results are obtained by direct exchange in the liquid phase. But this method, by difference with the ^4He circulation, allows calculation of the performances with well-known parameters, as in the classical case. These calculations pointed out that it was possible to improve the ultimate performances of the double mixing chambers system by precooling with classical powder exchangers.

DEFINITION OF THE SYSTEM-GENERAL ARRANGEMENT

The general arrangement used in the case of a double mixing chamber is shown in fig. 1. The concentrated phase flowing from the heat exchangers enters the first mixing chamber at temperature T_0 with an ^3He flow rate \dot{n}_0 . A fraction \dot{n}_1 of this flow is diluted in this first mixing chamber MC_1 and comes back to the exchangers via the geometrical impedance Z_1 . The remaining part \dot{n}_2 is derived, then diluted in the second mixing chamber MC_2 which it leaves through the geometrical impedance Z_2 .

this ^3He had been first precooled in liquid phase in the first mixing chamber.

The performances which can be obtained with such a system depend at first view on the flow rates \dot{n}_1 and \dot{n}_2 . The sum of these flow rates is \dot{n}_0 , but their ratio depends on the osmotic pressure in both mixing chambers and on the pressure loss in both impedances Z_1 and Z_2 . The impedance of the tube connecting MC1 and MC2 on the concentrated side will be neglected in this calculation.

The osmotic pressure in this temperature range has the general form

$$\pi = \alpha + \beta T^2$$

where $\alpha = 2,1 \cdot 10^3$ Pascal

$$\beta = 10^5 \text{ Pascal} \cdot \text{K}^{-2} .$$

The pressure loss along an impedance Z is :

$$\Delta P = Z \eta V \dot{n}$$

where η is the viscosity ($\eta = \gamma/T^2$) and V the molar volume. At low temperature, for pure ^3He $\gamma_c = 2 \times 10^{-7}$ Nsec/m² and $V_c = 37 \cdot 10^{-6}$ m³/mole for the dilute phase $\gamma_d = 0,5 \times 10^{-7}$ Nsec/m² and $V_d = 437 \cdot 10^{-6}$ m³/mole.

If π_1 and π_2 are the osmotic pressures of MC1 and MC2, respectively at temperature T_1 and T_2 , and if π_0 is the osmotic pressure at the meeting point of both ^3He back flows, the pressure losses along the impedances Z_1 and Z_2 are :

$$\pi_1 - \pi_o = Z_1 \gamma_d V \dot{n}_1 / T_1^2 \quad (1)$$

$$\pi_2 - \pi_o = Z_2 \gamma_d V \dot{n}_2 / T_2^2 \quad (2)$$

if, to simplify, we assume that the temperatures stay uniform and equal to T_1 and T_2 along Z_1 and Z_2 . But we have also :

$$\pi_1 - \pi_2 = \beta(T_1^2 - T_2^2). \quad (3)$$

So that

$$\frac{\dot{n}_1}{\dot{n}_2} = \frac{\beta(T_1^2 - T_2^2)T_1^2}{\gamma_d V Z_1 \dot{n}_2} + \frac{T_1^2 Z_2}{T_2^2 Z_1}, \quad (4)$$

with $\dot{n}_1 + \dot{n}_2 = \dot{n}_o$.

The difference in osmotic pressure between the two mixing chambers which gives a level difference between both phase boundaries tends to establish a flow in the opposite sense to that of \dot{n}_2 . One can determine the value of this "internal flow" by equating \dot{n}_o to zero :

$$n_o = 0 \text{ then } \dot{n}_1 = -\dot{n}_2 = \dot{n}_i$$

$$\text{and } \dot{n}_i = \frac{\beta(T_1^2 - T_2^2)T_1^2 T_2^2}{\gamma_d V (T_2^2 Z_1 + T_1^2 Z_2)}.$$

Writing from (4) the value of the flow rate \dot{n}_2 in the second mixing chamber in the general case we find :

$$\dot{n}_2 = \frac{T_2^2 [\gamma_d \dot{n}_o Z_1 - \beta(T_1^2 - T_2^2)T_1^2]}{\gamma_d V (T_1^2 Z_2 + T_2^2 Z_1)}.$$

In order to have $\dot{n}_2 > 0$ and then to have production of cold, we see that the system has to obey the condition :

$$\dot{n}_o Z_1 > \frac{\beta(T_1^2 - T_2^2) T_1^2}{\gamma_d V} ;$$

or for given values of \dot{n}_o and Z_1 :

$$T_1^2 - T_2^2 < \frac{\dot{n}_o Z_1 \gamma_d V}{T_1^2 \beta}.$$

In fact, the system seems to be autostable, because when T_1 increases too much compared with T_2 , the internal circulation increases quickly and then T_2 increases also, so that the condition remains fulfilled.

II - ENTHALPY BALANCE - PERFORMANCES

Enthalpy balances may be established taking each mixing chamber separately. For the second one, MC₂, assuming a constant heat leak \dot{Q}_2 , the temperature of the incoming flow being T_1 , it can be written :

$$A T_2^2 \dot{n}_2 - B T_1^2 \dot{n}_2 = \dot{Q}_2 \quad (5)$$

where $A \approx 94 \text{ J.mole}^{-1}$

$B \approx 12,5 \text{ J.mole}^{-1}$.

For the first mixing chamber MC₁, with a heat leak \dot{Q}_1 :

$$A T_1^2 \dot{n}_1 - B T_o^2 \dot{n}_o + B T_1^2 \dot{n}_2 = \dot{Q}_1 \quad (6)$$

with

$$\dot{n}_o = \dot{n}_1 + \dot{n}_2 . \quad (7)$$

Equations 4,5,6,7 form a system in which unknowns are T_1 , T_2 , \dot{n}_1 and \dot{n}_2 . This system can be solved numerically as a function of the parameters Z_1 , Z_2 , \dot{Q}_1 , \dot{Q}_2 , T_o and \dot{n}_o .

Figure 2 shows the results of such a calculation for T_1 , T_2 and \dot{n}_2 as a function of the total flow rate \dot{n}_o for 3 different values of the ratio Z_1/Z_2 . In order to take into account the characteristics of the classical continuous heat exchangers, T_o has been taken as a quadratic function of \dot{n}_o ⁽⁵⁾ :

$$T_o^2 = a\dot{n}_o .$$

where the constant a , proportional to the Kapitza resistance between both phases, characterizes the exchangers. Here the values of T_o and \dot{n}_o are those measured when using our silver heat exchangers (see next paragraph "Experimental Results"). As can be seen, the temperature of MC_2 depends only slightly of the ratio $\frac{Z_1}{Z_2}$. However, the temperature T_1 of MC_1 is much more modified by Z_1/Z_2 , i.e. also by the ratio \dot{n}_1/\dot{n}_2 . The lowest temperature T_2 is obtained for similar values of the flow rates in both mixing chambers.

In order to show the importance of the heat leaks on the performances, we have represented on fig. 3 some typical variation of T_1 and T_2 as a function of \dot{Q}_2 . This is an important

point at the lowest temperatures where most of the heat produced in the connecting tubes by viscous heating and by conduction is brought to the mixing chamber. For a tube of diameter d and length L in which the ^3He flows at a mean temperature T , the heat produced by viscous heating is :

$$\dot{Q}_v = \frac{128L \gamma v^2}{\pi d^4 T^2} \dot{n}^2 .$$

The heat transmitted by conduction for a temperature difference ΔT is :

$$\dot{Q}_c = \frac{\pi d^2 K}{4 L} \ln\left(1 + \frac{\Delta T}{T}\right) .$$

Where the thermal conductivity of the liquid is $\frac{K}{T}$ and

for $T < 20$ mK, $K_c = 35.10^{-5}$ W/Km for the concentrated phase

$K_d = 26.10^{-5}$ W/Km for the dilute phase.

In fact, a differential equation should be written and integrated along the tube to calculate the temperature profile and then the heat transmitted to the mixing chamber. However a good approximation consists in minimizing the total heat leak $\dot{Q}_c + \dot{Q}_v$. For a given length L , this gives an optimum value for the diameter :

$$d_{\text{opt}} = \left(\frac{1024 L^2 \dot{n}^2 v^2 \gamma}{\pi^2 K T^2 \ln\left(1 + \frac{\Delta T}{T}\right)} \right)^{1/6} ,$$

and when $\Delta T \ll T$

$$d_{\text{opt}} = \left(\frac{1024 L^2 \dot{n}^2 v^2 \gamma}{\pi^2 K T \Delta T} \right)^{1/6} .$$

This calculation was used to determine the size of the tubes in

our experiments. For example, for the concentrated phase and for a tube of 10 cm length, the extremities of which are respectively at 3 and 5 mK, with a flow rate of 200 $\mu\text{m/s}$, we find :

$$d_{\text{opt}} = 3,9 \text{ mm}$$

$$\dot{Q}_{\text{v}} = 11 \text{ nW}$$

$$\dot{Q}_{\text{c}} = 22 \text{ nW.}$$

In the same conditions, with the dilute phase we have :

$$d_{\text{opt}} = 7,5 \text{ mm}$$

$$\dot{Q}_{\text{v}} = 29 \text{ nW}$$

$$\dot{Q}_{\text{c}} = 59 \text{ nW.}$$

So that, according to fig. 3, the ultimate temperature attainable in MC2 in this case will be about 3.5 mK. The heat transmitted becomes larger while the cooling power becomes smaller. This limitation applies as well to the classical heat exchanger as to the multi-mixing chambers arrangements. The only solution to improve the performances consists in increasing the flow rate, which in turn implies a larger exchange area.

III - EXPERIMENTAL RESULTS

We have performed two main experiments with a double mixing chamber. The characteristics of the corresponding arrangement are indicated in table 1.

For the first experiment, the dilution refrigerator had been equipped with only two silver powder heat exchangers, each side having a total exchange area of about 50 m^2 . With only one

mixing chamber, a minimum temperature of 5.2 mK was obtained for a ^3He flow rate of $80 \mu \text{ mole s}^{-1}$, as shown in fig. 4. In all cases, the temperatures were measured using a powdered CMN thermometer (height = diameter = 6 mm) calibrated against the ^4He vapour pressure. For the double mixing chamber arrangement, the second mixing chamber reached 3.2 mK. The results are reported on fig. 4 as a function of the total flow rate \dot{n}_o and compared with the calculation as explained earlier. The parameters T_o , \dot{n}_o , Z_1 and Z_2 are given by the experimental conditions. \dot{Q}_1 and \dot{Q}_2 are adjusted to represent the experiment. The minimum temperature is obtained for a total flow rate $\dot{n}_o \approx 120 \mu \text{ mole/s}^{-1}$, which corresponds to a calculated flow rate $\dot{n}_2 \approx 60 \mu \text{ mole/s}^{-1}$.

In the second experiment the refrigerator was equipped with 4 exchangers having 200 m^2 total exchange area on each sides. The temperatures obtained in the case of one only mixing chamber and of two mixing chambers are reported on fig. 5.

The minimum temperature $T_2 = 2,8 \text{ mK}$ was obtained for a total flow rate $\dot{n}_o = 600 \mu \text{ mole s}^{-1}$ corresponding to a calculated flow rate $\dot{n}_2 = 120 \mu \text{ mole s}^{-1}$. The heat leaks to MC2 are $\dot{Q}_2 = 60 \text{ nW}$.

Actual values of \dot{Q}_2 and \dot{n}_2 can be obtained from the experiment by measuring T_1 and T_2 for different heating powers applied to the chamber. If \dot{Q}_e is the external heating power, the enthalpy balance becomes :

$$\dot{Q}_e + \dot{Q}_2 = \dot{n}_2 (94 T_1^2 - 12,5 T_2^2) .$$

With two different heating powers \dot{Q}_e , we get a set of two such equations from which \dot{Q}_2 and \dot{n}_2 can be deduced. In fact, this heating power modifies the total equilibrium since the second mixing chamber is not an isolated system and the ratio \dot{n}_1/\dot{n}_2 is changed. To avoid this perturbation one has to use very small powers, but then the accuracy of the temperature measurement is not sufficient.

It is also interesting to notice on fig. 5 that for $\dot{n}_o > 200 \mu \text{ mole/s}^{-1}$, the temperature of the first mixing chamber, T_1 , is lower than in the case of one only mixing chamber. This is probably partly due to the large thermal conduction between both chambers. Another factor may be the higher efficiency of the heat exchanger combined with the two mixing chambers. Actually, in that case, the outgoing dilute phase calculated from the enthalpy balance is colder than in the case of a single chamber and the concentrated ingoing phase can be further precooled.

Fundamentaly, a system with multiple mixing chambers presents on a conventional one the same advantages than a ^4He cycling dilution refrigerator. In both cases the heat is exchanged directly in liquid media, without the Kapitza resistance due to the separating wall in the heat exchangers. Such a system looks like a perfect heat exchanger because in first approximation the quantity of heat which can be exchanged in the first mixing

chamber is not limited even at very low temperatures. As a consequence the minimum temperature is obtained for the highest flow rate possible in the apparatus and one can have a high cooling power at the lowest temperature. It is just necessary to have the possibility of high flow rates, which involves an exchange area corresponding to this flow rate. At higher temperature (up to 5 mK), where the system is not limited by the heat leaks, it constitutes a simple means to divide the temperatures by a factor 2 or 2,5 with just one more mixing chamber than in an usual dilution refrigerator.

References

- 1 - G. FROSSATI and D. THOULOZE, Proc. of the ICEC 6 (1976), p. 116, IPC Science and Technology Press.
- 2 - PENNINGS, TACONIS and De BRUYN OUBOTER, Cryogenics 14, 53 (1974).
- 3 - G. FROSSATI, G. SCHUMACHER, and D. THOULOZE, Proc. of the 14th LT Conference (1975), North-Holland/American Elsevier, p. 13.
- 4 - De WAELE, REEKERS and GIJSMAN, Proc. of the ICEC 6 (1976), p. 112.
- 5 - See for example :
R. RADEBAUGH and J.D. SIEGWARTH, Cryogenics, October 1971, p. 368.

FIGURE CAPTIONS

TABLE 1 : Dimensions of the tube used in both experiments :

- on the dilute phase $Z_1(l_1, d_1)$ and $Z_2(l_2, d_2)$
- on the concentrated phase
- (li, di) inlet to MC1
- (lc, dc) connection between MC1 and MC2.

FIG. 1 : Schematic view of the two mixing chambers system.

FIG. 2 : T_1 , T_2 and \dot{n}_2 dependance on the total flow rate \dot{n}_o for different values of Z_1/Z_2 and for fixed values

$$\text{of } \dot{Q}_1 = 80 \text{ nW}$$

$$\dot{Q}_2 = 80 \text{ nW}$$

$$T_o = 9,5 \text{ mK}$$

$$\dot{n}_o = 400 \mu \text{ mole s}^{-1}$$

$$Z_2 = 10^9 \text{ m}^{-3}.$$

FIG. 3 : Influence of the heat leak \dot{Q}_2 on T_1 and T_2 for

$$\dot{Q}_1 = 80 \text{ nW}$$

$$T_o = 9,5 \text{ mK}$$

$$\dot{n}_o = 400 \mu \text{ mole s}^{-1}$$

$$\frac{Z_1}{Z_2} = 5 \text{ et } Z_2 = 10^9 \text{ m}^{-3}.$$

FIG. 4 : First experimental results compared with the calculations

for :

$$\begin{aligned}Z_1 &= 3.10^{10} \text{ m}^{-3} \\Z_2 &= 6.10^9 \text{ m}^{-3} \\ \dot{Q}_1 &= 50 \text{ nW} \\ \dot{Q}_2 &= 15 \text{ nW} \\ T_o &= 12 \text{ mK} \\ \dot{n}_o &= 100 \mu \text{ mole s}^{-1}.\end{aligned}$$

FIG. 5 : Second experimental results compared with the calcula-

tion for :

$$\begin{aligned}Z_1 &= 2,5.10^9 \text{ m}^{-3} \\Z_2 &= 7,9.10^8 \text{ m}^{-3} \\ \dot{Q}_1 &= 80 \text{ nW} \\ \dot{Q}_2 &= 60 \text{ nW} \\ T_o &= 9,5 \text{ mK} \\ \dot{n}_o &= 400 \mu \text{ moles s}^{-1}.\end{aligned}$$

TABLE 1

	Z_1	l_1	d_1	Z_2	l_2	d_2	l_i	d_i	l_c	d_c
	cm^{-3}	cm	cm	cm^{-3}	cm	cm	cm	cm	cm	cm
exp. 1	$2 \cdot 10^5$	8	0,2	$6 \cdot 10^3$	6	0,45	5	0,2	8	0,35
exp. 2	$2,5 \cdot 10^3$	14	0,6	$8 \cdot 10^2$	8	0,85	15	0,45	24	0,61

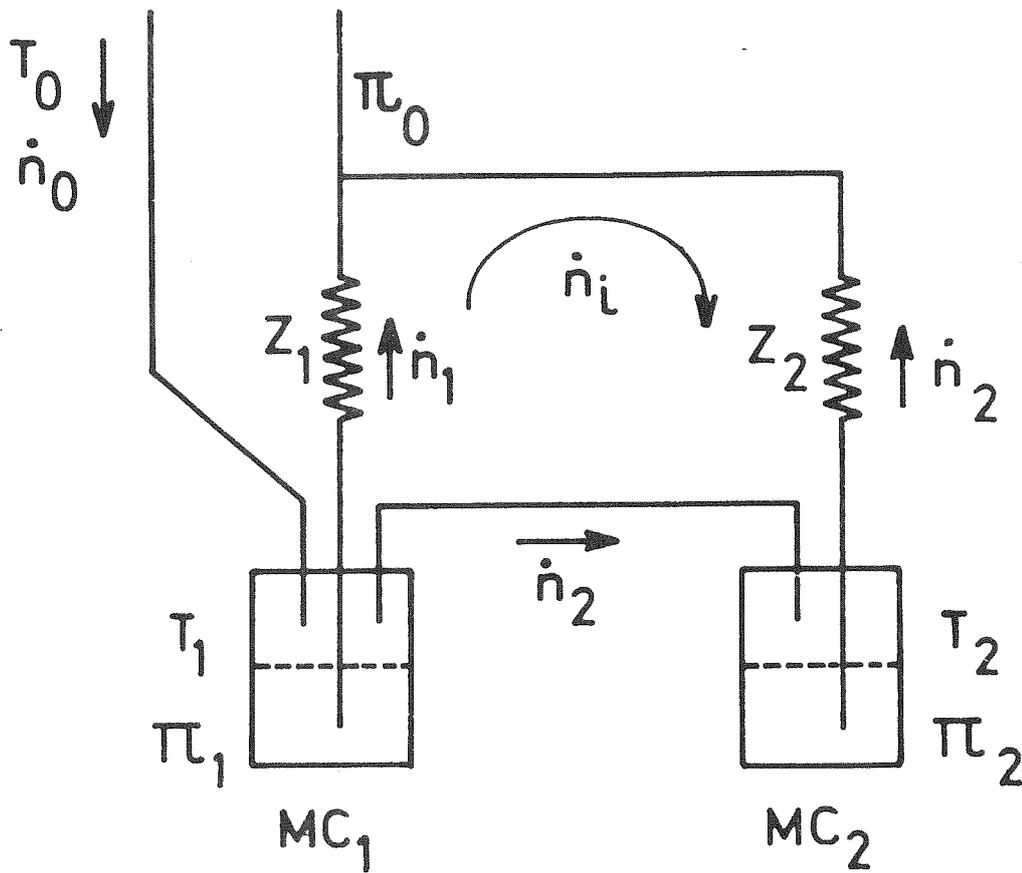


FIGURE 1

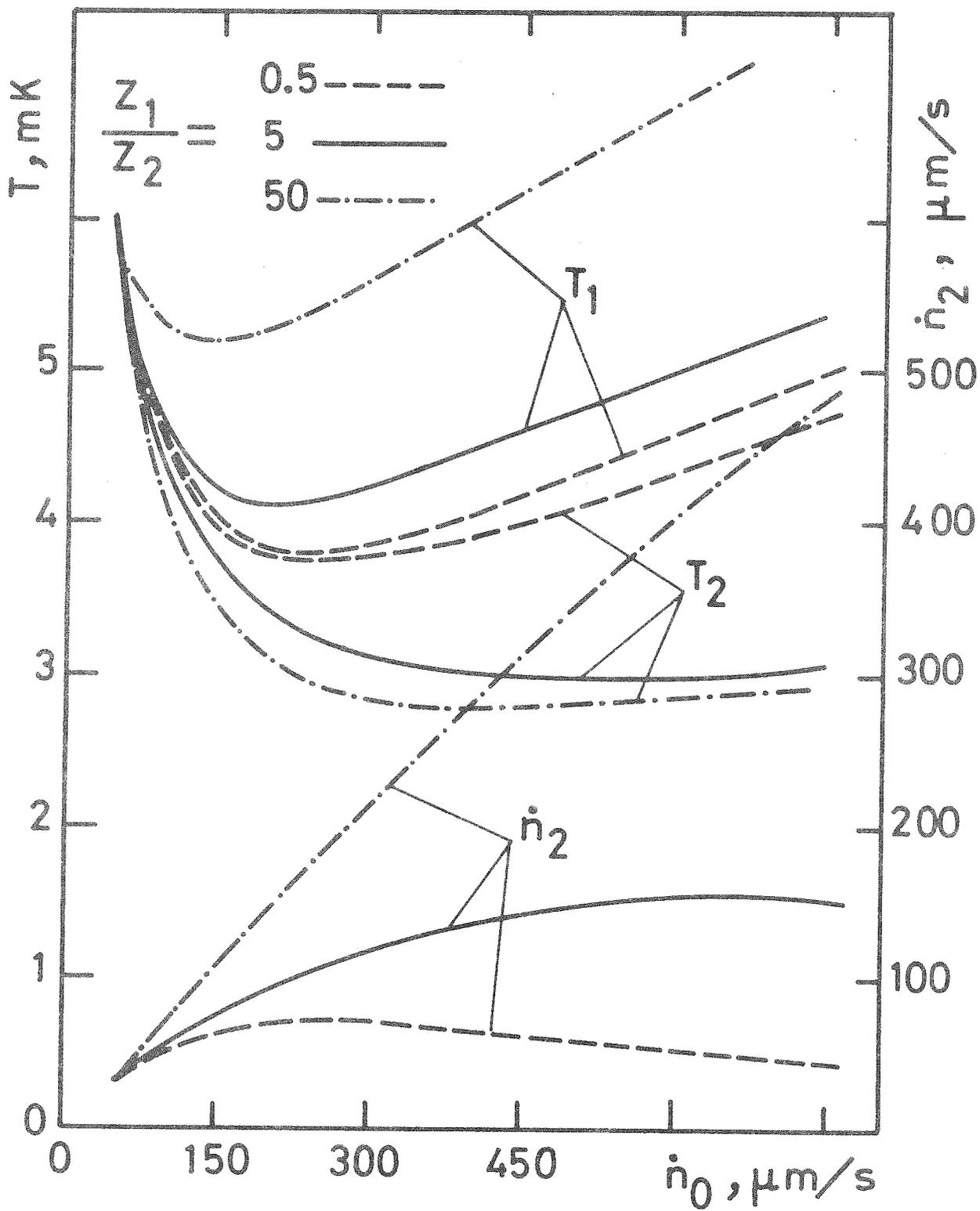


FIGURE 2

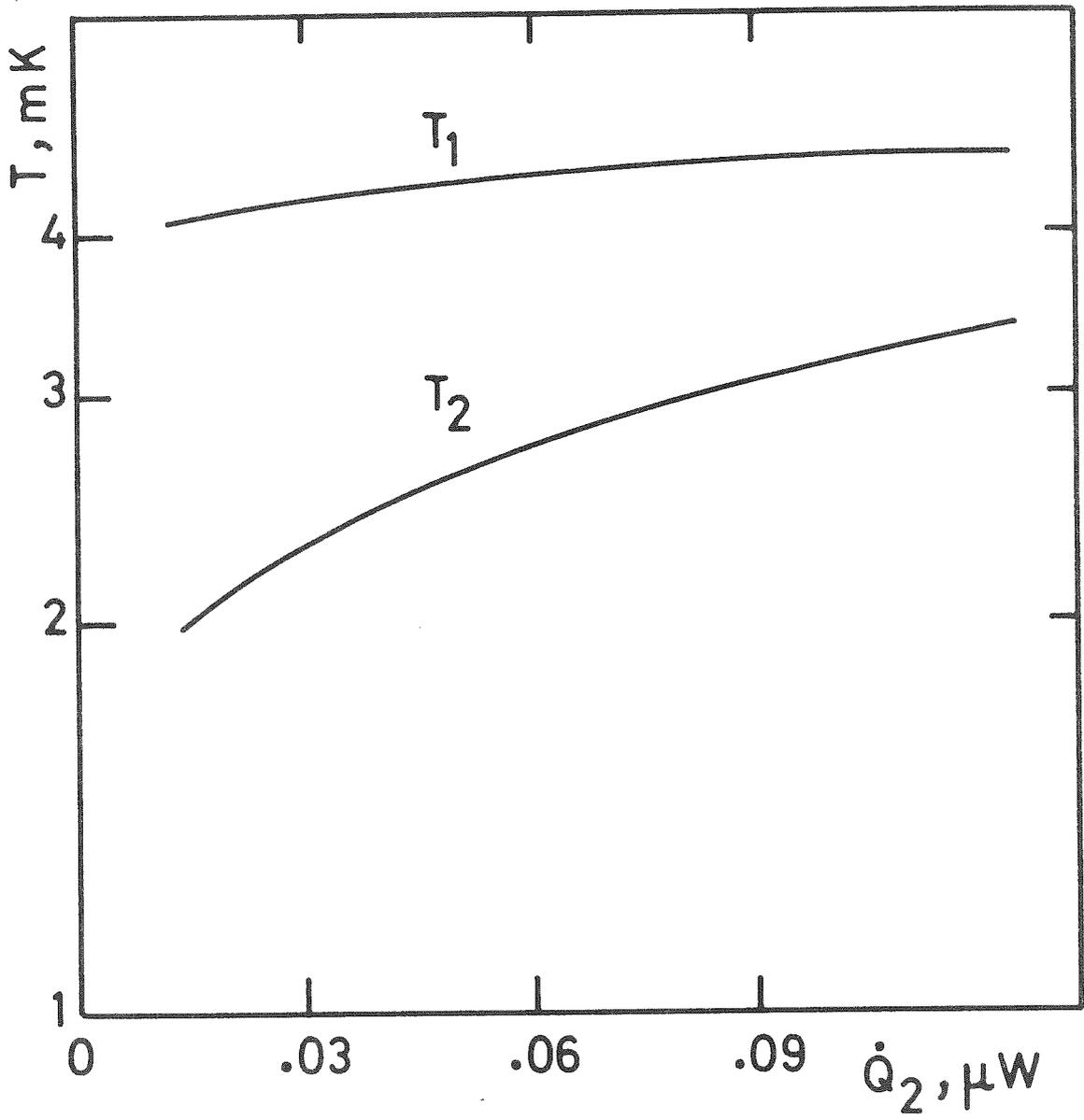


FIGURE 3

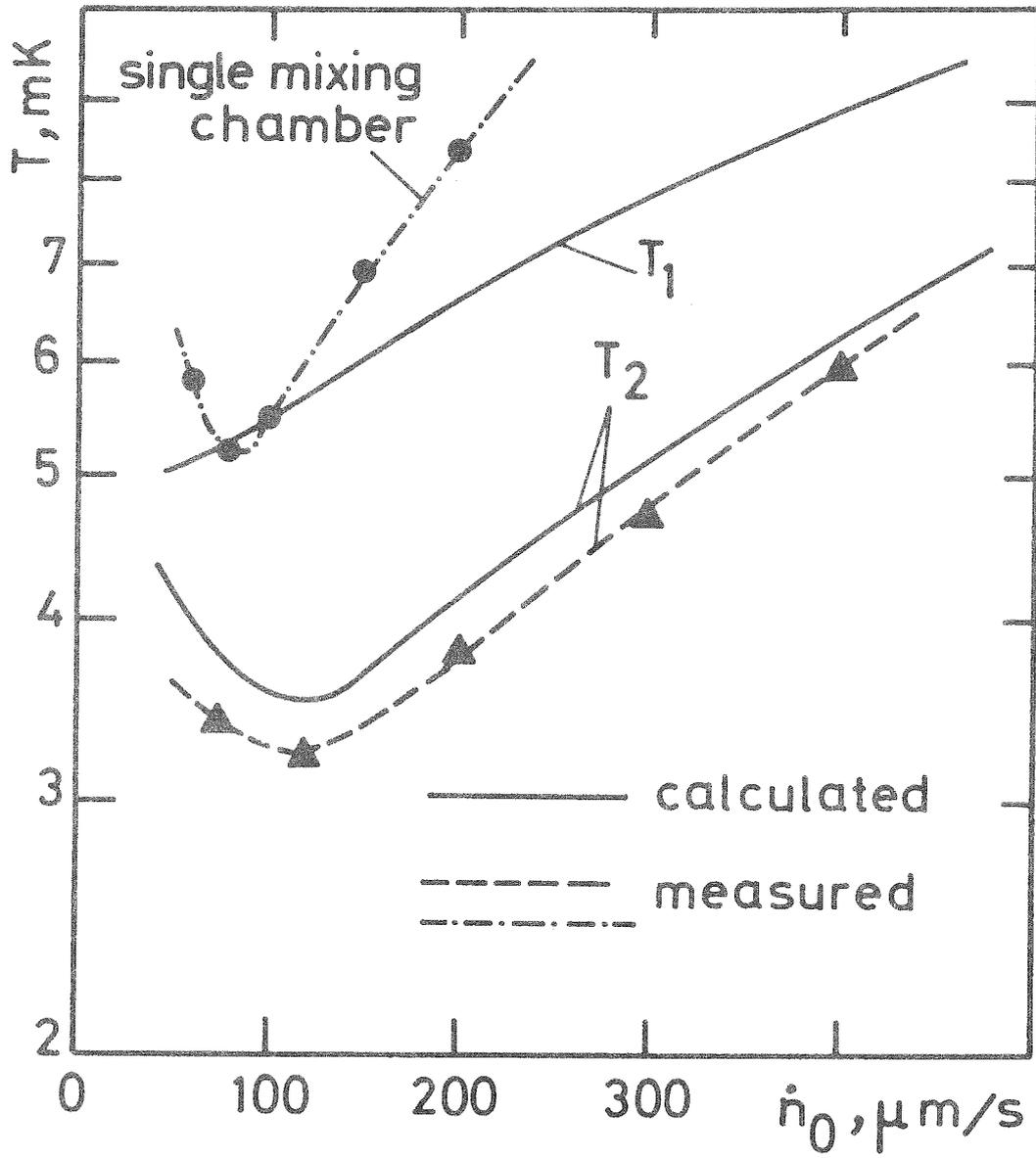


FIGURE 4

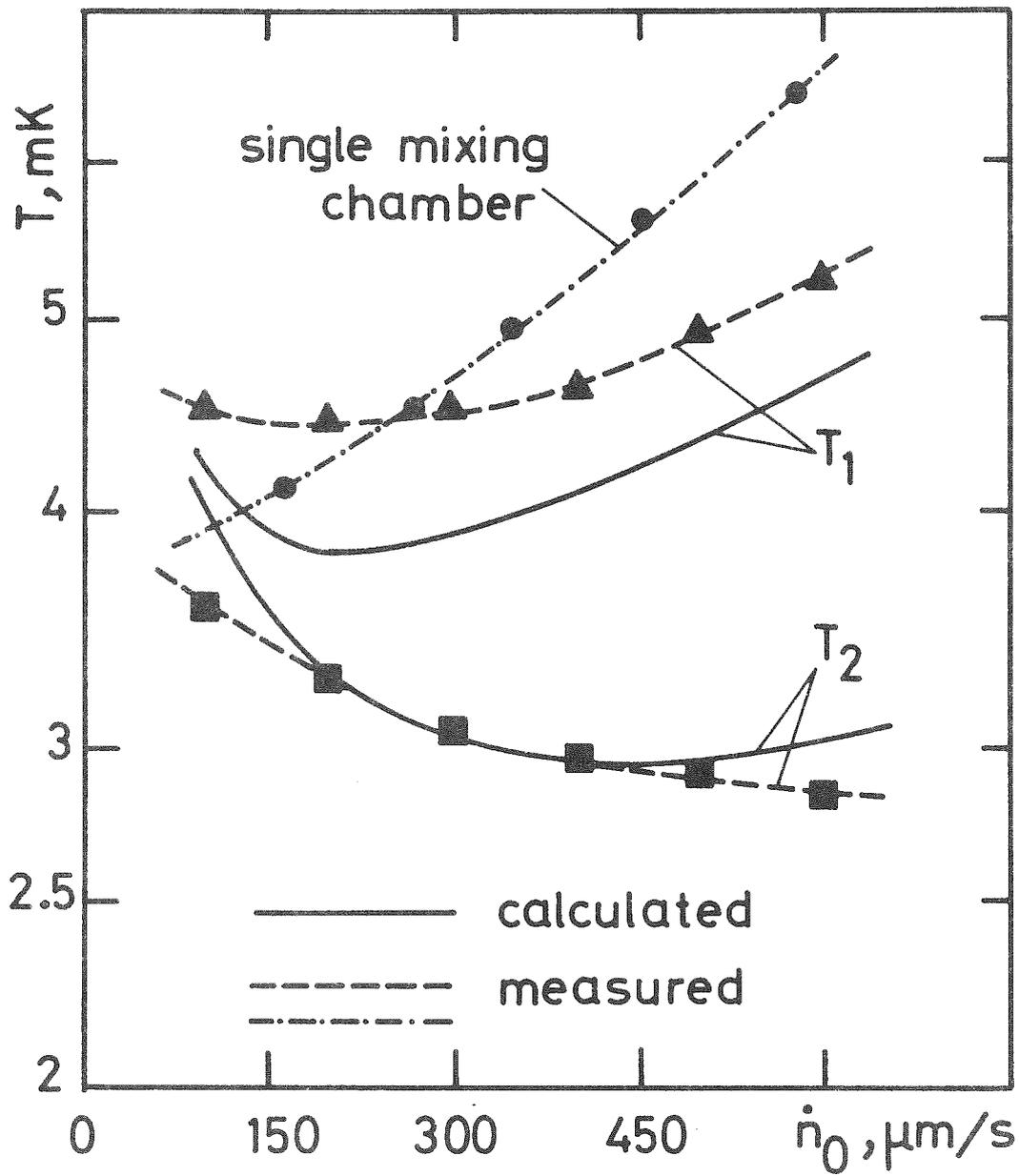


FIGURE 5

A N N E X E

Nous reproduisons dans cette annexe le programme de calcul qui a permis de simuler le fonctionnement d'un réfrigérateur à dilution muni de deux boîtes à mélange. Le programme est écrit en langage "Basic" et les calculs ont été effectués sur un calculateur WANG système 2200.

PROGRAMME # DB SI #

```
5 PLOT [,,HEX(OEOF)]
10 PRINT "COEFFICIENT D'ENTHALPIE DE LA PHASE DILUEE = 94 J/molle"
20 PRINT "COEFFICIENT D'ENTHALPIE DE LA PHASE CONCENTREE = 12.5 J/molle"
30 H2 = 94
40 H1=12.5
50 INPUT "ENTREE DE CHALEUR SUR LA BOITE 1 : Q1 =",Q9
60 INPUT "ENTREE DE CHALEUR SUR LA BOITE 2 : Q2 =",Q2
70 INPUT "IMPEDANCE Z1=",Z1
80 INPUT "IMPEDANCE Z2=",Z2
90 INPUT "TEMPERATURE D'ENTREE EN mK : T0=",T8
100 INPUT "DEBIT TOTAL EN microm/sec : NO=",N8
110 L9=0 : SELECT PRINT 005
120 T9=T8/1000
130 N9=N8/1E6
140 % ENTHALPIE DE LA PHASE DILUEE      H2 = ## . ## ## !!!! J/molle
150 PRINT USING 140,H2
160 % ENTHALPIE DE LA PHASE CONCENTREE  H1 = ## . ## ## !!!! J/molle

170 PRINT USING 160,H1
180 % ENTREE DE CHALEUR SUR LA BOITE 1   Q1 = ## . ## ## !!!! W

190 PRINT USING 180,Q9
200 % ENTREE DE CHALEUR SUR LA BOITE 2   Q2 = ## . ## ## !!!! W

210 PRINT USING 200,Q2
220 % IMPEDANCE                          Z1 = ## . ## ## !!!! m! - 3
230 PRINT USING 220,Z1
240 % IMPEDANCE                          Z2 = ## . ## ## !!!! m! - 3
250 PRINT USING 240,Z2
260 % TEMPERATUDE D'ENTREE               T0 = ## ## . ## ## mK
270 PRINT USING 260,T8
280 % DEBIT TOTAL                        NO = ## ## ## microm/sec
290 PRINT USING 280,N8
```

```
300 AS="O" : INPUT "A QUEL PARAMETRE VEUT-ON ATTRIBUER UNE NOUVELLE
VALEUR",A$
310 IF A$="Q1" THEN 380
320 IF A$="Q2" THEN 390
330 IF A$="Z1" THEN 400
340 IF A$="Z2" THEN 410
350 IF A$="T8" THEN 420
360 IF A$="NO" THEN 430
370 GOTO 440
380 INPUT "NOUVELLE VALEUR",Q9 : GOTO 300
390 INPUT "NOUVELLE VALEUR",Q2 : GOTO 300
400 INPUT "NOUVELLE VALEUR",Z1 : GOTO 300
410 INPUT "NOUVELLE VALEUR",Z2 : GOTO 300
420 INPUT "NOUVELLE VALEUR",T8 : GOTO 300
430 INPUT "NOUVELLE VALEUR"?N8 : GOTO 300
440 B$="O"
450 INPUT "QUEL PARAMETRE VEUT-ON FAIRE VARIER",B$
460 INPUT "DANS QUELLES LIMITES (MINI,MAXI)",P,Q
470 IF B$="NO" THEN 490
480 GOTO 500
490 P=P*1E-6 : Q=Q*1E-6
500 INPUT "COMBIEN DE POINTS",R
510 B9=T9!2/N9
520 SELECT PRINT 213
530 % Q1=#.# #!!!! W Z1=#.# #!!!! m!-3 TO=#.# # mK
540 PRINTUSING 530,Q9,Z1,T8
550 % Q2=#.# #!!!! W Z2=#.# #!!!! m!-3 NO=#.# # microm/sec
560 PRINTUSING 550,Q2,Z2,N8
570 % PARAMETRE EN ABSCISSE ; " # # "
580 PRINTUSING 570,B$
590 SELECT PRINT 005
600 FOR Z9=P TO Q STEP (Q-P)/(R-1)
610 IF B$ ="Q1" THEN 670
620 IF B$ ="Q2" THEN 680
630 IF B$ ="Z1" THEN 690
640 IF B$ ="Z2" THEN 700
650 IF B$ ="NO" THEN 710
```

```
660 GOTO 720
670 Q9=Z9 :GOTO 720
680 Q2=Z9 :GOTO 720
690 Z1=Z9 :GOTO 720
700 Z2=Z9 :GOTO 720
710 N9=Z9 :T9=SQR(B9*N9) : GOTO 720
720 DEFFN Y(X)=(X/H2)*(Q2*(H1-H2)/(Q9+H1*T9!2*N9-H2*N9*X)+H1)
730 DEFFN N(X)=Q2/(H2*FNY(X)-H1*X)
740 DEFFN C(X)=4.57E15*(X-FNY(X))*X/Z1+(X*Z2/(FNY(X)*Z1)+1)*FNN(X)-N9
750 DIM D(3)
760 A=(Q9+H1*N9*T9!2)/(H2*N9)+1E-8 :B=1E-4
770 S=SGN(FNC(A))
780 T=SGN(FNC(B))
790 IF S*T=0 THEN 980
800 IF S*T<0 THEN 900
810 FOR I=1 TO 10
820 X=A+RND(I)*(B-A)
830 V=SGN(FNC(X))
840 IF V=0 THEN 1020
850 IF S*V<0 THEN 890
860 NEXT I
870 PRINT "PAS DE SOLUTION"
880 GOTO 1160
890 B=X
900 D(2+S)=A
910 D(2-S)=B
920 X=(D(1)+D(3))/2
930 U=SGN(FNC(X))
940 IF U=0 THEN 1020
950 D(2+U)=X
960 IF ABS(D(1)-D(3))/(ABS(D(1))+ABS(D(3)))<5E-3 THEN 1020
970 GOTO 920
980 IF S=0 THEN 1010
990 X=B
1000 GOTO 1020
1010 X=A
1020 REM
1030 DIM L(3) :L(1)=Z9 :L(2)=SQR(X) :L(3)=SQR(FNY(X)) :M9=0 :IF
```

```
L9=1 THEN 1150
1040 L9=L9+1 :GOTO 1050
1050 REM
1060 DIM A(20)
1070 A,S,X4,Y4=0
1080 S$="UP THIS LINE"
1090 IF B$ ="NO" THEN 1110
1100 GOTO 1120
1110 C5=500/Q*1E-6 :C6=100 :GOTO 1130
1120 C5=500/Q :C6=100
1130 X4,Y4=0
1140 GOSUB 1240
1150 X4,Y4=0 :M9=M9+1 :IF M9=1 THEN 1170 :IF M9=2 THEN 1180 :IF
M9=3 THEN 1190
1160 NEXT Z9 :PLOT [,-100,]:GOTO 110
1170 X=L(1) :Y=1000*L(2) :GOTO 1200
1180 X=L(1) :Y+1000*L(3) :GOTO 1200
1190 X=L(1) :Y=1E4*FNN(L(2)!2)
1200 GOSUB 'O2(X,Y,X4,Y4)
1210 PLOT [-X4,-Y4 ]
1220 GOTO 1150
1230 REM
1240 SELECT PRINT 413,PLOT 413
1250 PLOT [,,]
1260 M=100/C5
1270 C3=100
1280 S1=0 :S2=5 :T1=0 :T2=5
1290 FOR I=1 TO (T2+1)*8+3:PRINT HEX(OA) :NEXT I
1300 PRINT HEX(OD)
1310 GOSUB 1520
1320 M=100/C6
1330 W=0 :C1=10 :T=T2+1
1340 FOR I=1 TO 10*T
1350 PLOT [ ,C1,""]
1360 NEXT I
1370 IF W=1 THEN 1390
1380 PLOT [ ,20,"T mK"] :PLOT [-40,-20]
1390 FOR K=1 TO T
```

```
1400 J=(T-K)*M
1410 IF W=0 THEN 1430
1420 J=-J
1430 PLOT [,C3,"-"]
1440 IF J=0 THEN 1460
1450 GOSUB 1770
1460 NEXT K
1470 IF W=1 THEN 1510
1480 IF T1=0 THEN 1510
1490 C1=-10 :W=1 :T=ABS(T1-1)
1500 C3=-C3 :GOTO 1340
1510 RETURN
1520 IF S1=0 THEN 1730
1530 W=0 :S=ABS(S1-1)
1540 C2=-C3*S
1550 FOR I=1 TO 10*S
1560 PLOT [10,,"-"]
1570 NEXT I
1580 IF W=0 THEN 1600
1590 PLOT [20,,B$]:PLOT [-40,,]
1600 PLOT [C2,,]
1610 FOR K=1 TO S
1620 J=(K-S)*M
1630 IF W=0 THEN 1650
1640 J=-J
1650 PLOT [C3,,""]
1660 PLOT [-10,-10,]
1670 IF J=0 THEN 1700
1680 N=N+2
1690 GOSUB 1770
1700 PLOT [10,10,]
1710 NEXT K
1720 IF W=1 THEN 1760
1730 W=1 :C2=0 :C3=-C3
1740 S=S2+1
1750 GOTO 1550
1760 RETURN
```

```
1770 IF ABS(J)] =1 THEN 1810
1780 N=4 :T3=.1 :TO=1
1790 IF ABS(J) | =T3*TO THEN 1870
1800 N=N+1 :TO=TO*T3 :GOTO 1790
1810 N=3: T3=10 :TO=1
1820 IF INT(J)=J THEN 1840
1830 N=N+2
1840 IF ABS(J) [ T3*TO THEN 1870
1850 N=N+1 :TO=TO*T3
1860 GOTO 1840
1870 PRINT J;:PLOT [-10*N,,]
1880 RETURN
1890 DEFFN' O2(U,V,X4,Y4)
1900 IF B$="NO" THEN 1920
1910 C9=C5 :GOTO 1930
1920 C9=C5*1E6
1930 X3=INT(C9*U+.5) :Y3=INT(C6*V+.5)
1940 D1=X3-X4 :D2=Y3-Y4 :X4=X4+D1 :Y4=Y4+D2
1950 PLOT [D1,D2,HEX(FB)]
1960 RETURN
1970 END
```

CHAPITRE IV

ECHOS DIPOLAIRES ELECTRIQUES DANS LES VERRES

La découverte de propriétés thermiques anormales dans les verres à basses températures a soulevé depuis quelques années le problème de la physique de l'état amorphe. A la suite des résultats obtenus pour la chaleur spécifique, la conductivité thermique, l'atténuation ultrasonore et la constante diélectrique, un modèle phénoménologique où interviennent des systèmes à deux niveaux d'énergie a été proposé. Nous avons pensé pouvoir tester davantage ce modèle et en particulier l'aspect dynamique en faisant une expérience d'échos dipolaires électriques dans les verres.

Voyons d'abord ce qu'est un verre. Du point de vue cristallographique, l'état amorphe se distingue de l'état cristallin par la distance sur laquelle on peut définir une structure ordonnée. Par exemple, dans la silice cristalline (quartz) ou vitreuse (verre), la cellule de base est constituée par un tétraèdre dont les quatre sommets portent un atome d'oxygène, l'atome de silicium étant placé en son centre. L'arrangement de ces tétraèdres présente une périodicité régulière dans le quartz alors que cet ordre n'existe que sur quelques distances interatomiques dans le verre. Les propriétés des verres sont si différentes de celles des cristaux qu'il a fallu, pour les expliquer, construire une physique propre à l'état amorphe.

I - PROPRIETES THERMIQUES DES VERRES A BASSES TEMPERATURES

A basses températures (grossoirement en dessous de 4 K), les solides présentent des propriétés thermiques très différentes selon qu'ils se trouvent dans l'état amorphe ou cristallin. Notons que ces propriétés particulières dépendent très peu de la nature exacte du matériau (composition chimique, structure, etc...) ce qui permet de penser qu'elles sont propres à l'état amorphe en général.

Il semble que dans l'état désordonné la notion de phonons reste toujours valable, du moins lorsque leur longueur d'onde est grande devant les irrégularités du réseau.

Dans l'état cristallin, le modèle de Debye décrit bien les propriétés thermiques : la chaleur spécifique et la conductivité thermique varient en T^3 , l'atténuation ultrasonore est constante et très faible et la

vitesse du son a une valeur constante, à basse température.

Dans l'état amorphe, la chaleur spécifique est beaucoup plus importante et suit en première approximation une loi en $T^{(1)}$. La conduction thermique est plus faible que dans le cristal et suit une loi en $T^{2(2)}$. L'atténuation ultrasonore est très forte dans les verres, elle peut être saturée et suit pour les faibles intensités une variation en T^{-1} indépendante de la fréquence⁽³⁾. Enfin, la vitesse du son varie comme $\log T$, également indépendamment de la fréquence⁽⁴⁾.

II - MODELE DES SYSTEMES A DEUX NIVEAUX

Divers modèles ont été proposés pour expliquer les propriétés thermiques anormales des substances amorphes à basses températures en s'appuyant sur le caractère désordonné de leur structure. Il semble qu'à l'heure actuelle un seul modèle soit capable d'expliquer l'essentiel du comportement des verres. Il s'agit du modèle de PHILIPS⁽⁵⁾; ANDERSON, HALPERIN et VARMA⁽⁶⁾ également appelé modèle des systèmes à deux niveaux (TLS en anglais).

Dans ce modèle, les excitations de basse énergie sont attribuées à des systèmes localisés possédant deux niveaux d'énergie, sans que l'on fasse aucune hypothèse sur la nature de ces systèmes. On admet qu'un atome ou un groupe d'atomes ou un doublet électronique puisse adopter deux positions d'équilibre correspondant du point de vue énergétique aux deux minima E_1 et E_2 d'un double puits de potentiel (figure I). Par suite de la dissymétrie de ces positions, il apparaît un écartement des niveaux $\epsilon = E_1 - E_2$. Dans la base des états propres de l'Hamiltonien des deux puits en interaction on a un système à deux niveaux défini par $E = \pm \frac{1}{2} \sqrt{\epsilon^2 + \Delta^2}$ où Δ est l'énergie de couplage par effet tunnel. On supposera par la suite que dans les verres la densité d'état $n(\epsilon)$ de ces systèmes est constante à l'échelle de $k_B T$.

Nous allons montrer de quelle manière le modèle des TLS peut expliquer le comportement des verres à basses températures. La contribution des TLS à la chaleur spécifique, en supposant que $n(\epsilon) = n_0 = \text{cte}$, s'écrit :

$$C = n_0 \frac{\pi^2}{6} k_B^2 T \quad (1)$$

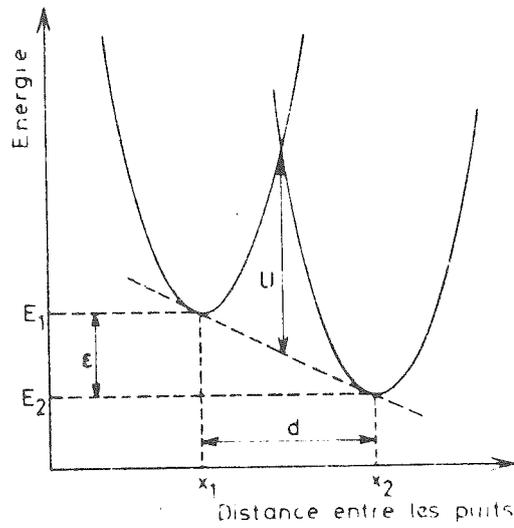


FIGURE 1

Représentation schématique du double puits de potentiel

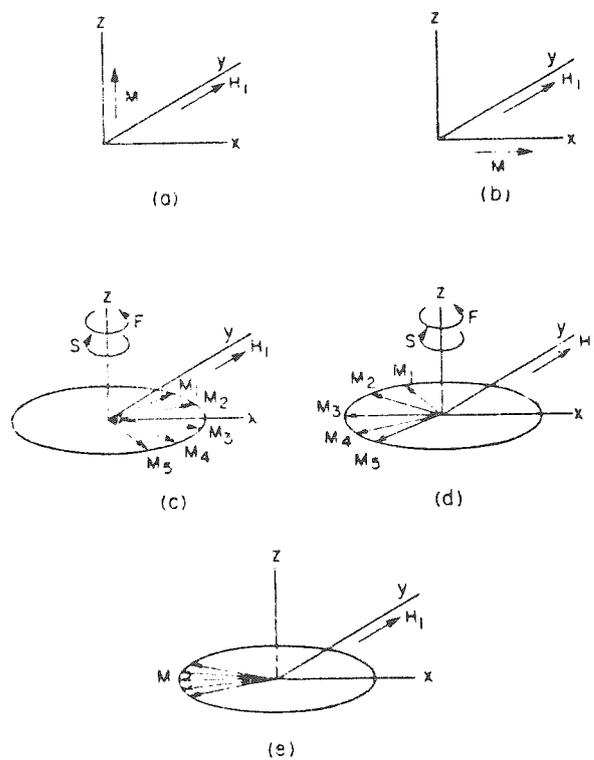


FIGURE 2

Aimantation M dans le référentiel tournant d'un ensemble de spins pendant un cycle à deux impulsions; (a) et (b) avant l'impulsion à 90° , (c) avant et (d) après l'impulsion à 180° , (e) convergence de phase de tous les spins à l'instant de l'écho.

Ceci traduit assez bien le comportement observé expérimentalement, et de la connaissance de C on peut accéder à la densité d'états n_0 des TLS.

En utilisant l'approximation de Debye pour la densité d'états des phonons on calcule la probabilité de transition entre les deux états. On obtient alors le temps de relaxation τ_j qui caractérise le retour à l'équilibre de la fonction de distribution $n(\epsilon)$ des systèmes à deux niveaux avec émission d'un phonon longitudinal (l) ou transverse (t) :

$$\frac{1}{\tau_j} = \left(\frac{M^2 l}{C_l^5} + 2 \frac{M^2 t}{C_t^5} \right) \frac{\epsilon^3}{2\pi \rho \hbar^4} \coth \left(\frac{\epsilon}{2k_B T} \right) \quad (2)$$

où ρ est la densité du milieu, C la vitesse du son et M la constante de couplage des TLS avec le champ de phonons.

C'est un calcul classique en paramagnétisme, que l'on applique ici à cause de l'analogie entre des particules de spin $\frac{1}{2}$ et un ensemble de systèmes à deux niveaux. Le temps de relaxation τ_j qui traduit l'interaction des TLS avec le réseau est une constante du type T_1 et est directement accessible par des techniques d'échos (voir plus loin).

Inversement, lorsqu'on perturbe le système avec des phonons incidents de vecteur d'onde k et de polarisation α , la fonction de distribution des phonons met un certain temps à revenir à sa valeur d'équilibre ce qui se traduit par un temps de relaxation τ_k tel que :

$$\frac{1}{\tau_k} = \pi \frac{M^2}{\rho c^2} n(\epsilon) \omega \text{th} \left(\frac{\hbar \omega}{2k_B T} \right) \quad (3)$$

où M est la constante de couplage et ω la fréquence du phonon incident. Le temps de relaxation intervient lorsque l'on veut décrire le comportement des phonons, en particulier dans les expériences de conductivité thermique, d'absorption ultrasonore et de vitesse du son.

La conductibilité thermique est calculée à partir de la formule cinétique en supposant que ce sont les phonons qui véhiculent la chaleur et qu'ils sont diffusés par les systèmes à deux niveaux :

$$K = \frac{1}{3} \sum_k C_D C_k l_k$$

C_D est la capacité calorifique des phonons de Debye, C la vitesse du son et l le libre parcours moyen. Comme $l_k = C \tau_k$, en intégrant la relation (3) sur toutes les fréquences des phonons thermiques on trouve une

dépendance de $l \approx \frac{1}{T}$. La chaleur spécifique C_D étant proportionnelle à T^3 on aboutit à une loi du type

$$K \approx T^2 \text{ ce qui correspond bien à l'expérience.}$$

Pour l'absorption ultrasonore qui est l'inverse du libre parcours moyen, la fréquence des phonons incidents est déterminée et la relation (3) donne une dépendance en température :

$$l^{-1} \approx \omega \frac{1}{T}$$

Ici encore le modèle des TLS donne un résultat en accord avec l'expérience.

Enfin, la relation de Kramers-Krönig, entre la partie dispersion et absorption, permet de calculer la vitesse du son qui devient :

$$\frac{\Delta C}{C} = \frac{n_o M^2}{\rho c^2} \ln \left(\frac{T}{T_o} \right)$$

La mesure de l'absorption ultrasonore ou de la vitesse du son permet donc d'accéder directement à la quantité $n_o M^2$ qui est le produit du carré de la constante de couplage élastique par la densité d'état des TLS.

III - PROPRIETES DIELECTRIQUES

Les propriétés thermiques évoquées précédemment sont donc assez bien décrites par le modèle des TLS.

Lorsque le verre est dopé avec des ions OH^- , la constante diélectrique présente elle aussi des anomalies à basses températures et, de même que la vitesse du son, elle varie en $\log T$.

$$\frac{\Delta \epsilon}{\epsilon} = \frac{4\pi}{\epsilon_r} p^2 n'_o \log \left(\frac{T}{T_o} \right)$$

où p est le moment dipolaire et n'_o la densité d'état des OH^- .

Des expériences où l'onde ultrasonore est associée à une onde électromagnétique de même fréquence (7) ont montré que les ions OH^- sont couplés à un certain nombre de systèmes à deux niveaux. On dit que les OH^- sont des "marqueurs" des systèmes à deux niveaux, et la densité d'état de OH^- peut être une image de la densité d'état des TLS, même si la

nature de ces derniers et le détail de leur couplage avec les OH^- est inconnu. En étudiant le comportement diélectrique des verres chargés avec des OH^- on peut donc espérer obtenir des informations complémentaires sur les systèmes à deux niveaux. L'analogie de la quantité $\frac{n_0 M^2}{\rho c^2}$ (cas des dipôles élastiques) devient la quantité $\frac{p^2}{\epsilon} n'_0$ dans le cas des dipôles électriques. Dans l'expérience qui va être décrite plus loin, on étudie les propriétés dynamiques des dipôles électriques dans la silice amorphe dopée avec des OH^- . La méthode d'investigation que l'on a utilisée est une méthode d'échos, qui est l'analogie des techniques d'échos de spin utilisées pour les substances paramagnétiques.

IV - PHENOMENES D'ECHOS AVEC UNE ASSEMBLEE DE SYSTEMES A DEUX NIVEAUX

Il est possible de décrire le phénomène d'écho par un formalisme tout à fait général tenant simplement compte du fait qu'on a affaire à un ensemble de TLS. Cependant, pour décrire qualitativement nos expériences d'échos faites avec un verre contenant des impuretés dipolaires électriques, on peut partir du formalisme propre aux particules de spin 1/2. Par exemple, dans le cas des moments magnétiques d'un atome on peut raisonner de façon simple car les équations quantiques et classiques ont la même forme⁽⁸⁾. On peut donc utiliser une image classique du phénomène. Il faut cependant garder à l'esprit le fait que l'analogie entre la résonance avec les dipôles magnétiques et la résonance avec des dipôles électriques est très relative. D'abord la nature des champs magnétique et électrique est différente (par exemple vis-à-vis du renversement du temps). D'autre part, la nature des spins est très différente : dans le cas d'un dipôle électrique, il n'y a pas de rapport entre le moment cinétique et la polarisation (analogie du rapport gyromagnétique d'un spin magnétique). Enfin, le champ statique uniforme appliqué de l'extérieur dans la RMN est remplacé par un champ électrique dû au réseau (analogie à un champ cristallin) qui n'est constant ni en grandeur ni en direction.

Il faut savoir tout de même que les résultats obtenus pour le spin 1/2 sont transposables au cas d'un dipôle électrique.

Le phénomène d'écho est lié à la notion de cohérence de phase

d'un ensemble de moments à un instant donné. Cette cohérence donne lieu à un moment macroscopique instantané qui peut être détecté. Prenons l'image du spin magnétique. Plaçons-nous d'abord dans la référentiel du laboratoire où le champ statique H_0 est parallèle à Oz (figure II.a). Le moment magnétique total sera donc orienté selon Oz et les spins peuvent précesser autour de cet axe avec la fréquence de Larmor $\omega_0 = -\frac{H_0}{\gamma}$ où γ est le rapport gyromagnétique.

A l'instant $t = 0$ on applique un champ oscillant H_1 perpendiculaire à l'axe Oz avec la fréquence ω_0 . Lorsqu'on se place dans un référentiel tournant autour de Oz à la même fréquence, une des composantes de H_1 est orientée selon l'axe Oy de ce référentiel. Le mouvement du spin est la somme d'une précession, autour de Oz à la fréquence ω_0 et d'une précession autour de Oy à la fréquence $\omega_1 = -\frac{H_1}{\gamma}$. Dans le référentiel tournant on observe une précession autour d'un champ fictif H_f qui est confondu avec H_1 lorsque celui-ci oscille exactement à la fréquence de Larmor ω_0 . C'est la résonance, et dans ce cas un champ H_1 faible devant H_0 est capable de produire une réorientation appréciable des moments.

Soit Δt_1 la durée de l'application du champ oscillant H_1 . Considérons le cas où Δt_1 est tel que la rotation due à H_1 amène les spins exactement dans le plan XY (figure II.b). On appelle cela une impulsion à 90° . Lorsque H_1 est supprimé les spins ont un mouvement de précession libre à la fréquence ω_0 autour de H_0 , c'est-à-dire dans le plan XY. Cependant, à cause des interactions entre spins et des inhomogénéités du champ H_0 on a une certaine distribution de ω_0 . Les différents spins ont donc des vitesses de précession différentes. Sur la figure II.c les spins M_1 et M_2 représentent ceux qui tournent plus vite que ω_0 et les spins M_4 et M_5 ceux qui tournent moins vite. On assiste à la destruction de la cohérence qui est caractérisée par une décroissance de l'aimantation transversale (selon X ou Y). Appelons T_2^* le temps associé à cette décroissance.

Si au bout d'un temps τ , on applique une deuxième impulsion du champ oscillant H_1 de durée Δt_2 tel que $\Delta t_2 = 2\Delta t_1$ chaque spin va subir une rotation de 180° autour de l'axe Oy. La situation est inversée (figure II.d) et les spins les plus rapides vont rattraper les spins les plus lents. Au temps 2τ tous les spins se retrouvent en phase et il apparaît un moment magnétique transversal macroscopique que l'on détecte

et que l'on appelle "écho spontané" (figure II.e).

Le temps de relaxation T_2^* comprend deux termes. Le premier terme est la partie réversible due aux inhomogénéités du champ H_0 . Son effet est annulé dans une expérience d'échos par le "renversement du temps" dû à l'impulsion à 180° . Le deuxième terme appelé T_2 est la partie irréversible due aux interactions entre les spins eux-mêmes. Son effet ne peut être annulé dans un processus d'écho.

Si l'on observe le mouvement des spins pendant un temps suffisamment long on s'aperçoit que tout en continuant à précesser autour de H_0 ils finissent par se réaligner avec celui-ci. Cet effet est dû aux interactions entre les spins et le réseau et est caractérisé par un temps de relaxation T_1 .

Les équations phénoménologiques de Bloch (voir réf. 8) décrivent avec une très bonne approximation les propriétés magnétiques d'un ensemble de spins placés dans un champ extérieur. L'évolution de l'aimantation vers sa valeur d'équilibre M_0 le long de Oz s'écrit :

$$\begin{aligned} \text{pour l'aimantation longitudinale : } \frac{dM_z}{dt} &= - \frac{M_z - M_0}{T_1} \\ \text{pour l'aimantation transverse : } \frac{dM_x + iy}{dt} &= - \frac{M_x + iy}{T_2} \end{aligned}$$

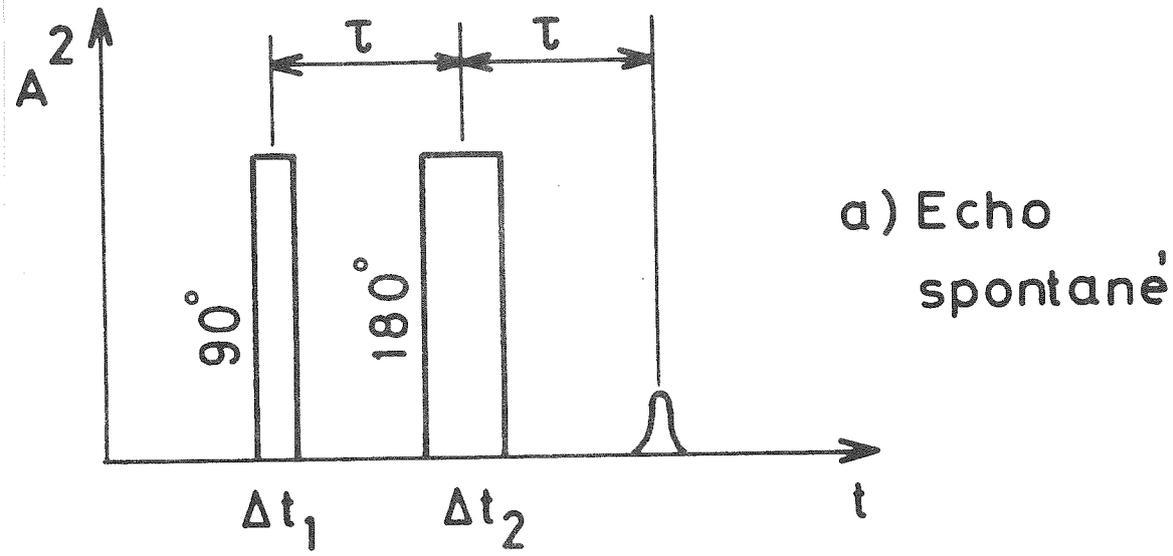
T_1 est le temps de relaxation spin-réseau qui rend compte d'un échange d'énergie entre les spins et le réseau.

T_2 est le temps de relaxation spin-spin qui traduit une destruction de la cohérence de phase due aux interactions entre spins.

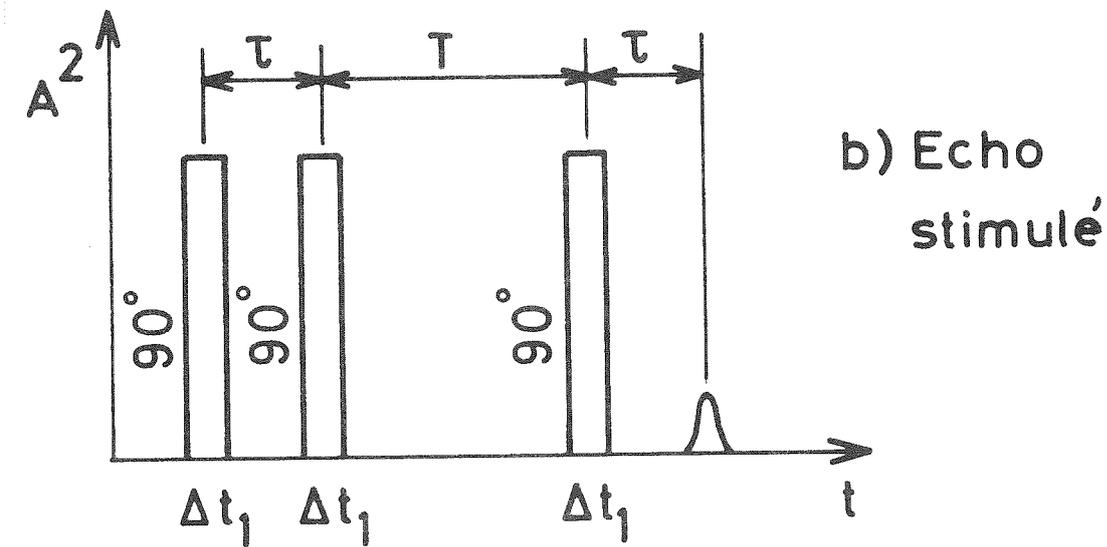
Dans la pratique, lorsqu'on veut mesurer T_2 on applique à l'échantillon une séquence de deux impulsions telles que le montre la figure III.a. La variation de l'amplitude A de l'écho en fonction de τ permet de connaître la composante irréversible de T_2 :

$$A = A_0 e^{-\frac{2\tau}{T_2}}$$

Lorsqu'on veut mesurer T_1 on applique une séquence de trois impulsions d'égale longueur (figure III.b), les deux dernières étant séparées par un temps arbitraire T . Une image simpliste du comportement du système de spins peut être la suivante : on considère que les deux dernières



a) Echo spontané



b) Echo stimulé

FIGURE 3
Diagramme des impulsions

impulsions sont la décomposition en deux parties de l'impulsion à 180° d'une séquence à deux impulsions (comme pour la mesure de T_2). Tout se passe alors comme si entre les deux dernières impulsions, pendant le temps T on arrêta le processus de déphasage. En fait, la composante selon l'axe des z n'est pas sensible à la phase, par contre, son module diminue puisque les spins tendent à se réaligner selon H_0 . La dernière impulsion ramène cette composante dans le plan xy où elle se recombine pour donner un écho, qui est appelé "écho stimulé".

L'amplitude de cet écho dépend du temps T pendant lequel on a laissé les spins se réaligner selon H_0 sous l'influence de l'interaction spin-réseau. De la mesure de cette amplitude en fonction de T on peut donc déduire le temps de relaxation T_1 :

$$A = A_0 e^{-T/T_1}$$

Dans le cas de notre expérience d'échos avec des ions OH^- , le moment magnétique μ est remplacé par le moment dipolaire p et le champ statique H_0 est remplacé par le champ électrique créé localement par l'environnement (analogue d'un champ cristallin).

Cette technique d'échos est la seule qui permette d'accéder indépendamment aux paramètres caractéristiques du système (n_0 , p , M).

Dans le cas des échos, comme nous allons le voir dans le paragraphe suivant, le calcul de l'énergie communiquée au système pour faire tourner les spins d'une quantité $\frac{\pi}{2}$ permet de donner une valeur "efficace" \bar{p} du moment dipolaire. L'amplitude de l'écho dans une séquence à 2 pulses dans la limite $\tau = 0$ permet de connaître le nombre $n_0(\omega)$ de dipôles excités par le champ à la fréquence ω . Enfin la connaissance de T_1 permet d'accéder à la constante de couplage M entre le dipôle et le champ de phonons dans l'hypothèse d'un processus de relaxation à un phonon.

V - TECHNIQUE EXPERIMENTALE

A) Cryogénie.

L'échantillon est directement plongé dans la boîte à mélange du réfrigérateur à dilution décrit au chapitre I. Le câble coaxial qui

transporte la haute fréquence est réalisé en matériaux supraconducteurs (Nb) pour l'âme centrale et en acier inoxydable pour l'âme extérieure, de façon à transférer le moins de chaleur possible dans la boîte à mélange. La température de l'hélium dans la boîte est mesurée avec un thermomètre magnétique au CMN. Le problème du couplage thermique de l'échantillon avec le bain est difficile à résoudre à cause de la résistance de Kapitza verre-He. En pratique, pour éviter les effets de chauffage de l'échantillon par la radiofréquence nous avons déterminé pour chaque température une fréquence de répétition maximum des pulses telle qu'il n'y ait aucun effet sur l'amplitude de l'écho. En se plaçant bien au-dessous de cette fréquence critique on peut espérer raisonnablement que la température de l'échantillon soit très proche de celle du bain. Les mesures ont été faites entre 3,8 et 30 mK.

B) Technique de mesure.

L'échantillon est constitué de deux disques de Suprasil I (diamètre 10 mm, épaisseur 1 mm) recouverts de chaque côté d'une électrode. Les électrodes sont des plaquettes de plomb qui en devenant supraconductrices augmentent de façon appréciable le facteur de surtension Q ($Q^2 = 300$ à basse température). Les deux disques sont placés en série à l'intérieur d'un circuit LC accordé pour la fréquence de 370 MHz. En mettant les disques en série, on diminue la capacité totale pour un même volume de l'échantillon ce qui permet de réaliser plus facilement le circuit résonant.

La détection se fait de façon classique avec un détecteur superhétérodyne. La figure IV montre le diagramme de fonctionnement du circuit électronique. Le circuit de logique commande le déclenchement du générateur et permet de composer la séquence d'impulsions désirée. L'isolateur sépare les fonctions : il permet le passage des impulsions du générateur vers l'échantillon uniquement et il permet le retour des échos vers la chaîne de détection uniquement. Dans le mélangeur on fait le carré de la somme des signaux du générateur (fréquence ω_0) et de l'oscillateur local (fréquence ω_1). On récupère un signal de fréquence $\omega_1 - \omega_0$ ce qui permet d'utiliser une chaîne d'amplification à faible bande passante, de gain élevé et de faible bruit. Le signal est visualisé sur un oscilloscope et traité par un échantillonneur qui améliore

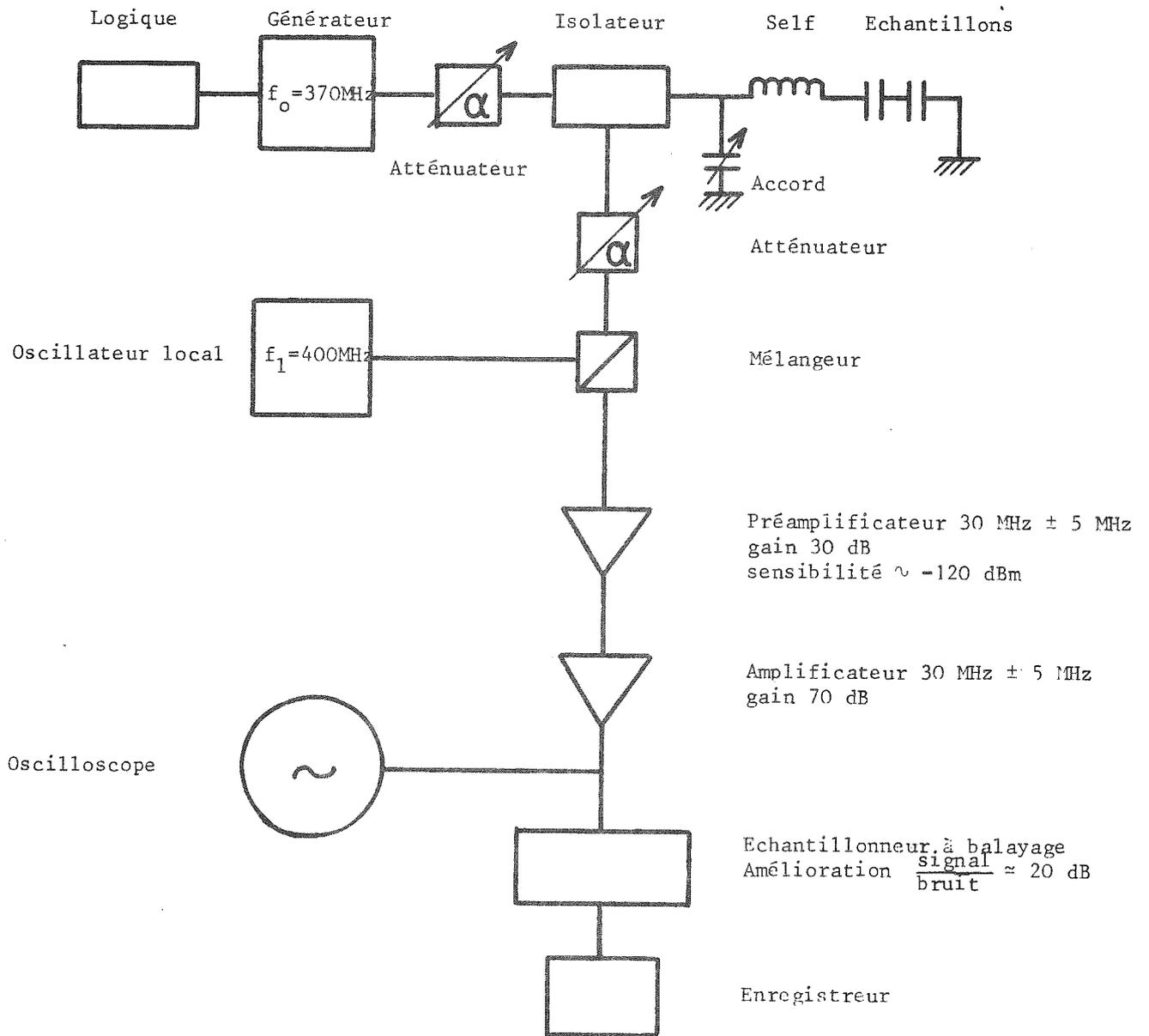


FIGURE 4

Diagramme du circuit de mesure

le rapport signal sur bruit (20 dB). Le gain de la chaîne d'amplification est de 100 dB à 30 MHz. Toutes nos mesures ont été faites à la fréquence fixe de 370 MHz.

REFERENCES

1 - Voir :

.R.C. ZELLER, R.O. POHL,
Phys. Rev. B4, 2029 (1971).

.R.B. STEPHENS,
Phys. Rev. B8, 2896 (1973).

.J.C. LASJAUNIAS, A. RAVEX, M. VANDORPE, S. HUNKLINGER,
Sol. State Comm. 17, 1045 (1975).

2 - Voir :

.R. STEPHENS,
Thèse Ph. D., Université Grenoble, 1974.

.M.P. ZAITLIM, A.C. ANDERSON,
Phys. Rev. Lett. 33, 1158 (1974).

3 - Voir :

W. ARNOLD, S. HUNKLINGER, S. STEIN, K. DRANSFELD,
J. Non-Crystalline Solids, 14, 192 (1974).

L. PICHE, R. MAYNARD, S. HUNKLINGER, J. JACKLE,
Phys. Rev. Lett. 32, 1426 (1974).

4 - M.V. SCHICKFUS, S. HUNKLINGER, L. PICHE,
Phys. Rev. Lett. 35, 876 (1975).

5 - W.A. PHILIPS,
J. Low Temp. Phys. 7, 351 (1972).

6 - P.W. ANDERSON, B.I. HALPERIN, C.M. VARMA,
Phil. Mag. 25, 1 (1972).

7 - C. LAERMANS, W. ARNOLD, S. HUNKLINGER,
J. Phys. C10, L-161 (1977).

8 - A. ABRAGAM,
Principles of Nuclear Magnetism, Oxford University Press, London
(1961).

A N N E X E

Les résultats concernant les expériences d'échos dipolaires électriques dans les verres sont exposés dans la publication suivante qui doit paraître au "Journal de Physique Lettres".

ELECTRIC DIPOLAR ECHOES IN GLASSES

L. BERNARD, L. PICHE, G. SCHUMACHER

C.R.T.B.T. - C.N.R.S., B.P. 166, Centre de Tri
38042 GRENOBLE

J. JOFFRIN

I.L.L. - Grenoble (par devoir)
C.R.T.B.T. - C.N.R.S. - Grenoble (par plaisir)

J. GRAEBNER

Bell Laboratories, Murray Hill
New Jersey 07974

ABSTRACT

Electric dipolar echoes are observed in OH^- doped vitreous silica in the 3 to 20 mK range at a frequency of 370 MHz. We study the behaviour of both spontaneous and stimulated echoes, their dependence on the input pulse amplitude and their decay in time. Assuming the existence of a two level OH^- dipole moment we deduce by independent measurements its effective value and density of state ; we also evaluate the elastic coupling between these defects and the phonons.

RESUME

On décrit des expériences d'échos électriques dipolaires dans des verres contenant des impuretés ioniques OH^- . Ces expériences sont réalisées dans la gamme de température 3 à 20 mK et à une fréquence de 370 MHz. Les échos spontanés et stimulés sont observés et leurs caractéristiques en fonction de la température et de l'amplitude des impulsions appliquées sont relevées. En supposant que les dipôles électriques ont deux niveaux d'énergie on déduit des mesures des valeurs indépendantes pour leur moment dipolaire, leur densité d'état et leur couplage avec les déformations élastiques.

INTRODUCTION

At low temperature, nearly all glasses show to have anomalous properties : the specific heat is high and obeys to a law in temperature (T) which is linear /1/, the thermal conductivity is small and proportional to T^2 /1/, the acoustic attenuation can be saturated /2/. All these properties can be understood by assuming that there exists configuration defects, intrinsic to the glass, which have at least two degrees of freedom (TLS), with a broad distribution of their energy splitting and that they are strongly coupled to the phonon field /3/. Further evidence is given to support these ideas by the anomalous behaviour of the sound velocity which varies like $\text{Log } T$ /4/.

When on the other hand, the glass has a certain content of ionic molecules (such as OH^-), its dielectric constant varies with temperature and has the same $\text{Log } T$ dependence /5/. This implies that at least part of the ionic molecules have, like the intrinsic TLS, a broad spectrum of excitation. Moreover, experiments performed by crossing an electromagnetic and an acoustical wave /6,7/ have shown that some of the ionic molecules behave as if they were associated with intrinsic TLS. Even though the nature of the binding is unknown, we can say that the ions act as markers for part of the TLS : they seem to reproduce their distribution.

The dynamics of the TLS may be described like that of a spin 1/2 assembly : T_1 is a time needed for the disturbed population to come back to thermal equilibrium and T_2 is a phase memory time. This concept was put in evidence mainly by making use of the ultrasonic technique /8/. Quite recently, T_1 and T_2 for the intrinsic TLS were measured in a straightforward way by performing acoustic echoes experiments / 9/. In order to study the dynamic properties of the OH^- defects we would like to report some measurements done by performing electric dipolar echoes at very low temperature.

For this, we make use of the fact that the OH^- ions are easily coupled to an external electrical field : we apply an R.F. electrical pulse to the electrodes attached on a thin disk of Suprasil I glass /10/ containing 1200 ppm OH^- ions ; it comes into resonant interaction with those OH^- molecules which have an energy splitting that lies within the bandwidth of the pulse. The population of these defects is coherently excited by this first pulse. Because the defects may interact with their environment (thermal phonons, other defects...) this state evolves in a way partly coherent, partly incoherent. A second pulse applied after a time τ restores an echo at time 2τ whose amplitude is affected only by the irreversible evolution of the system : we observe a spontaneous dipolar electrical echoe. We then monitor its amplitude as a function of τ and temperature. The magnitude of the spontaneous echoe is a measure of T_2 and that of the stimulated echoe, obtained in a sequence of three pulses, is a measure of T_1 .

EXPERIMENTAL SET-UP

The sample is made up from two disks of Suprasil I glass (10 mm in diameter and 1 mm in thickness) to which superconducting electrodes are attached. The disks are then clamped together and make up the capacitor (≈ 2 p.F) in a resonant circuit tuned at 370 MHz and matched to the 50Ω characteristic impedance of the line. At low temperature, the Q of the circuit has a value of 300.

The ensemble is immersed in the dilute phase of the mixing chamber of our dilution refrigerator /11/. The runs were done in the range from 3 mK to 30 mK and, for each set of data, the temperature, measured with a C.M.N. thermometer was stabilised to 1% for many days. We took care at all times to reduce the average R.F. power delivered to the sample at a value far below than that at which any heating effect was observed either on the CMN or on the echoe signal.

This compelled us to use very low repetition rates : 0.5 Hz at our lowest temperature of 3.8 mK. Our measurements were done at an R.F. frequency of 370 MHz with pulses 0.7 and 1.4 μsec wide. The peak pulse power sent to the sample ranged from - 45 dBm to - 10 dBm. The detector is sensitive to roughly - 100 dBm, it is calibrated such that 0 dB corresponds to a signal of - 76 dBm ± 1 . The insertion losses of the coaxial line is 3dB one way between the generator and the sample.

EXPERIMENTAL RESULTS

a. Our results on the study of the magnitude of the spontaneous echo versus the input pulse power are shown in Fig. 1. The two pulses have equal amplitudes but the second, π pulse, is twice as wide ($\Delta t_2 = 1.4 \mu\text{sec}$) as the first $\pi/2$ pulse ($\Delta t_1 = 0.7 \mu\text{sec}$), they are separated from one another by a time $\tau = 5 \mu\text{sec}$ so that the echo appears at time $2\tau = 10 \mu\text{sec}$.

At low enough temperature, as the input power is increased, the signal follows a cubic law and then goes through a maximum. This behaviour is characteristic for the case of spin echo so that we can identify the maximum to a rotation of $\pi/2$ of the polarisation. As the temperature becomes higher, we observe only the upper part of that curve, the signal becoming too small.

At the position of the maximum we can estimate the electrical field across the sample from the characteristics of the resonance circuit :

$$E_{\text{max}} = 130 \pm 10 \text{ Volts/meter ;}$$

we thus calculate the mean value \bar{p} for the effective OH^- dipole moment with the following formula :

$$\bar{p} = E_{\text{max}} \Delta t_1 = \frac{\pi}{2} \hbar \quad (1)$$

We find $\bar{p} = 1.8 \times 10^{-30}$ MKS or 0.5 Debye, this is relatively small compared to 1.9 Debye for the free water molecule but in agreement with other estimations .

b. The amplitude of the polarisations within the sample can be written when the signal is at its maximum and for the limiting condition $\tau = 0$

$$P = n_0 \hbar \Delta \omega \bar{p} \text{th} \left(\frac{\hbar \omega}{2kT} \right) \quad (2)$$

n_0 is the density of states of the dipoles which we assume to be broad and flat ; ω is the RF angular frequency and $\Delta \omega = \pi/2 \Delta t_1$ is the bandwidth of the dipoles which are excited. The term $\text{th} \left(\frac{\hbar \omega}{2kT} \right)$ is the population factor which expresses the temperature dependence of . Finally : $P = \epsilon_0 E_{\text{loc}}$ and E_{loc} is itself deduced from the detected signal.

We have checked that equation (2) is well verified in our temperature range ; also from (2), we can estimate n_0 the density of defects

having an energy splitting of the order of $\hbar\omega$ (370 MHz \equiv 18 mK) by using the value of \bar{p} obtained from (1). For this, considering the curve at 3.8 mK, we see that the maximum output signal is - 66 dBm (extrapolated to $\tau = 0$) ; for an estimated 3 dB loss in the line this corresponds to $\bar{P} = 2.9 \times 10^{-14}$ MKS ; then $n_0 = 7 \times 10^{43}$ MKS = 7×10^{30} erg $^{-1}$ cm $^{-3}$. This number is to be compared with the value 10^{32} erg $^{-1}$ cm $^{-3}$ obtained from specific heat data /1/ which includes both the contribution of the intrinsic and OH $^-$ defects. We can thus say that the OH $^-$ ions have a density roughly equal to 7 % of the TLS in the energy range explored. This is small compared to what can be estimated, 50 %, through other experiments /1/. On the other hand, the quantity $n_0 \bar{p}^2$ deduced from the variation of the dielectric constant at low temperatures/5/ is $n_0 \bar{p}^2 = 8 \times 10^{-15}$ MKS. If we calculate the same factor by using the values of n_0 and \bar{p} which we measure independently, we find $n_0 \bar{p}^2 = 2 \times 10^{-16}$, our value is much smaller ; this would lead to prove that the density n_0 is decreasing with energy, a result already suspected but not yet proved.

- c. In order to describe the behaviour of the spontaneous echoe, we have plotted in Fig. 2 the intensity of the echoe signal as a function of 2τ (τ is the time interval between the first and the second pulse) ; we have done so for different power values of the exciting pulses. In fig. 2 the temperature is kept constant and equal to 3.8 mK ; we obtain similar sets of data at other temperatures.

First, we see that there is a strong power dependence of the slopes which should give us the value of T_2 : for the lowest value of $P = - 45$ dBm (corresponding to the asymptotic P^3 regime of Fig. 1), T_2 is of the order of 250 ± 10 μ sec ; it decreases to be as short as 50 μ sec when $P = - 23$ dBm (corresponding to the maximum of the echoe signal). Before any explanation of this behaviour can be given, more systematic datas have to be collected. We may also notice on Fig. 2 that, especially for the high value of power, the signal has not an exponential decay as a function of τ ; the curves are bended as if there was a distribution of relaxation times, or as if diffusion was present. Here also a more detailed analysis has to be made.

Finally, when compiling all our data for low power regimes and different temperatures where a single relaxation time can be defined, we find a temperature dependence for T_2 which is near that of a T^{-1} . This seems to rule out the existence of a process which would give a T^{-2} law /12/.

- d. Turning now to the measurements of the stimulated, or three pulse echoe, our results are shown on Fig. 3 where we have plotted the power amplitude of the echoe as a function of T , the time between the second and third pulse. The duration and power of all three pulses are the same, 0.6 μ sec and the time between the first and second is held constant at 2.5 μ sec.

Here we show our results for T_1 measured at different temperatures each time in the lowest measurable power regime. The interesting features are : the signal does not show a purely exponential decay ; more : as in the case of T_2 we have observed that T_1 depends on the incident power. From our results for low values of power, we find that T_1 obeys an inverse T^{-1} temperature law. This is a good indication that the T_1 can be described by a one phonon relaxation process. In such a case, the relaxation time $T_1(E)$ of a two level defect with energy splitting E is given /13/ by :

$$T_1^{-1}(E) = \left(\frac{M_l^2}{c_l^5} + \frac{2M_t^2}{c_t^5} \right) \frac{E^3}{2\pi \rho \hbar^4} \coth^2(E/2kT)$$

where $\rho = 2.2 \times 10^3$ MKS is the density ; the indices l and t refer to the longitudinal and transverse polarisations of the phonons. If we admit that the transverse component dominates the process, with $c_t = 3.6 \times 10^3$ m.sec $^{-1}$ we obtain, for $T_1^{-1} = 860 \mu$ sec at $T = 3.8$ mK, $M = 1.2$ eV. This is large in comparison with intrinsic TLS but not astonishing if we think of the same ionic molecules imbeded in single crystals /14/.

CONCLUSION

In summary, we have been able to estimate independently, \bar{p} the effective electrical dipole moment which we suppose associated with the OH^- impurities in Suprasil I glass, n_0 the density of states of these defects and M their coupling constant to the strain field. We have also measured directly T_1 and T_2 , as a function of temperature, and shown that both of them are linear

functions of T^{-1} in the low power limit. Our experiment was performed at unusually low temperatures and our results concern solely OH^- marked TLS ; we can say that the numerical values which we obtain do not fall exactly in the range of what could be expected : M for instance is large : three times the value of the intrinsic TLS ; concerning T_1 , we can conclude that the description can be made through the one phonon relaxation process , as for T_2 , the general non exponential behaviour suggests the existence of more than one unique mechanism. Here more data is still needed and a more complete analysis has to be made.

We can however think that the anomalous power dependence observed for T_1 and T_2 can be attributed to the special problem of a glass where the population of dipoles is very broad and inhomogenous, and where the dipoles interact strongly on each other. All this will be the object of a further and more complete publication.

FIGURE CAPTION

Fig. 1 : Variation of the amplitude (power) of the spontaneous echoe with the incident pulse power P ; the time interval between the $\pi/2$ and π pulse $\tau = 10 \mu\text{sec}$ is constant. For clarity, only results at temperatures $T = 3.8, 10$ and 21 mK are shown. The full line is drawn to compare with theoretical P^3 dependence in low power limit.

Fig. 2 : Amplitude decay of spontaneous echoe with time interval τ between $\pi/2$ and π pulse. The results at the fixed temperature $T = 3.8 \text{ mK}$ are shown for different values of the incident power P . The slopes of the full lines are a measure of the memory time T_2 .

Fig. 3 : Amplitude decay of the stimulated echoe versus time interval T between second and third pulse, at different temperatures. The input pulse power is held constant at the minimum value of $P = -45 \text{ dBm}$. The slopes of the full lines are a measure of T_1 .

- /1/ J.C. LASJAUNIAS, A. RAVEX, M. VANDORPE, S. HUNKLINGER
Solid State Com. 17, 1045 (1975)
- /2/ W. ARNOLD, S. HUNKLINGER, S. STEIN, K. DRANSFELD
J. Non Crystalline Solids, 14, 192 (1974)
- /3/ P.W. ANDERSON, B.I. HALPERIN, C.M. VARMA
Phil. Mag. 25, 1 (1972)
- W.A. PHILLIPS.
J. Low Temp. Phys. 7, 351 (1972)
- /4/ L. PICHE, R. MAYNARD, S. HUNKLINGER, J. JÄCKLE
Phys. Rev. Lett. 32, 1426 (1974)
- /5/ M.V. SCHICKFUS, S. HUNKLINGER, L. PICHE
Phys. Rev. Lett. 35, 876 (1975)
- /6/ C. LAERMANS, W. ARNOLD, S. HUNKLINGER
J. Phys. C. 10, L-161 (1977)
- /7/ P. DOUSSINEAU, A. LEVELUT, T.-T. Ta
Journal de Physique Lettres 38, L 37 (1977)
- /8/ A. BACHELLERIE, P. DOUSSINEAU, A. LEVELUT, T-T Ta
Journal de Physique, 38, 69 (1977)
- /9/ B. GOLDING, J.E. GRAEBNER
Phys. Rev. Lett., 37, 852 (1976)
- /10/ Suprasil I samples where obtained from Heraeus-France, and contain
less than 0,5 ppm metallic ions and about 1200 ppm OH⁻ ions.
- /11/ G. SCHUMACHER
Thèse d'Etat "Refrigeration par Dilution d'³He dans le ⁴He dans
la région du Millikelvin" Grenoble, Avril 1978.

.../...

- /12/ J.L. BLACK
Ph. D Thesis, Harvard University, Cambridge - Massachusets (1977)
- /13/ J. JÄCKLE, L. PICHE, W. ARNOLD, S. HUNKLINGER
J. Non Crystalline Solids 20, 365 (1976)
- /14/ V. NARAYANAMURTHI, R.O. PÖHL
Rev. Mod. Phys. 42, 201 (1970)

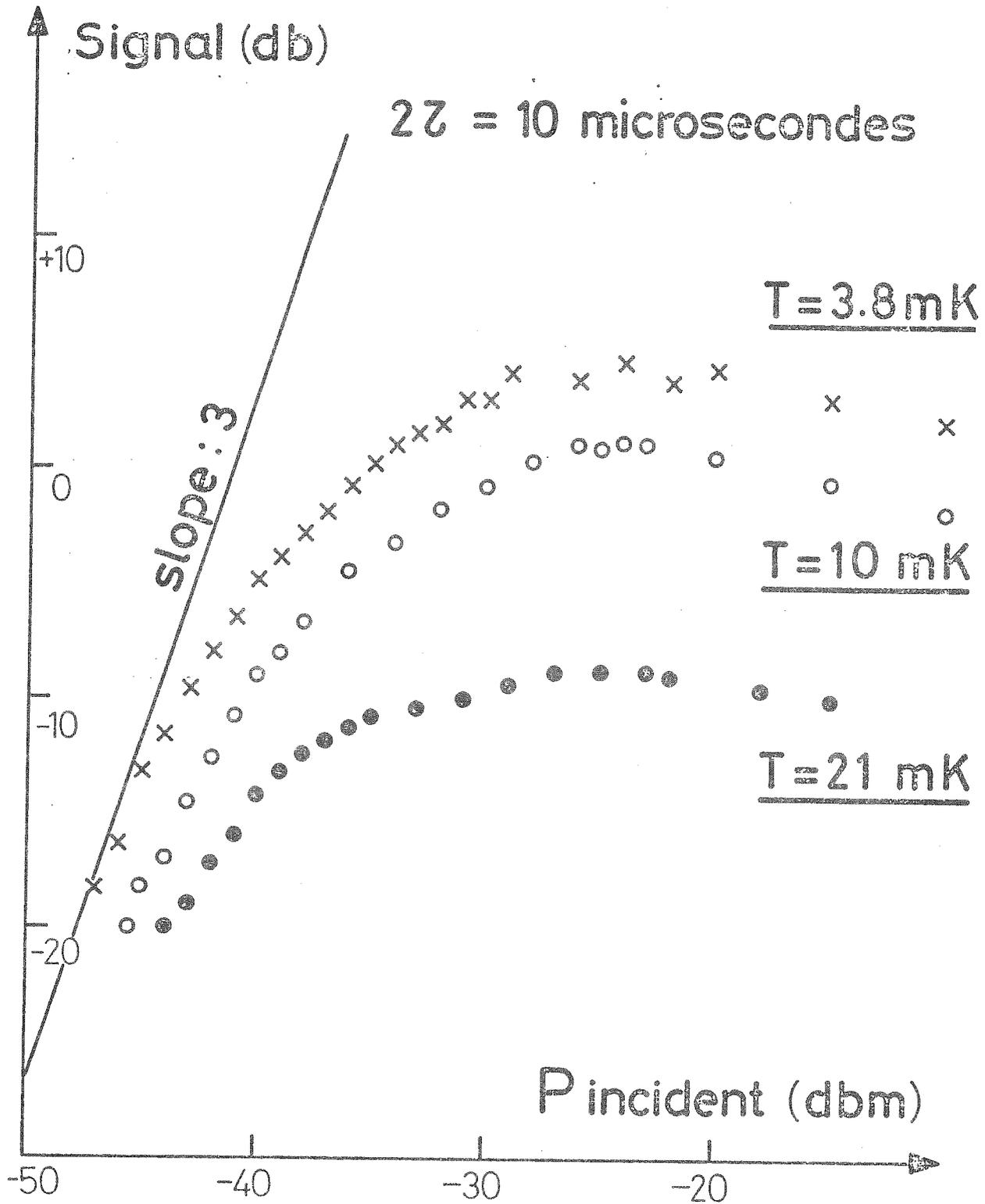


FIGURE 1

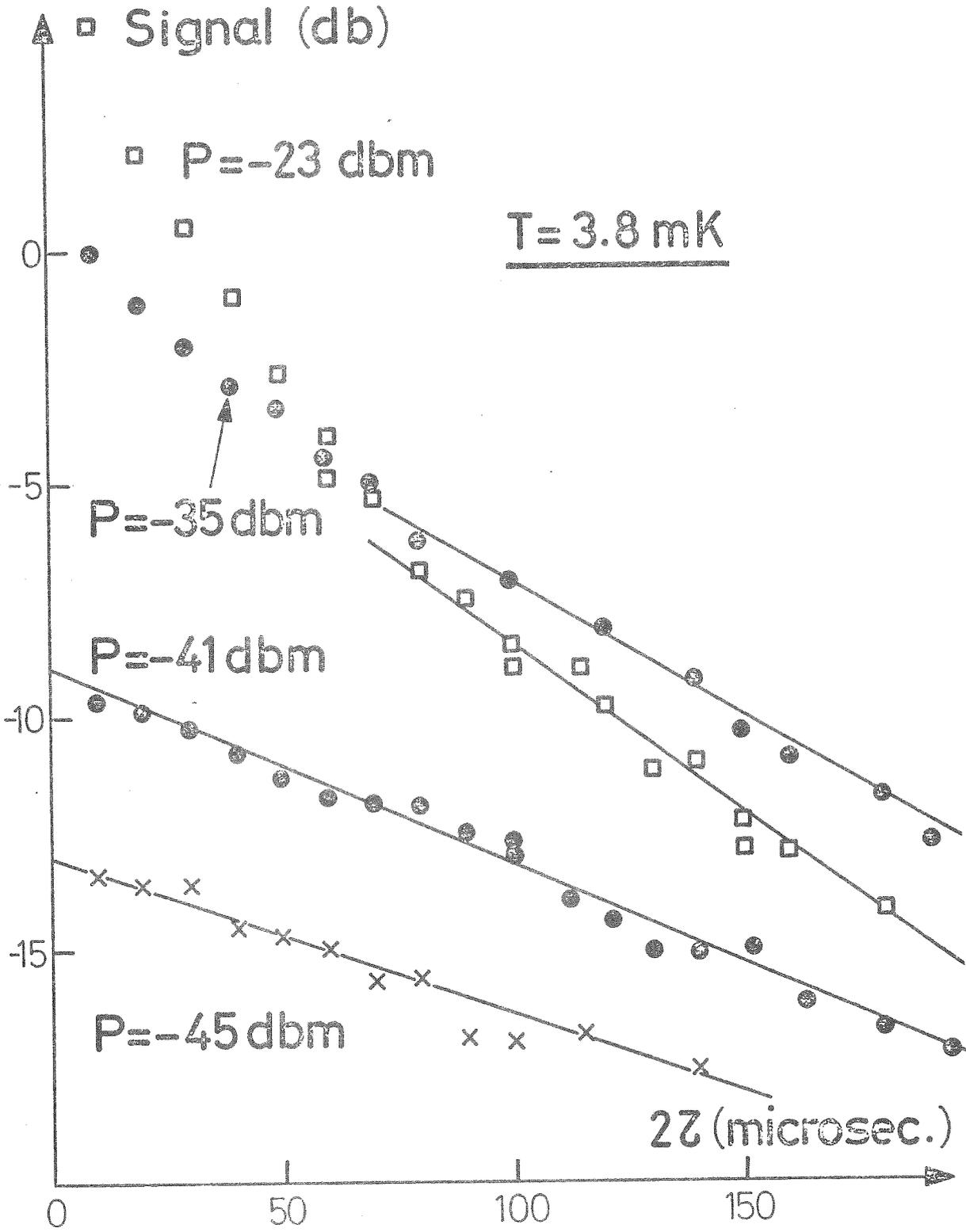


FIGURE 2

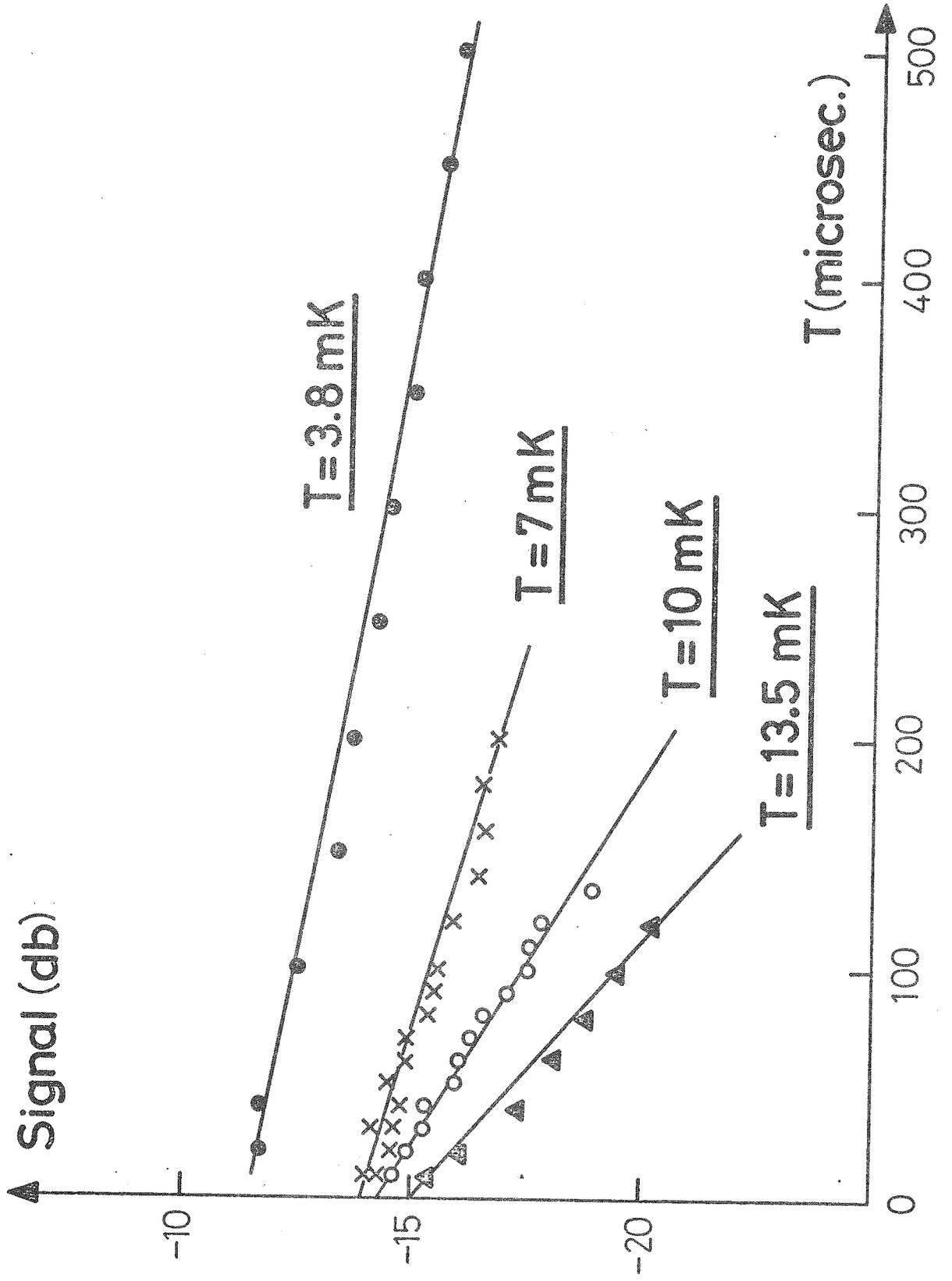


FIGURE 3

