

Thèse

présentée par

Christopher BÄUERLE

pour obtenir le titre de docteur
de l'université Joseph Fourier - Grenoble 1
(Arrêtés ministériels du 5 Juillet 1984 et du 30 Mars 1992)

Spécialité: Physique

L'³He adsorbé sur du graphite: Un système modèle pour la physique des Fermions en interaction à deux dimensions

Date de soutenance: 15.11.1996

Composition du jury:

S. Balibar	(Rapporteur)
B. Bernu	(Rapporteur)
H. Godfrin	
P. Nozières	(Président)
L. Puech	
O. Avenel	(Invité)
M. Roger	(Invité)

Thèse préparée au sein du Centre de Recherches sur les Très Basses Températures
- Centre National de la Recherche Scientifique -

Remerciements

Ce travail a été effectué au Centre de Recherche sur les Très Basses Températures. Je suis reconnaissant à Monsieur P. Monceau, son directeur, de m'y avoir accueilli.

Je tiens à exprimer mes remerciements à tous les membres du jury de thèse. Je remercie en particulier M. Nozières de l'honneur qu'il m'a fait en présidant ce jury. Je remercie également M. Avenel, M. Balibar, M. Bernu, M. Puech et M. Roger pour leur participation au jury.

Je remercie mon directeur de thèse, Henri Godfrin, qui m'a encadré tout au long de ma thèse avec sagacité et enthousiasme en me laissant toujours m'exprimer très librement sur le sujet.

Je tiens également à remercier Bob Hallock, mon responsable de stage à l'université de Massachusetts, qui m'a recommandé auprès de Henri Godfrin.

Je remercie H. Lauter qui m'a permis de réaliser des mesures de neutrons à l'ILL.

C'est avec plaisir que je remercie les autres membres de notre groupe, Jacques Bossy, Klaus-Dieter Morhard, Raul Rapp et en particulier Yuri Bunkov et Shaun Fisher qui m'ont fait profiter de leur expérience dans la technique des ultra basses températures.

Mes remerciements s'adressent aussi à tous les autres membres du laboratoire qui ont apporté une contribution importante à ce travail. Je remercie en particulier Christian Gianèse et Jean-Louis Bret.

Un grand merci aussi au personnel du service de liquéfaction d'avoir toujours assuré l'approvisionnement en hélium, indispensable à nos expériences.

Je remercie mes amis, Anne-Sophie, Bertrand, Olivier, Peter, Raphaël, Roch et Valérie qui m'ont beaucoup aidé à corriger ma thèse.

Enfin je remercie mes parents sans lesquels je n'aurais pas pu poursuivre mes études.

Abstract

In this thesis we present studies of two-dimensional (2D) ^3He films adsorbed on graphite using high precision NMR as a probe.

One series of measurements present an extensive study of the phase diagram of the second atomic layer of ^3He adsorbed on graphite.

Our measurements show that the second layer solidification is characterized by a linear increase of the density of the second layer solid as a function of the total coverage. The magnetic properties of the liquid and solid phase stay invariant in this regime.

We observe that the second layer solidifies into a pure antiferromagnetic phase. The antiferromagnetic exchange interaction J_{AF} of the second layer solid is essentially independent on coverage. Our magnetization measurements imply a locking of the second layer solid into a stable $4/7$ commensurate phase. This ratio is determined accurately from the measured magnetization of the first and second layer. We find no evidence for the existence of the proposed $2/3$ commensurate phase.

We present for the first time measurements of the antiferromagnetic phase at temperatures below the characteristic exchange energy. The magnetic susceptibility deviates substantially from Curie Law behavior at these low temperatures. This might be an evidence for an inplane multiple spin exchange mechanism in the second layer.

The regime where the magnetization changes from an antiferromagnetic (AF) to a ferromagnetic (FM) behavior is characterized by a rapid increase of the magnetization and the effective exchange constant as a function of coverage. We do not find any support for the different models proposed to describe this coverage region.

We have investigated the field dependence of the low temperature magnetization of the second layer solid corresponding to the ferromagnetic anomaly. Using a large coherence length substrate (Papyex) allowed us to suppress the uniform spin rotation mode and to reduce the spin-wave gap due to the finite size of the graphite platelets. As a consequence, we have been able to observe for the first time the regime where the spin-wave gap of the 2D nuclear ferromagnet is determined by the magnetic field.

Liquid ^3He films of the second atomic layer were studied down to temperatures never investigated before. We observe that the properties of the 2D Fermi liquids is independent of the adsorption potential and can be described by the phenomenological expression proposed by Dyugaev, with a single parameter T_F^{**} , the effective Fermi temperature. At the highest densities, we obtain susceptibility enhancement factors on the order of 45 which is a factor of two higher compared to the 3D system. We show for the first time that 2D Fermi liquids are described well by the almost localized model in the high density regime. At very low temperatures we observe an unexpected increase of the susceptibility. This observation might be explained by a weak localization.

Another experiment concerned the study of bulk superfluid ^3He at ultra low temperatures. During studies of the impact of single neutrons on superfluid ^3He at around $100\ \mu\text{K}$ we have measured the thermal energy released in the superfluid following the nuclear reaction $n + ^3\text{He} \rightarrow p + ^3\text{H} + 764\text{keV}$. However, we find that the measured energy deposited in the quasi-particle system shortly after this reaction is substantially less than what we expect. We believe that this energy deficit represents the energy which has gone into the creation of vortices, in analogy to the creation of cosmic strings in the early universe via the Kibble mechanism. Furthermore, from the magnitude of the deficit, we can infer the vortex density which compares favorably with that predicted in Zurek's scenario.

Résumé

Dans ce mémoire nous présentons des mesures des films d' ^3He adsorbé sur du graphite étudiés par RMN.

Des mesures systématiques ont été réalisées pour la deuxième couche d' ^3He adsorbé sur du graphite. Elles représentent l'étude la plus détaillée dans cette région du diagramme de phases effectuée jusqu'à présent. Nos mesures de haute précision avec une très fine grille de taux de couverture nous permet une détermination du diagramme de phases avec beaucoup de précision.

Nous avons pu montrer que la région de coexistence liquide-solide est caractérisée par une dépendance linéaire de la quantité du solide (ou du liquide) en fonction de la densité totale du film et par l'invariance des propriétés magnétiques du liquide et du solide. Nos mesures montrent que la phase $4/7^{\text{ème}}$ est stable dans une certaine plage de densités. Par contre, nos résultats infirment l'hypothèse de l'existence d'une phase $2/3$, avancée par Greywall.

Nous présentons pour la première fois des résultats pour le solide antiferromagnétique dans un régime où la température est inférieure à l'énergie d'échange. Nos mesures montrent que l'aimantation ne peut pas être décrite par une série HTAF pour des températures au-dessous de 2 mK. Des calculs de Monte Carlo quantique pour la deuxième couche sont attendus afin de décider si un tel comportement peut être décrit par le modèle d'échange multiple.

Grâce à la précision et la fine grille de nos mesures nous pouvons écarter les deux modèles proposés pour expliquer l'évolution du magnétisme des films d' ^3He adsorbé, où l'aimantation bascule très rapidement d'un comportement antiferromagnétique vers un comportement ferromagnétique. Des calculs des fréquences d'échange en fonction de la densité devraient être effectués dans le cadre du modèle d'échange multiple afin de vérifier si l'évolution des propriétés magnétiques des films d' ^3He peut être expliquée par un échange dans la deuxième couche, ou si l'échange indirect *via* le liquide a une influence importante sur le magnétisme de la deuxième couche.

Nous avons effectué des mesures de l'aimantation du solide ferromagnétique en fonction du champ magnétique à une densité correspondant à l'anomalie ferromagnétique. L'utilisation d'un nouveau substrat de graphite exfolié (Papyex) nous permet d'étudier l'influence des effets de taille sur l'aimantation. Nos résultats sont bien décrits par la théorie des ondes de spin de Kopietz *et al.*. Ces mesures constituent une première exploration du régime pour lequel le gap du spectre des ondes de spin est dominé par le champ magnétique.

Nous observons des liquides de Fermi bidimensionnels extrêmement corrélés. Des facteurs de renforcement de 45 sont obtenus, soit 2 fois plus grands que pour l' ^3He liquide massif. Nous montrons pour la première fois que l' ^3He liquide à deux dimensions à des densités élevées est décrit semi-quantitativement par le modèle des Fermions presque localisés. A très basse température nous observons une augmentation de l'aimantation assez surprenante. Cette augmentation est en accord qualitatif avec une localisation faible du type Anderson à deux dimensions.

Nous avons réalisé une expérience sur l' ^3He superfluide massif qui permet de tester expérimentalement la théorie de Kibble sur la création des cordes cosmiques lors de transitions de phases rapides. Nous avons observé que l'énergie déposée par une réaction nucléaire $n + ^3\text{He}$ n'est pas entièrement convertie en quasiparticules. Le déficit en énergie peut être expliqué par la création de défauts topologiques (vortex) pendant une transition rapide entre l' ^3He normal et l' ^3He superfluide. En utilisant un modèle simple pour le processus de refroidissement, nous obtenons des valeurs pour la densité des vortex qui sont en bon accord avec les prédictions de Zurek pour la création de cordes cosmiques par le mécanisme de Kibble. Ces mesures ont permis de tester pour la première fois de manière quantitative le mécanisme proposé théoriquement pour la création de cordes cosmiques dans l'univers primordial.

Table des matières

1	Introduction	9
2	Dispositif expérimental	13
2.1	Le réfrigérateur à désaimantation nucléaire	13
2.1.1	Mesure de la résistance de Kapitza	16
2.1.2	Le principe de la réfrigération nucléaire	17
2.1.3	Les étages à désaimantation nucléaire	19
2.2	La thermométrie	23
2.2.1	Thermomètres à résistance	23
2.2.2	Thermomètres de CMN	24
2.2.3	Thermomètre à courbe de fusion de ^3He	28
2.2.4	Thermomètre à RMN du platine	29
2.2.5	Thermomètre à fil vibrant	31
2.2.6	Thermomètre à RMN de ^3He adsorbé sur du graphite	31
2.3	Les spectromètres à RMN continue	33
2.3.1	Spectromètre à basse fréquence	34
2.3.2	Spectromètre à froid	34
2.4	Les cellules expérimentales	40
2.4.1	La cellule de basse fréquence	40
2.4.2	Les cellules pour $T < 1\text{ mK}$	40
3	Diagramme de phases de ^3He adsorbé sur du graphite	43
3.1	Le graphite comme substrat	43
3.2	Les diagrammes de phases	43
3.2.1	La première couche	44
3.2.2	La deuxième couche	45

3.3	Echelles de taux de couverture	47
3.3.1	Isotherme d'adsorption de $l^3\text{He}$	47
3.3.2	Echelle de Grenoble	48
3.3.3	Isotherme d'adsorption de N_2	49
3.3.4	Echelle de taux de couverture mesurée aux neutrons	52
3.4	Conclusion	53
4	Les films d'^3He pur: Une étude systématique	55
4.1	La première couche	57
4.1.1	Les sites de forte adsorption	57
4.1.2	Etalonnage du spectromètre à RMN	58
4.1.3	Forme de raie et décalage en fréquence	59
4.1.4	La largeur des raies de RMN	62
4.2	La deuxième couche	64
4.2.1	Le liquide	64
4.2.2	La solidification	66
4.2.3	Modèles d'échange pour $l^3\text{He}$ adsorbé sur du graphite	72
4.2.4	Le solide antiferromagnétique	77
4.2.5	Les mesures à des températures inférieures à 2 mK	84
4.2.6	Evolution de l'antiferromagnétisme vers le ferromagnétisme	89
4.2.7	Au-delà de la deuxième couche	101
5	Solide ferromagnétique	103
5.1	Modèle d'Heisenberg et théorie des ondes de spin	104
5.2	Mesures expérimentales	106
5.3	Conclusion	110
6	Films d'^3He liquide	111
6.1	Gaz de Fermi bidimensionnel	112
6.1.1	Théorie de Landau	113
6.1.2	Modèle des paramagnons	115
6.1.3	Modèle des Fermions presque localisés	115
6.2	Mesures expérimentales	117
6.2.1	Comportement à très basse température	126

6.3 Conclusion	130
7 Création des vortex après une transition de phase rapide dans l'³He superfluide	131
7.1 Mesures expérimentales	131
7.2 Conclusion	139
8 Conclusions et perspectives	143
A Taux de couverture	147
A.1 Expériences sur les films ³ He/ ⁴ He/Gr	147
A.2 Expériences sur les films d' ³ He pur	147
B Développement en série hautes températures (HTSE)	149
C Images du graphite exfolié	151

Liste des figures

2.1	Photographie du réfrigérateur à désaimantation nucléaire	14
2.2	Conception de la boîte à mélange démontable	15
2.3	Résistance thermique d'un fritté d'argent en fonction de la température	17
2.4	Cycle de refroidissement	18
2.5	Schéma de l'étage à désaimantation nucléaire et des cellules expérimentales	20
2.6	Photographie de la cellule expérimentale montée sur l'étage à désaimantation nucléaire	22
2.7	Etalonnage d'un thermomètre à résistance du type Speer 100 Ω	24
2.8	Schéma d'un thermomètre de CMN	25
2.9	Différentes étapes de la construction d'un thermomètre de CMN	26
2.10	Etalonnage d'un thermomètre de CMN	27
2.11	Etalonnage du thermomètre à courbe de fusion	28
2.12	Schéma du thermomètre à RMN du platine	29
2.13	Etalonnage du thermomètre à RMN du platine	30
2.14	Etalonnage du thermomètre à RMN de l' ^3He adsorbé	32
2.15	Schéma d'un spectromètre à RMN	33
2.16	Schéma de l'ensemble du spectromètre à RMN en utilisant un préamplificateur à froid	35
2.17	Tension de bruit du préamplificateur à froid	36
2.18	Bruit en courant du préamplificateur à froid	37
2.19	Schéma d'une cellule expérimentale	42
3.1	Diagramme de phases de la première couche d' ^3He adsorbé sur du graphite	44
3.2	Diagramme de phases de la deuxième couche d' ^3He adsorbé sur du graphite	46
3.3	Isotherme d'adsorption de l' ^3He à une température de 4.2 K	48
3.4	Solidification de la première couche mesurée par RMN	49

3.5	Isotherme d'adsorption de N_2 à une température de 74 K	50
3.6	Comparaison des isothermes d'aimantation et de chaleur spécifique	51
3.7	Densité du film d' 3He adsorbé mesurée par diffraction de neutrons	52
3.8	Evolution de la surface du substrat en fonction de la densité	53
4.1	Evolution de l'aimantation d'un film d' 3He en fonction de la température et de la densité	56
4.2	Aimantation des atomes fortement localisés en fonction de l'inverse de la température	57
4.3	Constante de Curie par unité de volume d' 3He adsorbé d'un film d' 3He solide en sous-monocouche	58
4.4	Raies de RMN mesurées à différentes températures	59
4.5	Décalage en fréquence des raies de RMN en fonction de la polarisation	60
4.6	Raie de RMN à une température de 200 μK	61
4.7	Largeur de raie de RMN en fonction de la température	62
4.8	Produit de l'aimantation et de la température en fonction de la température pour des densités qui varient sur une grande plage de taux de couverture	65
4.9	Isothermes d'aimantation du liquide en deuxième couche	66
4.10	Solidification de la deuxième couche	67
4.11	Produit de l'aimantation et de la température en fonction de la température dans le régime de coexistence liquide-solide en deuxième couche	68
4.12	Quantité de solide en fonction de la densité du film d' 3He adsorbé	70
4.13	Isothermes d'aimantation et de chaleur spécifique dans le régime de coexistence liquide-solide	70
4.14	Permutations des particules dans l'échange multiple	73
4.15	Structure de la phase commensurable de la deuxième couche	77
4.16	Chaleur spécifique en fonction de densité de la deuxième couche	78
4.17	Isotherme de l'aimantation et de la chaleur spécifique dans le régime de coexistence solide-solide	79
4.18	Constante d'échange en fonction de la densité totale du film dans le régime antiferromagnétique	80
4.19	Aimantation normalisée dans le régime de l'antiferromagnétisme pur pour différentes températures	82

4.20	Aimantation en fonction de la température d'un film d' ^3He solide adsorbé sur une couche d' ^4He dans le régime antiferromagnétique	84
4.21	Chaleur spécifique en fonction de la température pour un film d' ^3He solide dans le régime antiferromagnétique	86
4.22	Produit de l'aimantation en fonction de la température pour le solide antiferromagnétique	88
4.23	Déviaton de l'aimantation par rapport à la loi de Curie en fonction de T/J_{eff}	88
4.24	Densité de la deuxième et de la troisième couche en fonction de la densité totale du film d' ^3He	92
4.25	Densité corrigée de la deuxième et de la troisième couches en fonction de la densité totale du film d' ^3He	94
4.26	Isothermes d'aimantation dans le régime de transition de l'antiferromagnétisme vers le ferromagnétisme	95
4.27	Isothermes d'aimantation dans le régime de transition de l'antiferromagnétisme vers le ferromagnétisme	96
4.28	Constante d'échange en fonction de la densité totale	98
4.29	Aimantation et constante d'échange en fonction de la densité du liquide en troisième couche.	100
5.1	Gap du spectre des ondes de spin pour le modèle d'Heisenberg ferromagnétique	105
5.2	Aimantation en fonction de la température	107
5.3	Susceptibilité en fonction de la température	107
5.4	Comportement de l'aimantation à basses températures du solide en deuxième couche	108
5.5	Longueur de corrélation	109
6.1	Produit de l'aimantation et de la température en fonction de la température d'un film d' ^3He liquide en deuxième couche adsorbé sur une couche d' ^3He	118
6.2	Produit de l'aimantation et de la température en fonction de la température d'un film d' ^3He liquide en deuxième couche adsorbé sur une couche d' ^4He	119
6.3	Température de Fermi effective T_F^{**} en fonction de la densité du liquide	120
6.4	Renforcement de la susceptibilité en fonction de la densité du liquide	121
6.5	Masse effective réduite en fonction de la densité du liquide	123

6.6	(a): Masse effective réduite en fonction du renforcement de la susceptibilité (b): Paramètre de Landau F_0^a en fonction de m/m^*	124
6.7	Produit de la susceptibilité et de la température en fonction de T/T_F^{**} pour plusieurs densités	125
6.8	Aimantation en fonction de la température d'un film d' ^3He adsorbé sur une couche d' ^4He	126
6.9	Aimantation en fonction de la température d'un film d' ^3He liquide adsorbé sur une couche d' ^4He	127
6.10	Aimantation en fonction de la température d'un film d' ^3He liquide adsorbé sur une couche d' ^4He	128
6.11	Chaleur spécifique d'un film d' ^3He liquide	129
7.1	Bolomètre d' ^3He superfluide	133
7.2	Spectre de température mesuré par un fil vibrant	134
7.3	Étalonnage en énergie du bolomètre	135
7.4	Ajustement d'un pulse d'étalonnage	136
7.5	Étalonnage en énergie du bolomètre pour différents pressions	137
7.6	Histogrammes d'énergie pour $p = 0$ bar	138

Chapitre 1

Introduction

Les propriétés des systèmes à basse dimensionalité sont l'objet d'une recherche intense depuis plusieurs années. En effet, le magnétisme à basse dimensionalité présente un grand intérêt du point de vue fondamental mais également du point de vue des applications (enregistrement magnétique). La plupart des recherches dans ce domaine a été effectuée sur des systèmes électroniques (voir l'article de revue de de Jongh [1]). Cependant, ces systèmes "à deux dimensions" présentent des transitions d'ordre à très basse température, ce qui fait que ces systèmes devraient plutôt être considérés comme systèmes quasi-tridimensionnels.

Un autre type d'aimants à basse dimensionalité est obtenu par adsorption de l' ^3He sur un substrat. En sous-monocouche, ces systèmes peuvent être considérés comme parfaitement bidimensionnels. Les films d' ^3He solide présentent des propriétés remarquables à des températures de l'ordre du millikelvin. Ils montrent une variété fascinante de phases structurales et magnétiques.

Les films d' ^3He liquide adsorbé sur du graphite constituent également des systèmes modèles pour l'étude des fluides quantiques à deux dimensions. Le fait que l'on puisse varier expérimentalement la densité surfacique sur une grande plage permet d'étudier des liquides dans des régimes très différents allant des gaz quantiques sans interactions aux liquides de Fermi fortement corrélés.

L'étude des films d' ^3He adsorbé peut être réalisée par différentes méthodes. Citons en particulier la chaleur spécifique, la résonance magnétique nucléaire (RMN) et la diffraction de neutrons. La diffraction de neutrons donne directement accès à la structure des phases solides. La mesure de la chaleur spécifique est sensible à la présence des phases liquides et des phases solides avec des interactions magnétiques, tandis que la RMN est surtout sensible à celle des phases solides. Ces techniques fournissent donc des informations complémentaires sur les propriétés des films d' ^3He adsorbé.

Les premières mesures d' ^3He adsorbé sur du graphite à basse températures (50 mK - 7 K) ont été réalisées par le groupe de Seattle [2]. Des phases gazeuses et solides bidimensionnelles ont été identifiées par des mesures de chaleur spécifique. Les premières mesures à très basse température ont été réalisées à Grenoble afin d'étudier l'ordre magnétique des phases solides [3]. Des mesures de neutrons ont été également faites à Grenoble [4]. Ces premières expériences ont été suivies par les mesures de chaleur spécifique à très basse température de Greywall [5]. Plus récemment des mesures par RMN des films solides ont été effectuées par le groupe de Londres dans la gamme de température du millikelvin sur le graphite recouvert de monocouches de gaz rares [6], et pour des températures jusqu'à 0.1 mK par le groupe de Stanford [7]. Des mesures très récentes de chaleur spécifique ont été réalisées jusqu'à 0.8 mK par le groupe de Londres [8] et jusqu'à 0.2 mK par le groupe de Tsukuba [9].

Le but de ce travail de thèse sur le plan instrumental était de mettre au point un système permettant la mesure de RMN de signaux extrêmement petits à ultra basse température. Du point de vue de la physique, l'objectif était d'une part l'étude détaillée du diagramme de phases de la deuxième couche atomique et d'autre part l'étude des propriétés magnétiques de ^3He adsorbé à ultra basse température, dans le régime où la température est inférieure à l'énergie d'échange caractéristique.

La thèse est divisée en huit chapitres:

- Dans le chapitre 2 nous décrivons la totalité du dispositif expérimental: le réfrigérateur à désaimantation nucléaire, les thermomètres, le spectromètre de RMN et les différentes cellules expérimentales qui ont été développés.
- Dans chapitre 3 nous décrivons le diagramme de phases de ^3He adsorbé sur du graphite, puis nous discutons en détail le problème des échelles de couverture.
- Une étude systématique des films d' ^3He pur adsorbé sur du graphite est présentée dans le chapitre 4. La partie principale de ce chapitre concerne les phases solides de la deuxième couche.
- Dans le chapitre 5 nous présentons des mesures sur le solide ferromagnétique. En particulier nous étudions l'effet du champ et de la taille du système sur l'aimantation à basse température.
- Les phases liquides seront étudiées en détail dans le chapitre 6. Nous nous intéressons en particulier aux liquides en deuxième couche. Dans ce chapitre nous présentons pour la première fois des mesures sur le liquide à ultra basse température.

- Dans le chapitre 7 nous présentons des mesures sur la création des vortex dans l' ^3He superfluide massif après une réaction nucléaire entre un neutron et un atome d' ^3He , et nous discutons les résultats dans le contexte d'une analogie avec certaines théories cosmologiques. Cette expérience ouvre une nouvelle voie de recherche dans le domaine des ultra basses températures.
- Les résultats sont résumés dans le chapitre 8.

Chapitre 2

Dispositif expérimental

Ce deuxième chapitre décrit l'ensemble du dispositif expérimental utilisé pour les expériences réalisées au cours de cette thèse.

Nous y décrivons d'abord l'appareillage cryogénique construit durant la thèse afin de réaliser des mesures à ultra basse température. Puis nous discutons la thermométrie: les différents thermomètres construits et utilisés pendant cette thèse seront présentés.

Les deux dernières sections traitent de l'électronique de mesure qui a été mise au point, et de la construction des cellules expérimentales utilisées pour les différentes expériences.

2.1 Le réfrigérateur à désaimantation nucléaire

La figure 2.1 montre une photographie du réfrigérateur à désaimantation nucléaire, entièrement construit au laboratoire du CRTBT. Le cryostat est posé sur un support antivibratoire: un bloc de béton d'environ 700 kg en forme de "U" posé sur des amortisseurs gonflables évite les entrées de chaleur. Le cryostat comporte un réfrigérateur à dilution de forte puissance qui sert à prérefroidir l'étage à désaimantation nucléaire [12].

Lors de mon arrivée au laboratoire le cryostat était encore en construction. Seuls le support du cryostat et le système de pompage étaient installés. Au cours de cette thèse un travail considérable a donc été consacré à la mise au point de l'étage à dilution. Des mesures de performance du réfrigérateur à dilution ont été effectuées. Une température de base minimale de l'ordre de 4 mK est obtenue avec un débit d'environ 200 μ moles/s. La température de base reste relativement basse quand on augmente le débit. Ceci est important pour la circulation à fort débit nécessaire au refroidissement de l'étage à désaimantation nucléaire.

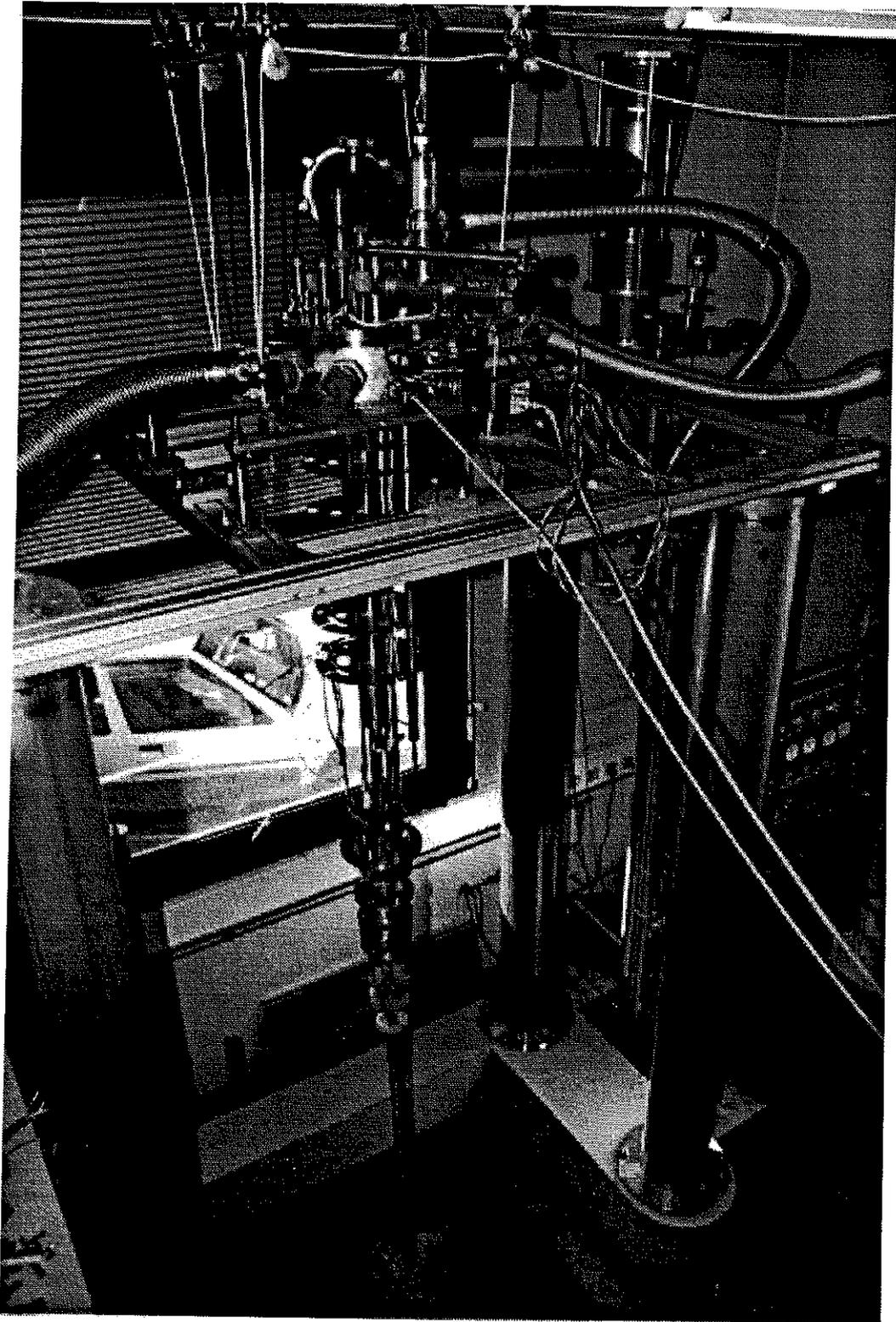


Figure 2.1: Photographie du réfrigérateur à désaimantation nucléaire construit au CRTBT.

La boîte à mélange (en plastique) est démontable. Le bouchon (joint conique en plastique) contient quatre échangeurs en argent fritté qui assurent l'échange thermique entre la boîte à mélange et l'étage à désaimantation nucléaire. Le contact thermique est assuré par des fils d'argent (diamètre de 1 mm) qui ont été incorporés dans les frittés d'argent pendant le traitement thermique. L'étanchéité du bouchon est réalisée par un mélange de savon et de glycérine. Cette conception permet de changer facilement l'étage à désaimantation nucléaire. La figure 2.2 montre un schéma de montage.

Le système de production du champ magnétique (voir figure 2.5) se compose de cinq bobines supraconductrices (American Magnetics). La partie supérieure est constituée d'une bobine de 8 Teslas qui est utilisée pour la désaimantation nucléaire.

La partie basse (région de 3 Teslas) se compose de trois bobines supraconductrices: une bobine de 3 T qui peut être utilisée pour un système de double désaimantation, une bobine de modulation utilisée pour le balayage du champ et une bobine de gradient de champ.

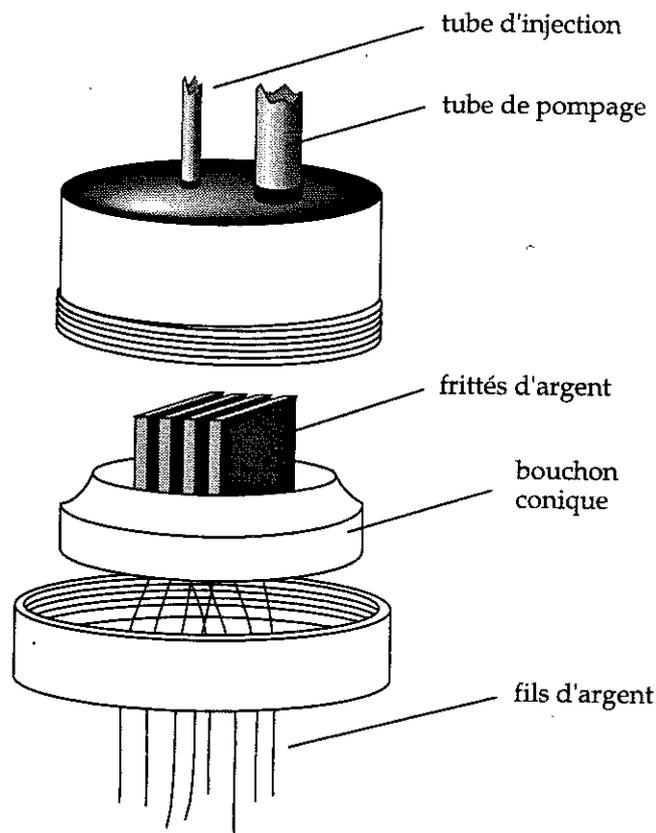


Figure 2.2: Schéma de la boîte à mélange démontable. Elle contient quatre échangeurs en argent fritté qui sont reliés à l'étage à désaimantation par des fils d'argent. La partie haute de la boîte à mélange reste toujours connectée au réfrigérateur. En cas de remplacement de l'étage à désaimantation nucléaire, le bouchon (comprenant les échangeurs en argent) est entièrement remplacé.

Des bobines de compensation (pour les bobines de 3 et 8 T) permettent d'avoir une région de champ zéro (inférieur à 1 mT pour des champs de 3 et 8 T dans les bobines principales). Les bobines de 3 et 8 T contiennent des interrupteurs thermiques qui permettent de travailler en mode "persistant". Pour nos mesures de RMN la bobine de 3 T a été utilisée comme champ principal en mode persistant et la bobine de modulation a été utilisée pour le balayage du champ magnétique.

2.1.1 Mesure de la résistance de Kapitza

La boîte à mélange contient quatre échangeurs en argent fritté, nécessaires pour l'échange thermique entre la boîte à mélange et l'étage à désaimantation nucléaire.

Pendant les essais du réfrigérateur à dilution (sans étage à désaimantation nucléaire) des mesures de la résistance de Kapitza entre de la poudre d'argent frittée (échangeurs situés dans la boîte à mélange) et une solution diluée de ^3He - ^4He ont été réalisées. Elles complètent une série de mesures effectuées à l'université de Lancaster [13] afin d'explorer l'influence de la géométrie des échangeurs frittés sur la résistance de surface. Nos mesures ont été effectuées en utilisant la géométrie qui correspond à la meilleure résistance thermique (pour $T < 10$ mK) [13] mais en utilisant une poudre d'argent avec une taille de grains plus grande [15] que celle utilisée par le groupe de Lancaster (15000 Å contre 800 Å ref. [13]). La figure 2.3 montre la comparaison de nos résultats avec ceux du groupe de Lancaster.

La valeur de la résistance *volumique* R_K (résistance thermique par unité de volume) est déduite du comportement en T^{-3} de la résistance thermique à basse température [13, 14]. Pour nos frittés on obtient une résistance volumique de $R_K = 9.8 \times 10^{-9} T^{-3} \text{ Km}^3\text{W}^{-1}$. Cette valeur doit être comparée avec la valeur $R_K = 5.6 \times 10^{-9} T^{-3} \text{ Km}^3\text{W}^{-1}$ obtenue pour une poudre dont la taille de grains est de 800 Å [13] et pour une géométrie similaire.

On observe que la résistance *volumique* R_K est très peu sensible à la taille des particules et à la surface¹ du fritté [14]. Pour la poudre dont la taille de grains est de 15000 Å R_K est seulement 75 % plus grand que pour la poudre de 800 Å.

Les ajustements représentés sur la figure 2.3 ont été faits en utilisant le modèle proposé par Cousins *et al.* [13]. Dans ce modèle, le comportement de la résistance thermique en fonction de la température peut être interprété par deux effets combinés, d'une part la résistance d'interface entre le mélange et le fritté, d'autre part la résistance thermique du mélange situé dans les pores du fritté. Ce modèle permet de comprendre le comportement de la résistance de Kapitza pour des frittés de caractéristiques très différentes.

¹La surface de nos frittés a été déterminée par une isotherme d'azote en utilisant la méthode BET [47].

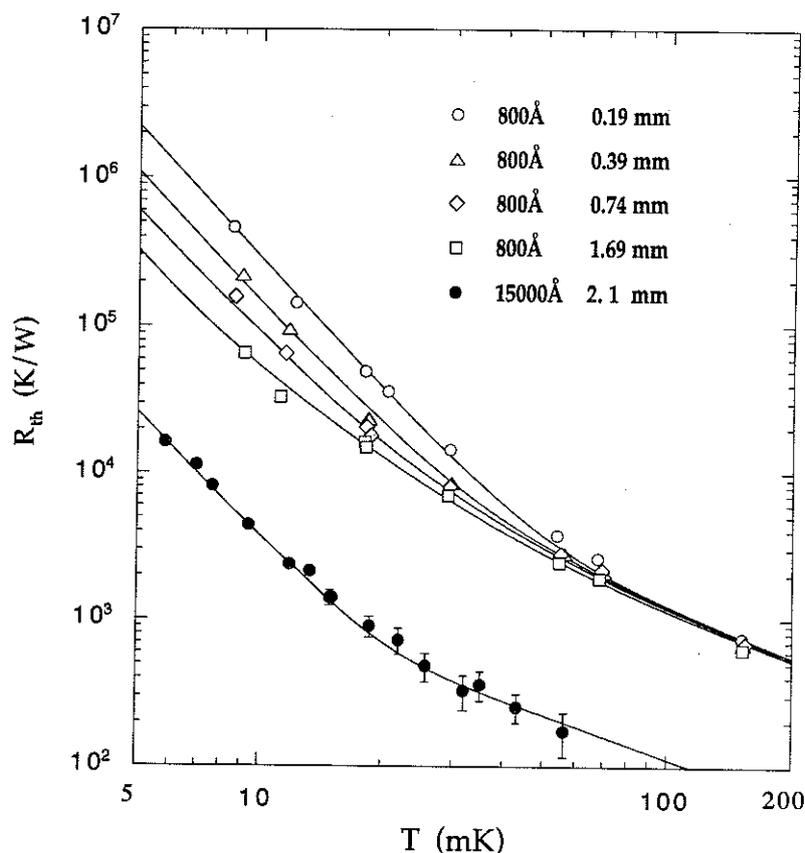


Figure 2.3: Résistance thermique des frittés d'argent en fonction de la température pour différentes tailles de grains et différentes épaisseurs du fritté. Symboles ouverts: données de la référence [13]; (●): nos mesures. Les courbes en trait plein correspondent au modèle de Cousins *et al.* (voir texte).

2.1.2 Le principe de la réfrigération nucléaire

Dans ce processus de réfrigération on se sert de l'entropie du désordre magnétique. Un ensemble de spins paramagnétiques nucléaires (l'étage à désaimantation nucléaire dans notre cas) est soumis à un champ magnétique intense (de l'ordre de plusieurs Teslas).

A haute température, les spins restent désorientés. En abaissant la température (à l'aide du réfrigérateur à dilution) l'entropie du système de spins est diminuée. Ensuite, on découple thermiquement l'étage à désaimantation nucléaire de la source froide. Le processus de refroidissement doit être adiabatique de telle sorte que l'entropie du système reste constante. En baissant le champ magnétique on obtient [18].

$$\frac{B_i}{T_i} = \frac{B_f}{T_f} \quad (2.1)$$

où B_i et T_i sont respectivement le champ et la température initiale et B_f et T_f le champ et la température finale. T_f est limitée par des interactions internes qui sont négligées dans

l'équation (2.1). Dans notre cas le processus de prérefroidissement dure environ trois jours. Les conditions initiales atteintes sont $B_i = 7.5 \text{ T}$ et $T_i = 8 \text{ mK}$.

La figure 2.4 montre l'amortissement d'un fil vibrant (fil de Tantale d'un diamètre de $250 \mu\text{m}$) placé dans de l' ^3He liquide mesuré pendant un refroidissement par désaimantation nucléaire (voir section 2.2.5 dans ce chapitre). Pour une température supérieure à 1 mK l' ^3He est normal et l'amortissement du fil augmente lorsque l'on abaisse la température. Pour une température d'environ 1 mK la viscosité de l' ^3He (proportionnelle à l'amortissement du fil) commence à chuter à cause de la transition superfluide (transition A). A une température d'environ 0.3 mK on observe une seconde transition (transition B).

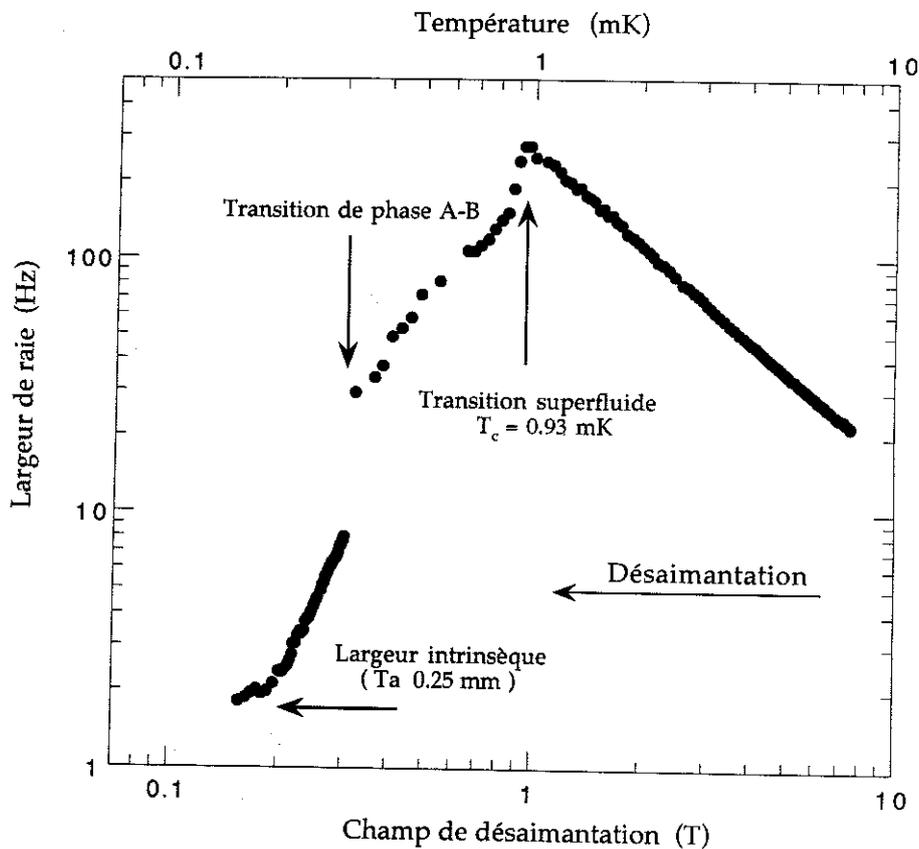


Figure 2.4: Amortissement d'un fil vibrant dans l' ^3He liquide mesuré pendant une désaimantation adiabatique nucléaire.

Pour les températures inférieures à $250 \mu\text{K}$, l'amortissement du fil est dominé par l'amortissement intrinsèque du fil vibrant. Pour mesurer des températures plus basses un fil plus fin doit être utilisé.

La température minimale que nous avons mesurée dans l' ^3He superfluide (à l'aide d'un fil vibrant de diamètre de $4.5\ \mu\text{m}$) est de $103\ \mu\text{K}$, ce qui représente un record au niveau mondial. A cette température une contribution considérable à la largeur de raie est due à l'amortissement intrinsèque du fil.

2.1.3 Les étages à désaimantation nucléaire

Au cours de cette thèse deux différents étages à désaimantation nucléaire ont été utilisés. Nous les décrivons ici brièvement tous les deux.

L'étage à désaimantation nucléaire du type Lancaster

Un étage à désaimantation nucléaire du type Lancaster a été utilisé pour des expériences sur la création de vortex dans l' ^3He superfluide après une interaction d'un neutron avec un atome d' ^3He . Cet étage a été construit par S.N. Fisher. Il se compose d'un ensemble de deux cellules entièrement remplies d' ^3He . L'une des cellules est placée à l'intérieur de l'autre.

La cellule extérieure est une cellule cylindrique en araldite d'environ 20 cm de long et d'environ 3 cm de diamètre intérieur. Elle est remplie avec de la poudre de cuivre qui sert de garde thermique pour la cellule intérieure ($T \approx 1\ \text{mK}$) après une désaimantation. Plusieurs échangeurs en argent, placés dans cette cellule, assurent le contact thermique entre la boîte à mélange et la poudre de cuivre.

A l'intérieur de celle-ci se trouve une deuxième cellule, la cellule de mesure. Elle contient un étage à désaimantation nucléaire très compact qui est constitué d'une trentaine de plaquettes en argent et en cuivre. Chaque plaquette contient une feuille de cuivre d'une épaisseur de 0.1 mm avec un échangeur en argent attaché de chaque côté. Pour mesurer la température, plusieurs thermomètres à fil vibrant sont incorporés dans la cellule intérieure. C'est dans celle-ci que les températures les plus basses sont atteintes.

Deux échangeurs situés dans la cellule extérieure sont en plus utilisés pour le refroidissement d'une deuxième cellule expérimentale. Celle-ci se trouve dans la région de champ de 3 T. Cette cellule se compose d'une cellule dite "de surface" et de trois thermomètres (un thermomètre à RMN du platine, un thermomètre de CMN et un thermomètre de carbone). Le thermomètre de CMN et le thermomètre de carbone sont situés dans la zone de champ zéro. Les détails de la cellule de surface seront décrits dans la section 2.4.

Cette seconde cellule expérimentale a été utilisée pour réaliser des mesures sur les films d' ^3He adsorbé sur du graphite en fonction du champ magnétique (voir chapitre 5). Un schéma de l'ensemble du montage incluant le système des bobines supraconductrices est détaillé sur la figure 2.5.

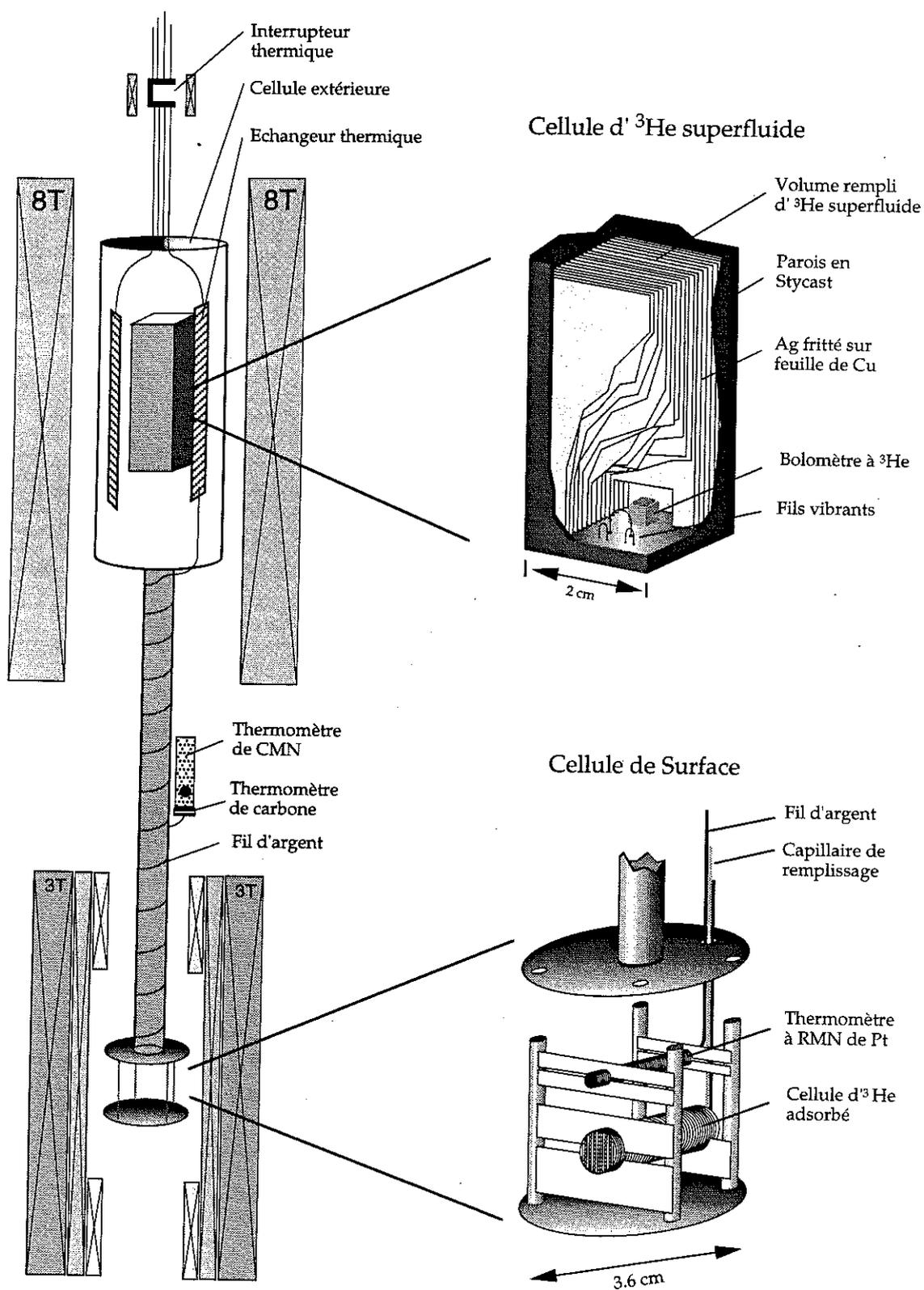


Figure 2.5: Schéma de l'étage à désaimantation nucléaire comprenant les cellules expérimentales.

L'étage à désaimantation nucléaire du type "Laminaire"

Un deuxième étage à désaimantation nucléaire a été utilisé pour des mesures de films d' ^3He adsorbé à plus basses températures. Cet étage est constitué d'un ensemble de plaquettes de cuivre soudées par diffusion thermique (méthode développée à l'institut Kapitza à Moscou [16]). Les feuilles de cuivre d'une épaisseur de 1 mm sont soudées par diffusion le long d'un fil de cuivre de section rectangulaire 1 mm \times 2 mm.

La connexion thermique entre l'étage à désaimantation nucléaire et la boîte à mélange est assurée par une dizaine de fils d'argent d'un diamètre de 1 mm soudés par pointe sur les fils de cuivre de l'étage. Ceux-ci sont connectés à la boîte à mélange en passant par un interrupteur thermique qui sert à découpler thermiquement l'étage à désaimantation nucléaire de la boîte à mélange pendant le refroidissement par désaimantation adiabatique nucléaire.

L'interrupteur thermique se compose de quatre feuilles d'aluminium (20 mm \times 15 mm \times 0.1 mm) soudées par pointe sur les fils d'argent venant de la boîte à mélange et de l'étage à désaimantation nucléaire.

Un tube en fibre de verre d'un diamètre de 3 cm est utilisé pour suspendre l'étage à désaimantation nucléaire. Une dizaine de fils de cuivre (section 1 mm \times 2 mm) sont collés le long du tube. Deux fils d'argent venant directement de la boîte à mélange sans passer par l'interrupteur thermique sont utilisés pour refroidir ce tube à travers les fils de cuivre. Ces fils de cuivre sont également utilisés pour le refroidissement du support des bobines de RMN de la cellule expérimentale et du thermomètre à RMN du platine.

Le contact avec la cellule expérimentale, comprenant une cellule de surface et un thermomètre à RMN du platine est établi par des fils d'argent connectés à l'étage à désaimantation nucléaire par une méthode de magnéto-formage. Le joint est obtenu à l'aide d'un champ magnétique pulsé. Cette méthode permet de réaliser une soudure très propre. Des images obtenues par microscopie électronique montrent qu'il n'existe aucune formation d'alliage entre l'argent et le cuivre. La figure 2.6 montre une photographie du montage de la cellule expérimentale.

Ce montage a été utilisé afin de réaliser des mesures sur les films d' ^3He liquide adsorbé sur une couche d' ^4He à des températures très inférieures à 1 mK (voir chapitre 6).

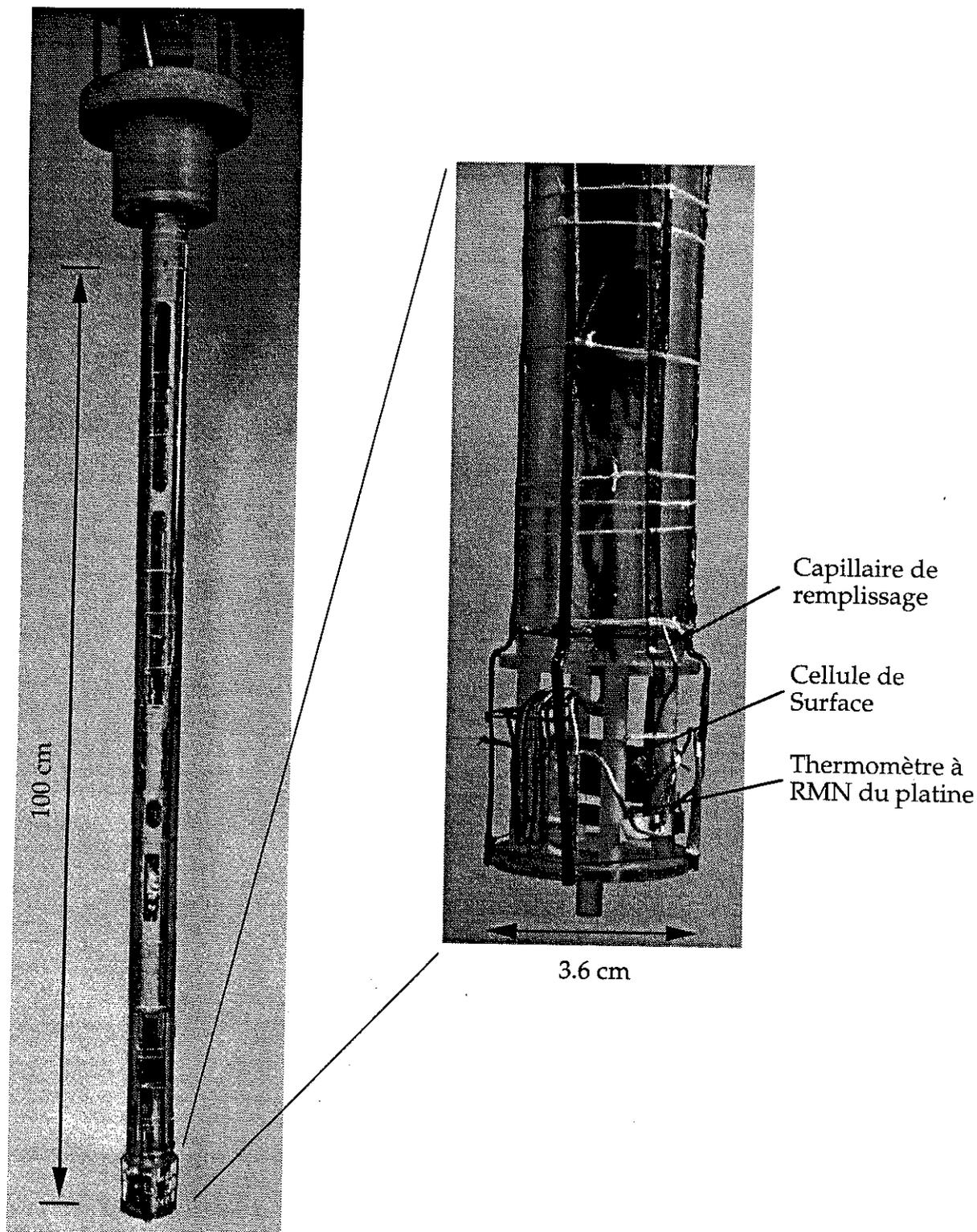


Figure 2.6: Photographie de la cellule expérimentale montée sur l'étage à désaimantation nucléaire.

2.2 La thermométrie

Les expériences sur les films d' ^3He adsorbé requièrent une thermométrie de grande précision sur une gamme de températures allant de 0.1 mK à 1 K. Les améliorations de notre spectromètre à RMN réalisées au cours de cette thèse (voir la section 3 de ce chapitre) ont augmenté la précision de nos mesures de RMN. La marge d'erreur est maintenant bien inférieure au pour cent. Comme toutes nos mesures sont effectuées en fonction de la température, la précision de nos données est limitée par l'imprécision de la mesure de la température. Par conséquent nous avons été particulièrement attentifs à la thermométrie.

Plusieurs thermomètres ont été construits et utilisés pour les différentes expériences décrites dans cette thèse. La thermométrie utilisée pour les expériences effectuées sur le réfrigérateur à dilution est basée sur un thermomètre à courbe de fusion ayant une imprécision en température inférieure au pour cent.

L'échelle de température utilisée pour les expériences en réfrigérateur à désaimantation nucléaire est basée sur des thermomètres de CMN, des thermomètres à résistance et des thermomètres à RMN du platine. Une thermométrie basée sur un thermomètre à courbe de fusion de l' ^3He serait certainement souhaitable, mais comme il s'agit ici des premières mesures réalisées sur notre réfrigérateur à désaimantation nucléaire nous avons préféré diminuer le nombre de facteurs de risque qui pourraient empêcher le refroidissement de la cellule expérimentale. Il faut souligner que le refroidissement des films d'hélium à des températures inférieures à 0.5 mK n'est pas aisé.

Les thermomètres qui ont été construits pour l'ensemble des expériences sont décrits séparément ci-dessous.

2.2.1 Thermomètres à résistance

Plusieurs thermomètres à résistance ont été construits pour l'équipement des différents étages du nouveau réfrigérateur à désaimantation nucléaire (la boîte à 1 K, l'évaporateur, la plaque froide, la boîte à mélange et l'étage à désaimantation nucléaire). Des thermomètres à résistance du type Allen Bradley (10 et 47 Ω) ont été employés pour la gamme de température entre 0.5 et 10 K. Pour la mesure de la température au dessous de 0.5 K des résistances du type Speer (100 Ω) ont été utilisées. Celles-ci ont été polies jusqu'à une épaisseur de 0.15 mm afin de réduire la constante de temps thermique. Une feuille d'argent (25 μm) a ensuite été collée autour de la résistance avec de la résine d'époxy (Stycast 1266). Ceci donne un très bon contact thermique et assure un blindage contre les radiofréquences. L'étalonnage d'un thermomètre du type Speer 100 Ω (R_{20}) est montré sur la figure 2.7.

Cette résistance a été étalonnée avec les points fixes supraconducteurs du NBS (767) et une résistance de germanium étalon. On remarque que la résistance ne sature pas encore pour une température de 5 mK. Ceci indique un bon filtrage de la radiofréquence du cryostat. Cette résistance a été utilisée pour l'étalonnage du thermomètre à RMN du platine.

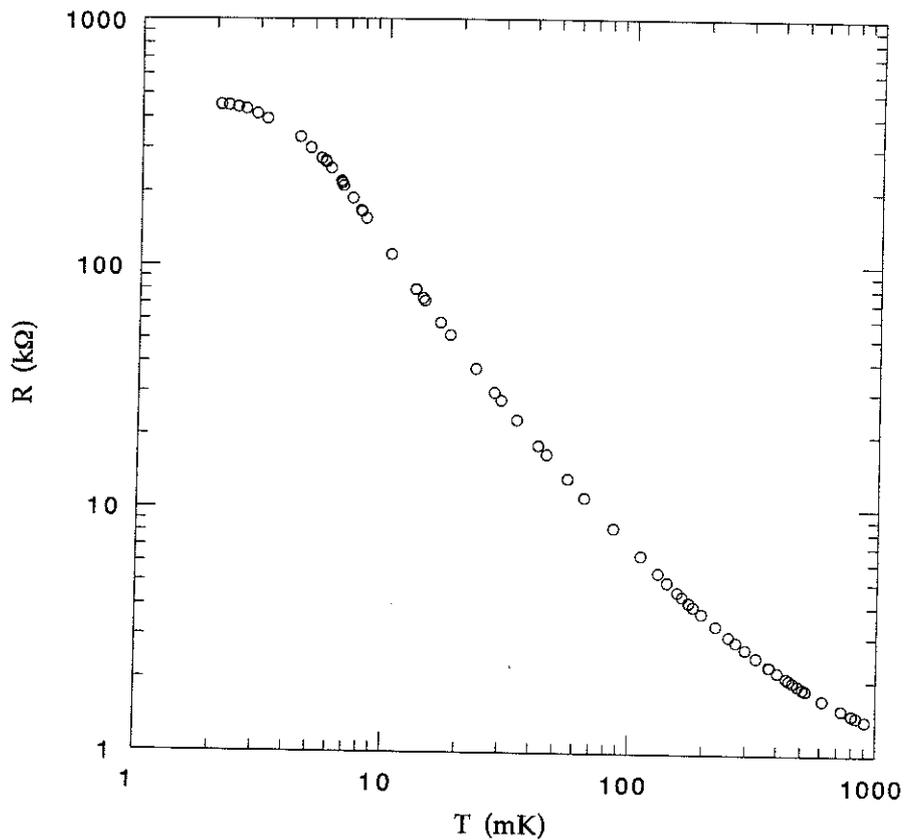


Figure 2.7: Etalonnage du thermomètre à résistance du type Speer 100 Ω (R_{20}).

2.2.2 Thermomètres de CMN

Pour les températures comprises entre 2 et 500 mK, nous avons construit des thermomètres de CMN qui sont utilisés hors de la boîte à mélange. Nous avons suivi la procédure proposée par Greywall et Bush [17]. Le schéma d'un tel thermomètre est montré sur la figure 2.8.

Il est composé d'une pastille de poudre de CMN mélangée avec de la poudre d'argent et des feuilles d'Ag assurant le contact thermique avec un support en cuivre destiné à fixer l'ensemble sur la source froide.

Des cristaux de CMN ont été pilés jusqu'à une taille d'environ 40 microns, puis mélangés avec de la poudre d'argent (Goodfellow, 50 μm , pureté 99,99 %) dans un rapport $\frac{1}{1}$ en volume (calculé à partir des masses et des densités). Le rôle de la poudre d'argent est d'augmenter

la conductivité thermique, réduisant ainsi le temps d'équilibre thermique. Puis nous avons mis ce mélange dans une presse afin de le compacter, mais également dans le but de le coller sur une feuille d'argent (Goodfellow, $25 \mu\text{m}$, pureté 99.95 %) préalablement perforée avec une épingle très fine.

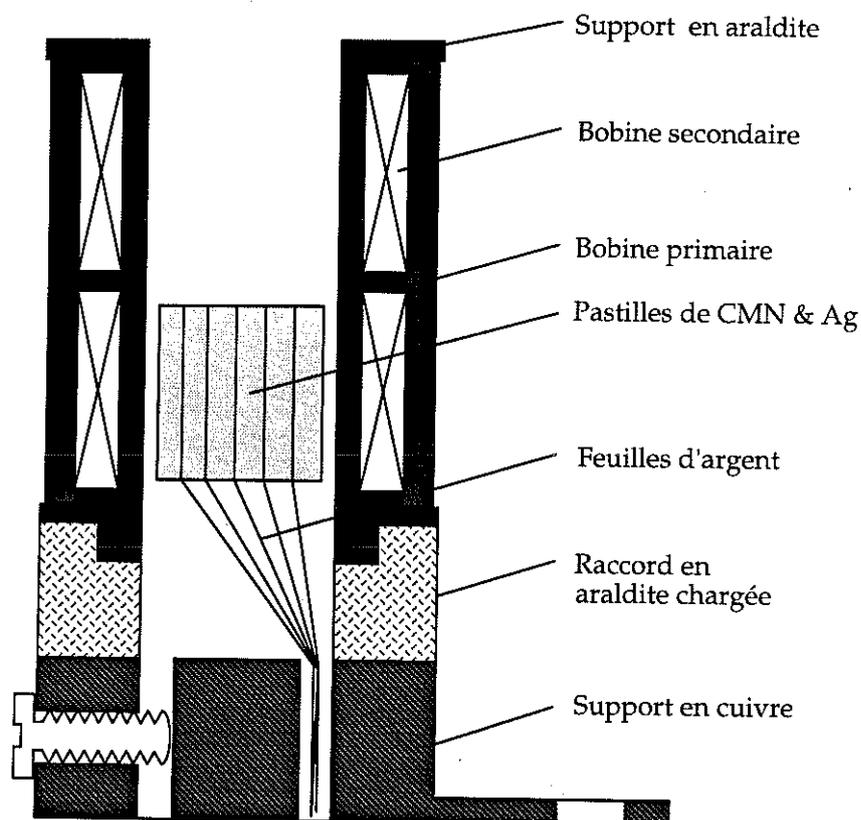


Figure 2.8: Schéma d'un thermomètre de CMN: il est composé d'un support en cuivre, d'un bloc de pastilles de CMN & Ag et d'une mutuelle comprenant deux bobines secondaires (paire astatique) et d'une bobine primaire.

Chaque pastille a ensuite été recouverte d'un petit papier à cigarette et peinte avec une couche fine d'une résine d'époxy (Stycast 1266) afin de la durcir. Puis nous avons collé les pastilles les unes sur les autres. Elles ont alors été imprégnées dans de la résine époxy (Stycast 1266), et l'ensemble a été usiné afin d'obtenir un bloc de forme cylindrique d'un diamètre d'environ 5 mm. Les différentes étapes sont montrées sur la figure 2.9.

La mutuelle est composée d'un support en araldite, de deux bobines secondaires bobinées en sens inverse (paire astatique), et d'une bobine primaire. Chacune des deux bobines secondaires est constituée d'environ 2000 spires de fil de cuivre de $40 \mu\text{m}$. Les fils sortant de la mutuelle sont incorporés dans une gaine de coton pour les protéger. Afin de constituer un support pour la bobine primaire autour de la secondaire nous avons mis de l'époxy (Stycast 1266) sur la primaire et usiné ensuite l'ensemble sur un diamètre d'environ 10 mm.

Pour la bobine primaire nous avons fait le choix du fil de Niobium pur de $70\ \mu\text{m}$ (California Wire Company). En effet une anomalie magnétique a été observée pour le fil de Niobium-Titane à une température de l'ordre de 200 mK. La bobine primaire contient 8 couches de 220 spires chacune. Les fils sortant de cette bobine sont également incorporés dans une gaine de coton.

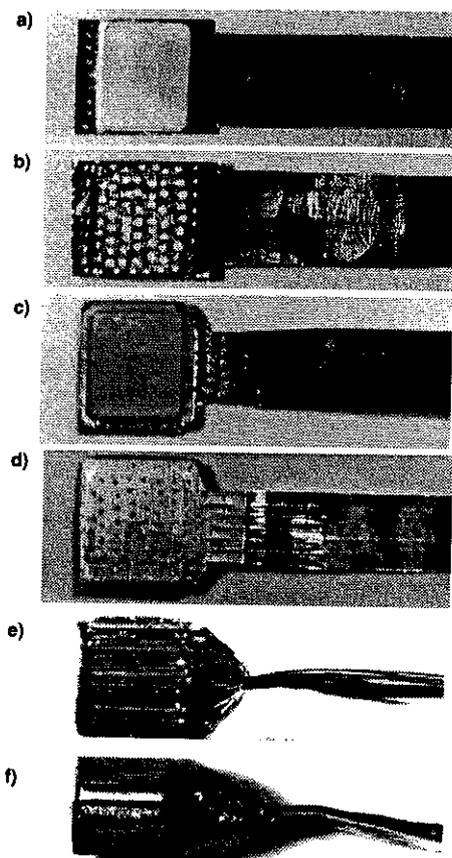


Figure 2.9: Différentes étapes de la construction d'un thermomètre de CMN: a,b) pastille de CMN & Ag compactée sur une feuille d'argent perforée (vue d'en haut et d'en bas); c,d) pastille de CMN & Ag imprégnée dans du Stycast; e,f) bloc des pastilles de CMN & Ag avant et après tournage.

La mesure de la susceptibilité du CMN est effectuée par une méthode de susceptibilité alternative grâce à un système de bobines comprenant des enroulements primaires et secondaires. Un pont de mutuelle (Barras Provence, détecteur multifonction) est utilisé pour cette mesure. Ce système de mesure nous apporte une précision de l'ordre de 10^{-4} . L'étalonnage d'une mutuelle est montré sur la figure 2.10.

Cette mutuelle a été calibrée avec un thermomètre de carbone étalonné. Les différents symboles correspondent à plusieurs étalonnages effectués. La susceptibilité varie entre $149.1\ \mu\text{H}$ (susceptibilité résiduelle: pour nos mutuelles de l'ordre de $100\ \mu\text{H}$, dépendant de la symétrie des paires astatiques) et $1600\ \mu\text{H}$ entre 4.2 K et 4 mK, ce qui est montré sur la figure 2.10.

L'ajustement de l'aimantation en fonction de la température $\chi = \frac{C}{T-\Theta}$ à haute température (au dessus de 10 mK) donne une constante de Curie Weiss Θ de l'ordre de -0.5 mK. Pour la gamme des températures entre 3 et 100 mK, la précision est de l'ordre de 1 %, illustrée par la petite figure. A des températures au-dessous de 3 mK, la susceptibilité dévie par rapport à la loi de Curie Weiss. Cela est dû à l'ordre magnétique des spins. La valeur de saturation est de l'ordre de 2800 μH .

La constante de temps est inférieure à une minute pour des températures d'environ 10 mK. Ceci a été mesuré en enregistrant la relaxation après une impulsion de chaleur. Par conséquent, ce thermomètre est particulièrement adapté pour la mesure de la chaleur spécifique dans la gamme de températures entre 2 et 50 mK.

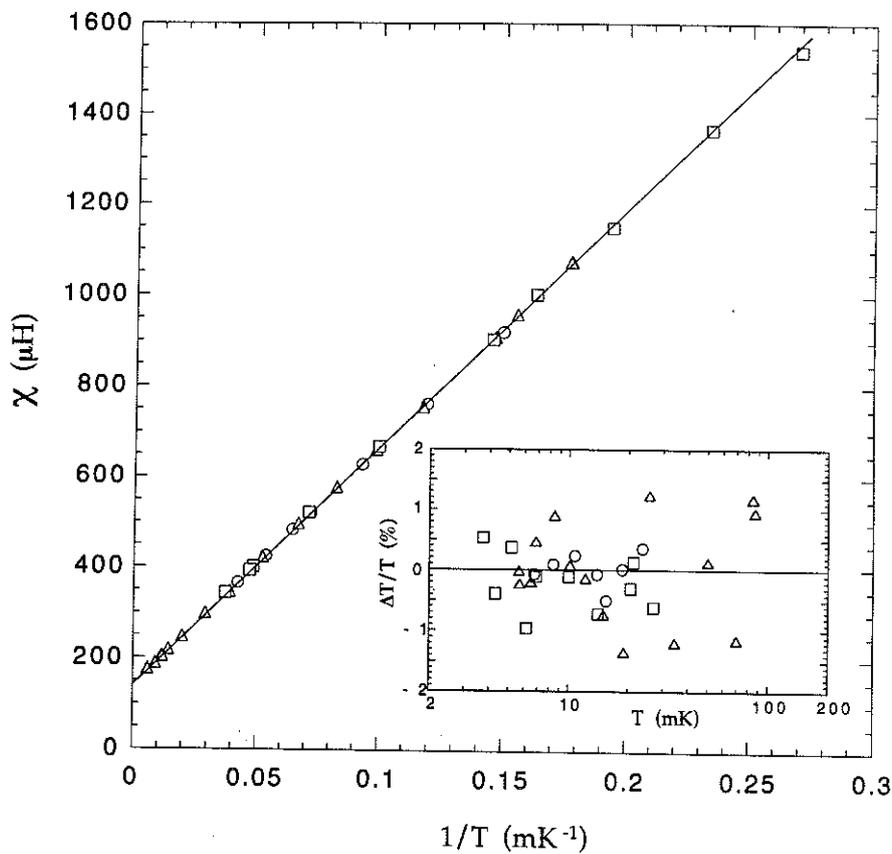


Figure 2.10: Susceptibilité d'un thermomètre de CMN en fonction de l'inverse de la température. Les différents symboles correspondent à plusieurs étalonnages effectués.

Ce thermomètre nous permet de calibrer le thermomètre à RMN du platine dans la gamme de températures entre 3 et 100 mK. Les thermomètres de CMN décrits ci-dessus sont commercialisés par TBT L'Air Liquide en collaboration avec le CRTBT.

2.2.3 Thermomètre à courbe de fusion de ^3He

L'échelle de température pour les expériences réalisées sur le réfrigérateur à dilution est basée sur la courbe de fusion de ^3He . Le thermomètre est décrit en détail dans la référence [24].

L'étalonnage en pression du thermomètre est réalisé à l'aide d'une jauge de pression de précision (Digiquartz Pressure Transductor 2900 AS 002; résolution de l'ordre du μbar à une pression de 30 bar). Le minimum de la courbe de fusion est utilisé comme point fixe ($T = 315.1 \text{ mK}$ à une pression de 29.3116 bar). Pour chaque taux de couverture, le minimum de la courbe de fusion a été mesuré, et les pressions ont été corrigées. La correction est inférieure à 10 mbar pour tous les taux de couverture mesurés.

Un étalonnage du thermomètre à courbe de fusion avec un thermomètre de RMN de ^3He adsorbé sur graphite est illustré par la figure 2.11.

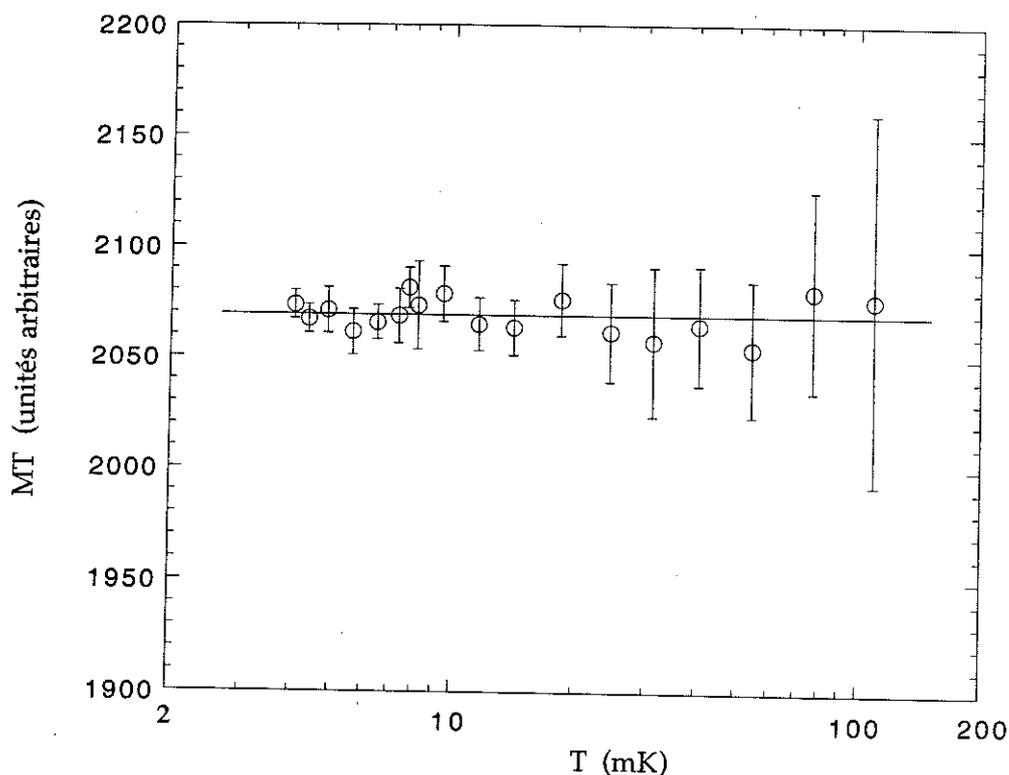


Figure 2.11: Aimantation multipliée par la température d'un film d' ^3He en fonction de la température.

L'imprécision est inférieure à 1 % pour toute la gamme de températures entre 4-100 mK. Dans ce cas, celle-ci est déterminée par le thermomètre de RMN de ^3He adsorbé, car un amplificateur "à chaud" est utilisé (voir section 2.3).

2.2.4 Thermomètre à RMN du platine

Pour la gamme de températures en dessous de 10 mK des thermomètres à RMN du platine sont en général utilisés. Le principe de ce thermomètre repose sur la loi de Curie des spins nucléaires du métal [19]. Le thermomètre construit pour nos besoins a été fabriqué à partir d'un fil de platine non isolé d'un diamètre de $25\ \mu\text{m}$ [20]. Il contient un ensemble d'environ 2500 fils d'une longueur de 18 mm et d'un diamètre de 2 mm. La masse de l'ensemble des fils est de l'ordre d'un gramme. Un fil d'argent d'un diamètre de 1 mm a été fondu sur les deux bouts de l'ensemble des fils en utilisant un chalumeau. Cette méthode donne un très bon contact thermique, ce qui nous a permis de mesurer des températures inférieures à $200\ \mu\text{K}$.

Le support de la bobine de RMN a été conçu à partir d'un papier à cigarette. Celui-ci a été peint avec du Stycast 1266 et enroulé autour d'une tige de téflon d'un diamètre de 3 mm afin d'obtenir un support cylindrique ayant des parois très fines ($< 0.1\ \text{mm}$). La bobine de RMN est ensuite bobinée autour du support en utilisant un fil de cuivre d'un diamètre de $40\ \mu\text{m}$. L'inductance est calculée afin de pouvoir travailler à une fréquence d'environ 1 MHz. Celle-ci est imposée par le spectromètre à RMN pulsée.

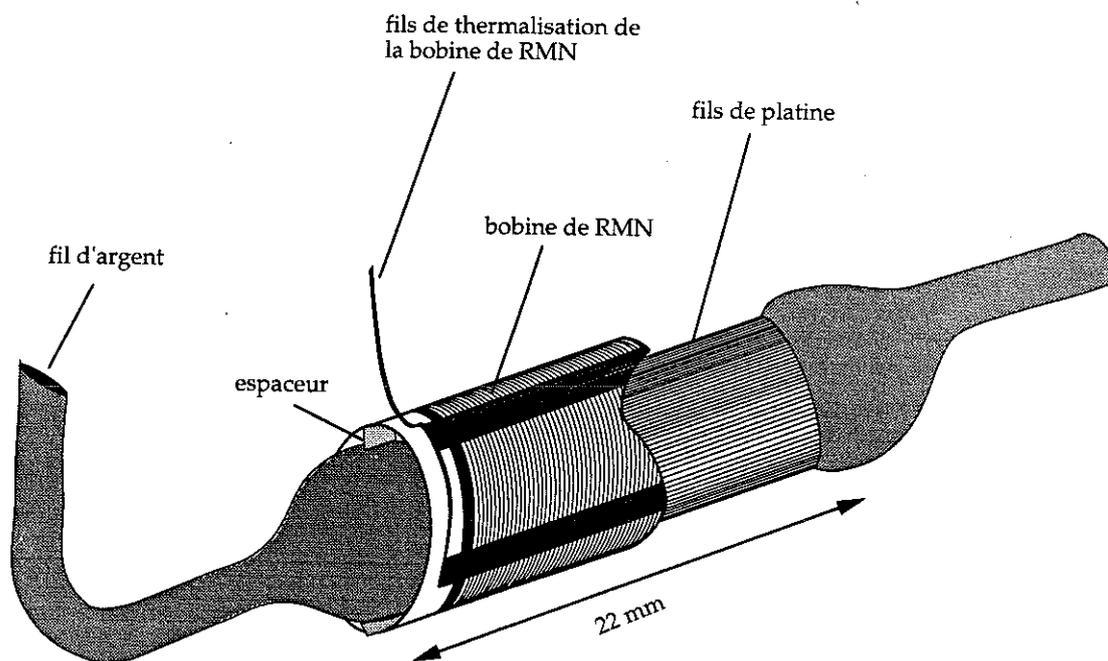


Figure 2.12: Schéma du thermomètre à RMN du platine.

Le support et, en particulier, la bobine de RMN sont thermalisés par des fils de cuivre qui sont, soit incorporés dans le support en papier à cigarette, soit collés sur la bobine de RMN (selon le modèle utilisé). Ces fils de thermalisation sont connectés à la boîte à mélange

afin de refroidir le support ainsi que la bobine de RMN à une température d'environ 5 mK. Le support est découplé de l'ensemble des fils de platine par des espaceurs en papier (durci avec du Stycast) d'une épaisseur inférieure à 1 mm afin de diminuer le plus possible le contact thermique. Un schéma du thermomètre est montré dans la figure 2.12.

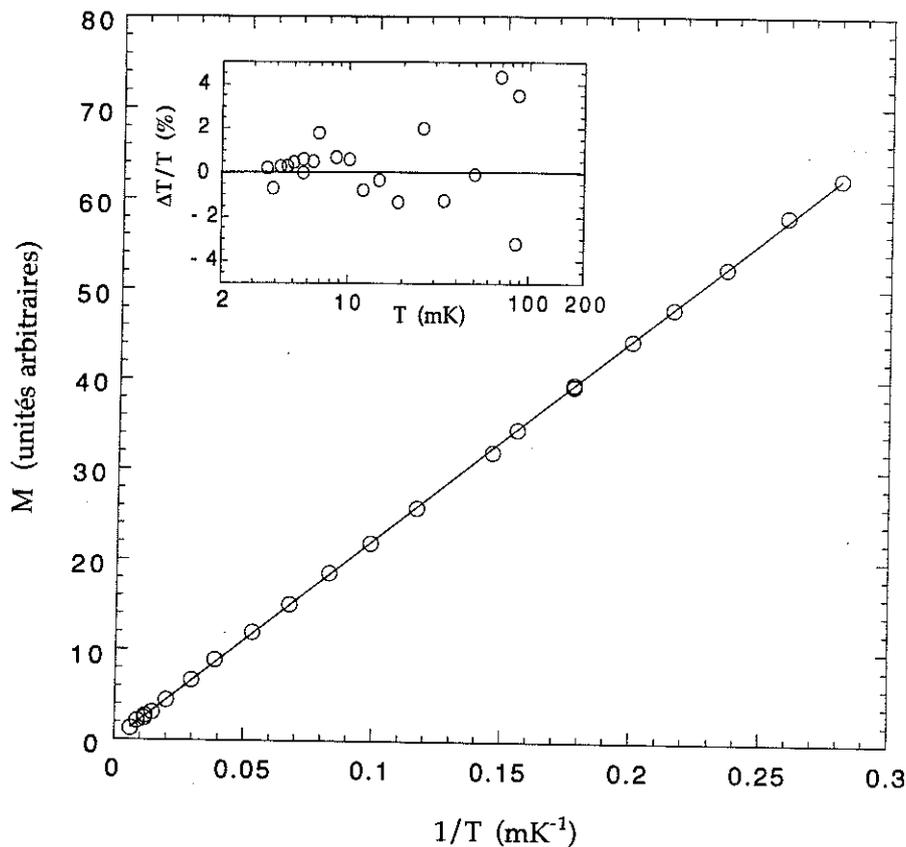


Figure 2.13: Aimantation du thermomètre à RMN du platine en fonction de l'inverse de la température déterminée par le thermomètre de CMN.

La figure 2.13 montre l'étalonnage du thermomètre de platine en utilisant le thermomètre de CMN. A basse température (au-dessous de 30 mK), la précision est de l'ordre de 2%.

Il est important de vérifier que le thermomètre et la cellule expérimentale sont en équilibre thermique aux plus basses températures. Ceci peut être vérifié par la mesure de l'aimantation d'une soumonocouche d' ^3He adsorbé sur graphite (voir la section 4.1.2). Aucune déviation n'a été trouvée aux plus basses températures, de l'ordre de 200 μK (voir la figure 2.14). Ceci confirme que les contacts thermiques entre les différentes cellules sont de très bonne qualité.

2.2.5 Thermomètre à fil vibrant

Ce type de thermomètre est adapté pour la mesure de la température de l'hélium liquide [22]. Le principe en est très simple. Un fil dans lequel circule un courant alternatif, placé dans un champ magnétique, commence à vibrer. En balayant la fréquence on obtient une courbe de résonance, où l'amortissement du fil est donné par la largeur de la courbe de résonance [23]. Lorsque le fil est placé dans l' ^3He superfluide, la largeur de raie mesurée détermine la viscosité du liquide, ce qui est équivalent à une mesure du nombre de quasi particules. Comme le nombre des quasi particules est une fonction qui varie d'une manière exponentielle en fonction de la température ($N \propto \exp(\Delta/k_B T)$, où Δ est le gap), ce thermomètre est extrêmement sensible. La température la plus basse qui peut être mesurée est déterminée par la largeur intrinsèque du fil lui-même. Il est donc important d'utiliser des fils très fins. Les fils les plus fins qui ont été utilisés pour nos expériences sont de l'ordre de $5 \mu\text{m}$. La procédure de construction de ce type de thermomètre peut être trouvée dans la référence [23].

2.2.6 Thermomètre à RMN de l' ^3He adsorbé sur du graphite

Pour la gamme de températures inférieures à 1 mK la mesure de la température est effectuée en général par un thermomètre à RMN du platine. Des systèmes du commerce (PLM 4) sont souvent utilisés dans les laboratoires des très basses températures. Malheureusement la précision d'un tel thermomètre est de l'ordre de quelques pour cent. Ici nous proposons la possibilité d'utiliser un film d' ^3He adsorbé sur du graphite comme thermomètre pour la gamme des températures entre 0.1 et 100 mK où une imprécision inférieure à 1 % peut être facilement atteinte. L'aimantation d'un film solide en première couche dans une plage de densités entre 0.085 et 0.116 \AA^{-2} suit une loi de Curie Weiss avec une température de Weiss inférieure à $10 \mu\text{K}$ [48, 7]. Ceci est montré sur la figure 2.14 où l'aimantation du film d' ^3He est tracée en fonction de la température obtenue par le thermomètre à RMN du platine. La précision en température, limitée par notre système de RMN pulsée, est de l'ordre de 2-3 %.

Aux températures les plus basses une déviation de l'aimantation par rapport à une loi de Curie est observée. Ceci est dû au fait que pour ces températures la condition $\mu B/k_B T \ll 1$ n'est plus satisfaite (B est égal à 113 mT dans notre cas) et la loi de Curie doit être remplacée par la loi de Brillouin:

$$M = M_{sat} \tanh\left(\frac{\mu B}{k_B T}\right) \quad (2.2)$$

où M_{sat} est l'aimantation de saturation, μ est le moment magnétique des spins de l' ^3He et B est le champ magnétique. Celle-ci est représentée par le trait épais dans la figure 2.14. A une température de l'ordre de $200 \mu\text{K}$ la déviation par rapport à la loi de Curie est environ 9 %.

En travaillant dans un champ magnétique relativement élevé (plusieurs centaines de mT), ce système peut être utilisé comme un thermomètre primaire.

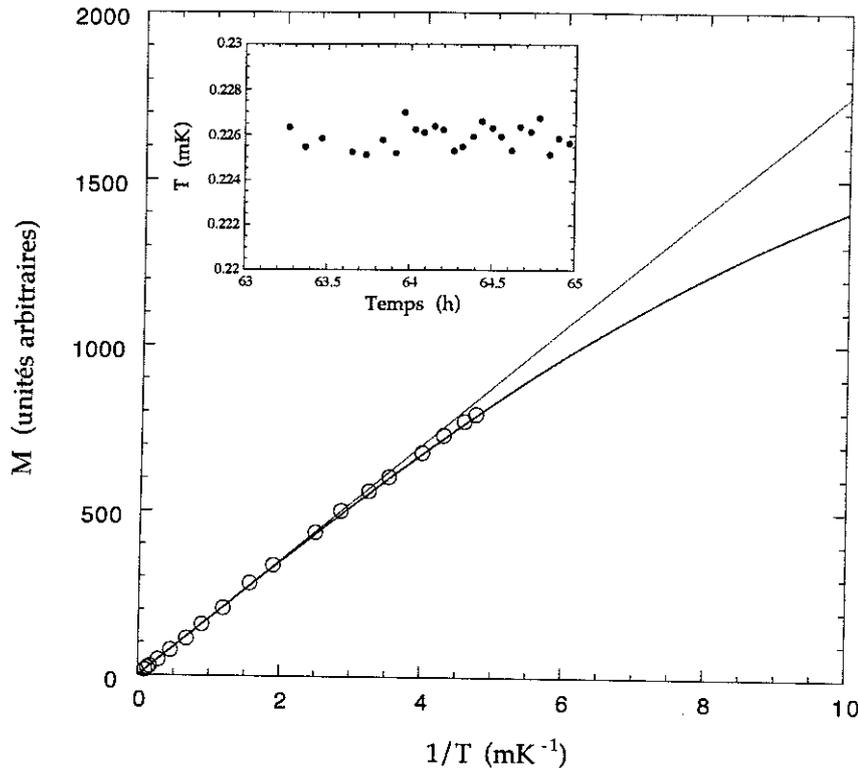


Figure 2.14: Aimantation d'un film d' ^3He solide en sousmonocouche adsorbé sur du graphite en fonction de l'inverse de la température déterminée par le thermomètre à RMN du platine. La droite correspond à l'ajustement des données à haute température. Le trait épais correspond à la loi de Brillouin. La petite figure montre la température mesurée par l'aimantation d'un film d' ^3He adsorbé. Chaque point correspond à une raie de RMN mesurée.

Une vérification de la température peut être effectuée par la mesure du décalage en fréquence de la raie à très basses températures (voir chapitre 4), qui donne directement la polarisation du film. En utilisant un spectromètre à RMN avec un préamplificateur à froid (voir 2.3.1) nous pouvons obtenir une imprécision en température inférieure à $0.5 \mu\text{K}$ pour une température de $200 \mu\text{K}$. Ceci est illustré dans la figure 2.14.

La petite figure insérée montre la stabilité et la précision avec laquelle on peut mesurer la température avec le thermomètre à RMN de l' ^3He . Chaque point correspond à une raie de RMN mesurée. Ce thermomètre est beaucoup moins sensible aux vibrations que le thermomètre à RMN du platine. Ce système représente donc un thermomètre idéal pour les ultra basses températures.

2.3 Les spectromètres à RMN continue

Le spectromètre à RMN continue utilisé pour les expériences sur l' ^3He adsorbé sur du graphite est essentiellement un Q-mètre travaillant comme un pont de radiofréquence. Un schéma de ce spectromètre est montré dans la figure 2.15.

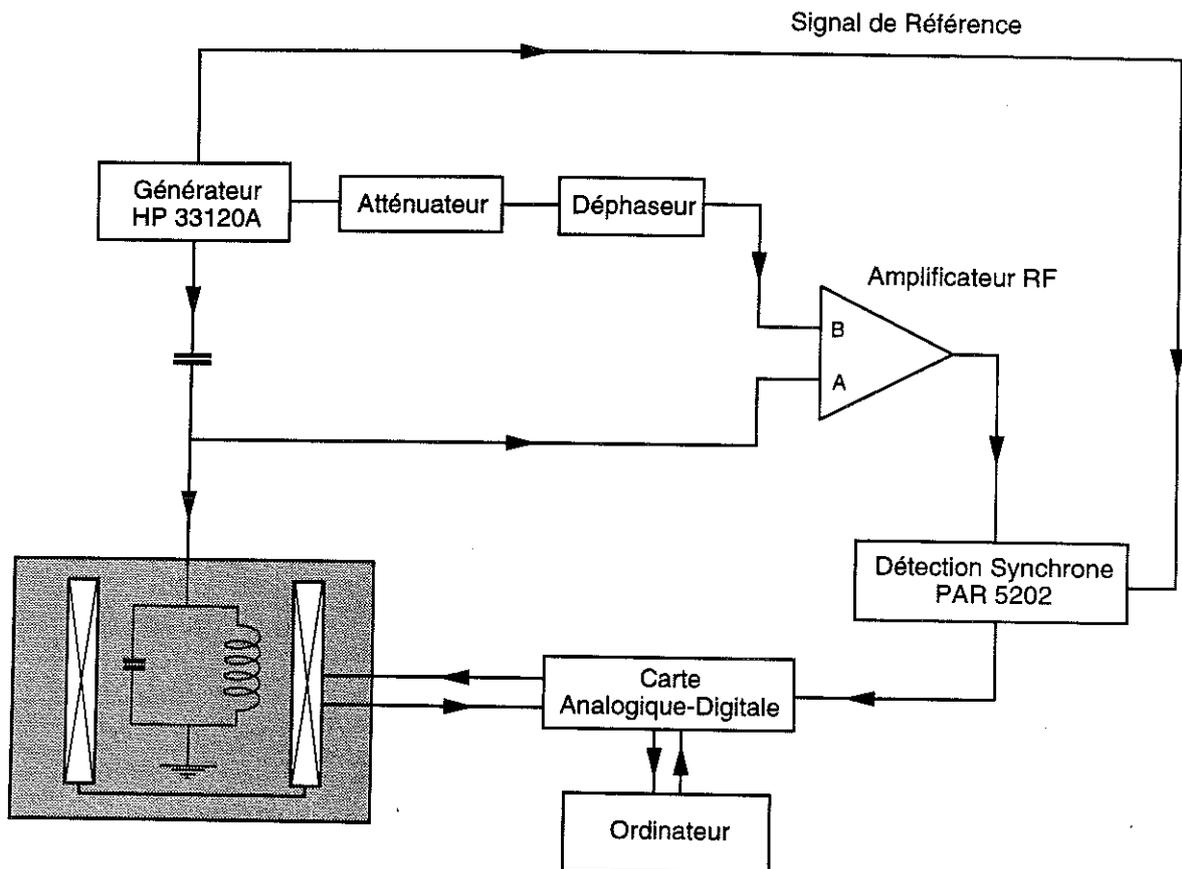


Figure 2.15: Schéma du spectromètre à RMN

Le circuit résonnant est alimenté par une source de tension alternative à travers une impédance très grande (en général une capacité d'une très faible valeur). De même, un circuit d'opposition est alimenté par ce générateur de tension. La tension sur le circuit résonnant et le signal de l'opposition sont ensuite soustraits et amplifiés par un amplificateur différentiel. L'amplitude et la phase de l'opposition sont ajustées de manière à ce que le signal sortant de l'amplificateur différentiel soit minimisé. Le signal est ensuite envoyé à une détection synchrone. Un ordinateur est utilisé pour le contrôle de l'expérience. Il sert à piloter le champ magnétique et pour l'acquisition des données. La principale difficulté consiste à réaliser un préamplificateur à très faible bruit et très bonne stabilité, nécessaire pour nos mesures. Les deux spectromètres qui ont été utilisés pour nos expériences sont décrits en détail dans les deux sections suivantes.

2.3.1 Spectromètre à basse fréquence

Un spectromètre permettant de travailler dans une gamme de fréquence de 0.1 à 1 MHz a été utilisé pour les expériences effectuées sur le réfrigérateur à dilution. Le schéma de l'ensemble du circuit électronique peut être trouvé dans la référence [24, 26]. Ce spectromètre montre de très bonnes performances en bruit: $i_n \approx 0.1 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$; $e_n \approx 10 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$ [25, 26].

Pendant les mesures nous avons constaté que la capacité de la ligne coaxiale entre le préamplificateur et la bobine de RMN change parfois de manière abrupte en fonction du niveau du bain d'hélium. Ceci donne lieu à des sauts dans la ligne de base des raies de RMN et limite la sensibilité pour la mesure de petits signaux.

2.3.2 Spectromètre à froid

Afin d'éviter le problème d'instabilité décrit ci-dessus, nous avons développé un spectromètre à RMN ayant un préamplificateur installé dans le bain d'hélium du cryostat. La ligne coaxiale est donc entièrement située dans l'hélium liquide du bain et n'est pas affectée par un changement du niveau de l'hélium du bain.

Ce spectromètre a été conçu pour une gamme de fréquence entre 1 et 10 MHz. L'ensemble du spectromètre est montré dans la figure 2.17. Le signal venant du générateur de fréquence (HP 33120A) est divisé en un signal destiné à l'alimentation du circuit de résonance (entrée **Inj**) et deux signaux qui sont utilisés pour l'opposition (entrée **A** et **B**).

Le préamplificateur se compose de deux transistors de GaAs (Sony 3SK166) montés en mode différentiel. Ces transistors ont été choisis à cause de leur faible tension de bruit [29] et leur grande impédance d'entrée, ce qui est nécessaire pour nos mesures.

La capacité C_B de l'opposition **B** doit être ajustée pour que le rapport entre $\frac{C_{Inj}}{R_{LCR}}$ soit égal à $\frac{C_B}{R_B}$, où R_{LCR} est l'impédance du circuit de résonance à la fréquence de résonance f_0 . L'opposition **A** permet d'ajouter un signal déphasé de 90 degrés par rapport à l'opposition **B**, ce qui permet de mieux ajuster l'opposition. La capacité C_B doit être ajustée à chaud, mais les changements de l'impédance du circuit de résonance pendant le refroidissement doivent être pris en compte. Des atténuateurs permettent de compenser le changement du circuit de résonance afin d'ajuster l'opposition minutieusement.

L'alimentation des transistors est assurée par les entrées **L**₁ et **L**₂. La sortie du préamplificateur **C** est connectée à un amplificateur de bas bruit qui se trouve à l'extérieur du cryostat. Le signal amplifié est mesuré par une détection synchrone (PAR 5202).

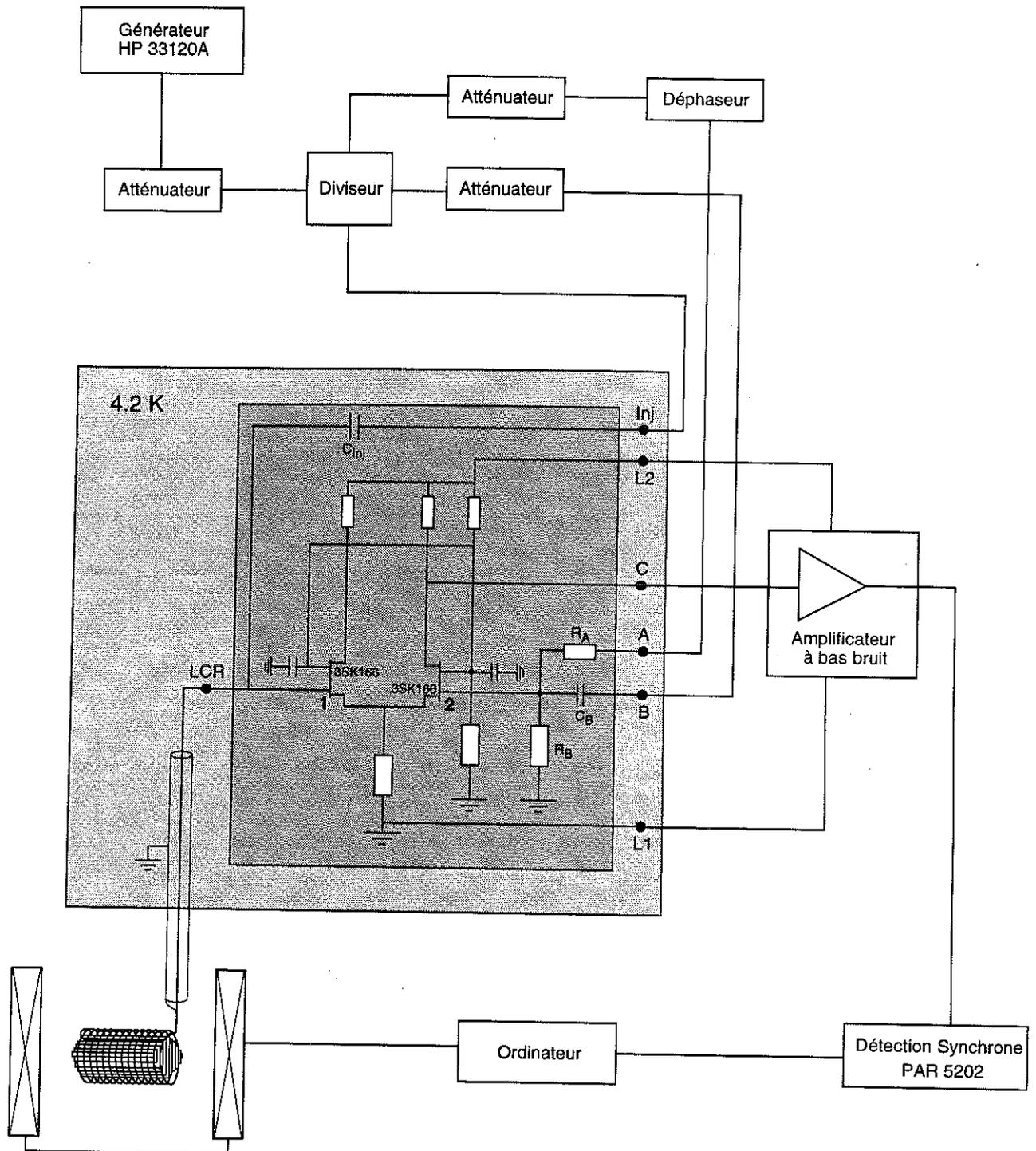


Figure 2.16: Schéma de l'ensemble du spectromètre à RMN en utilisant un préamplificateur à froid. Toute la partie marquée en gris clair est située dans le bain d'hélium. Le préamplificateur à froid est indiqué en gris foncé.

Des mesures de bruit ont été effectuées afin de caractériser les transistors. Le bruit de l'amplificateur a été mesuré en court-circuitant l'entrée 1 du préamplificateur (l'entrée 2 est court-circuitée par $R_B = 100 \Omega$, voir figure 2.16). Un spectre de bruit est montré dans la figure 2.17.

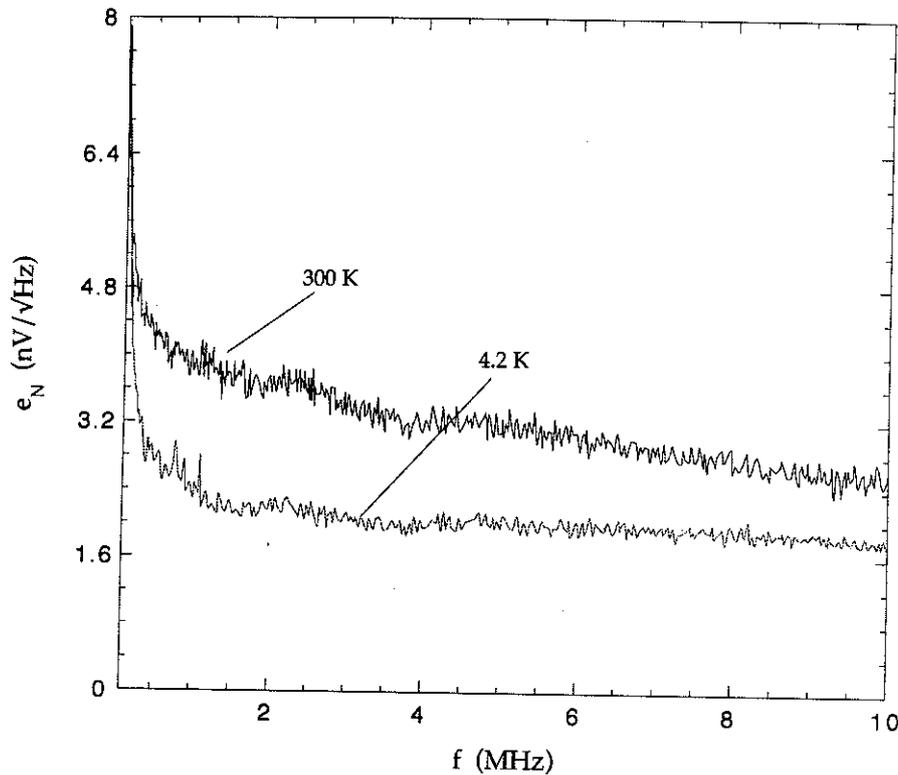


Figure 2.17: Tension de bruit du préamplificateur à froid en fonction de la fréquence.

Le spectre de bruit a été mesuré avec un analyseur de spectre (HP 70206A). La tension de bruit est obtenue après une division par le gain de l'ensemble de la chaîne d'amplification, qui a été préalablement mesuré en fonction de la fréquence. La tension de bruit est de l'ordre de $1.4 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$ par transistor, ce qui est cohérent avec les valeurs données dans la référence [29]. Au cours des tests du préamplificateur nous avons constaté que les performances des transistors peuvent varier d'un facteur de 2 entre eux. Il est également important de ne pas utiliser une tension de la grille trop élevée [30].

Pour des applications à forte impédance, il faut vérifier que le bruit en courant ne soit pas dominant. Pour une impédance typique de notre circuit de résonance (de l'ordre de $100 \text{ k}\Omega$) et en prenant une valeur typique de l'ordre de $0.1 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$, nous obtenons une tension de bruit qui est de $10 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$, comparable à la tension du bruit de l'amplificateur. Il est donc important de mesurer le courant de bruit de l'amplificateur afin d'optimiser le rapport signal/bruit du circuit résonnant.

A basse fréquence le bruit en courant peut être mesuré en mettant une forte impédance de source Z_S à l'entrée de l'amplificateur. A haute fréquence (de l'ordre du MHz), l'impédance d'entrée du transistor diminue et domine donc l'impédance Z_S à l'entrée de l'amplificateur. De ce fait, le bruit en courant peut être dominé par le bruit en tension du transistor. Dans ce cas, le bruit en courant peut être mesuré en utilisant un circuit de résonance ayant un facteur de qualité et une impédance très élevés. Comme l'impédance d'entrée est incluse dans le circuit résonnant, l'impédance de la source de bruit Z_S n'est pas affectée par celle-ci.

Des mesures, en utilisant différents circuits résonnants, ont été réalisées dans un cryostat de test (cryostat à ^4He). La figure 2.18 montre le bruit généré par le circuit résonnant autour de sa fréquence propre pour différentes températures. Les caractéristiques du circuit résonnant à une température de 4.2 K sont : $f_0 = 1.675$ MHz, $Z_S = 335$ k Ω et $Q = 93$.

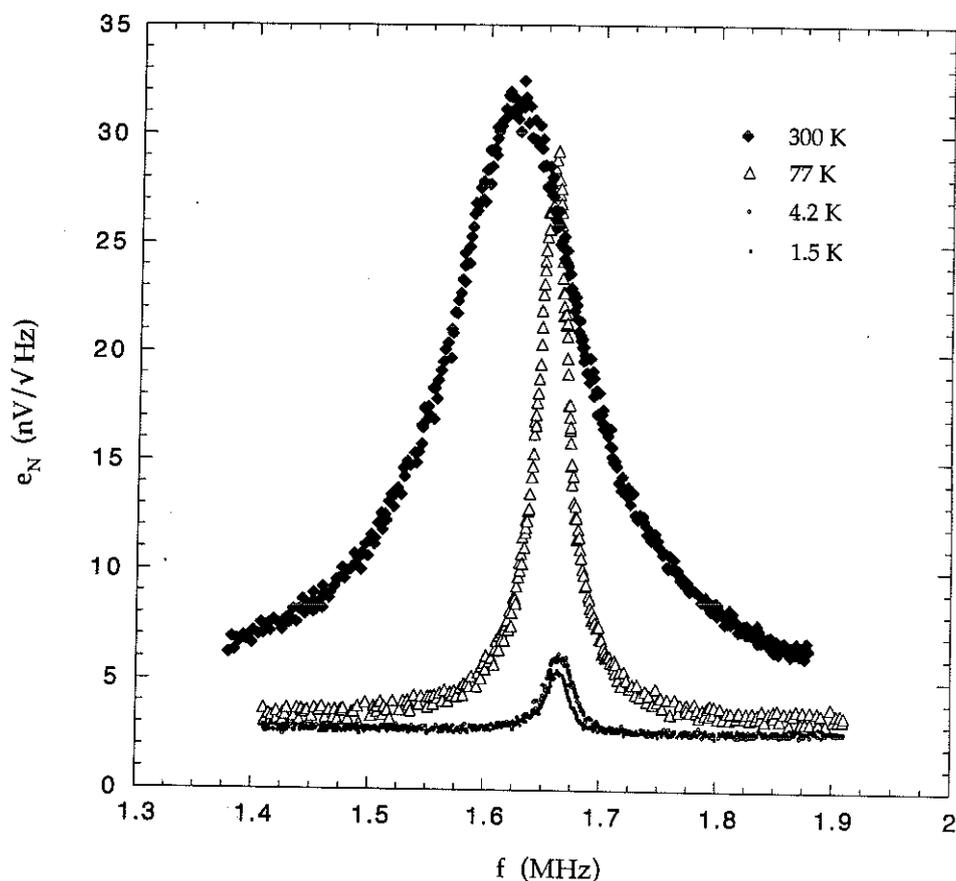


Figure 2.18: Tension de bruit mesurée sur un circuit résonnant.

A température ambiante le bruit est dominé par le bruit en courant et le bruit de Johnson du circuit LCR. Le bruit en tension e_N de l'amplificateur, qui est de l'ordre de $4 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$, est négligeable. Dans ce cas le bruit de Johnson est de l'ordre de $25 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$. Une estimation du bruit en courant donne $i_N = 0.5 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$.

En baissant la température, le bruit en courant diminue considérablement et à partir d'une température d'environ 77 K, le bruit est dominé par le bruit de Johnson de l'impédance Z_S . Entre 77 et 4.2 K, le bruit diminue proportionnellement à \sqrt{T} indiquant que le bruit est encore dominé par le bruit de Johnson. Entre 4.2 et 1.4 K (température de base du réfrigérateur due à l'échauffement par l'amplificateur), le bruit ne diminue plus en \sqrt{T} . Nous obtenons donc un bruit en courant de l'amplificateur de $i_N = 6 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$. Le courant de bruit varie donc d'environ 2 ordres de grandeur entre 300 et 4.2 K. L'estimation de i_N nous permet de concevoir le circuit résonnant de manière à ce que $Z_{LCR} = e_N/i_N$, ce qui donne un meilleur rapport signal/bruit.

Afin de confirmer ces valeurs, des mesures ont été réalisées en utilisant des bobines supraconductrices pour augmenter le facteur de qualité Q du circuit résonnant. Les mêmes valeurs ont été obtenues pour le courant de bruit des différents circuits LCR testés.

Pendant le refroidissement d'une cellule de RMN, nous avons enregistré le bruit généré par celle-ci. Nous avons constaté que, pour une température inférieure à 1 K, le bruit généré par le circuit résonnant diminuait avec le refroidissement de la cellule. Ceci indique que le bruit était encore dominé par le bruit de Johnson de l'impédance du circuit résonnant. A une température inférieure à 600 mK, le bruit généré par le circuit résonnant disparaît dans le bruit de l'amplificateur. Une estimation du bruit en courant donne $i_N = 6 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$.

Valeurs typiques

A haute température ($T > 10 \text{ mK}$), la tension d'alimentation typiquement appliquée sur le circuit résonnant est de l'ordre de 1 mV. Pour une monocouche d' ^3He adsorbé sur du graphite, nous obtenons un rapport signal/bruit d'environ 5 à une température de 1 K. Le temps de balayage du champ magnétique de RMN ($\Delta B \approx 1.5 \text{ mT}$) est de l'ordre de la minute.

A basse température, la tension d'injection doit être considérablement réduite afin d'éviter l'échauffement par radiofréquence. Aux températures les plus basses la tension d'injection est de l'ordre de $50 \mu\text{V}$, ce qui correspond à une puissance de 0.25 pW. La vitesse de balayage doit être également réduite afin d'éviter un réchauffement par les courants de Foucault. Elle est de l'ordre de 0.15 mT/min. Dans ces conditions, l'absorption RMN du solide est de l'ordre de 10 % de la tension d'alimentation. Nous observons un très bon rapport signal/bruit. Dans le cas de l' ^3He liquide, nous verrons que le signal est environ 1000 fois plus petit. Une résolution de l'ordre du $\text{nV}/\sqrt{\text{Hz}}$ était donc bien nécessaire.

Le développement d'un spectromètre utilisant un préamplificateur à froid nous a permis de réduire considérablement le bruit du système (plus qu'un facteur 10 en tension de bruit et plus qu'un facteur 20 en courant de bruit). Le faible bruit en courant nous permet également

de travailler avec un circuit de résonance ayant un facteur de qualité très élevé (équivalent à une forte impédance), ce qui donne un meilleur rapport signal/bruit. En utilisant ce système nous sommes capables de mesurer des signaux extrêmement faibles, ce qui est nécessaire pour les études sur des films d' ^3He liquide adsorbé sur du graphite (voir chapitre 6).

2.4 Les cellules expérimentales

Plusieurs cellules ont été utilisées pour les différentes expériences réalisées au cours de cette thèse. Elles sont décrites ci-dessous.

2.4.1 La cellule de basse fréquence

La cellule de basse fréquence (C_1) a été utilisée pour les expériences effectuées sur le réfrigérateur à dilution. Elle a également été utilisée pour des expériences antérieures [24, 31]. Les détails de la construction sont décrits dans [31, 24]. Nous ne donnerons ici que les caractéristiques nécessaires pour l'analyse des données. Le substrat contient 3.2 grammes de graphite exfolié (Grafoil). La fréquence de résonance du circuit électrique est de 511.3 kHz ce qui correspond à un champ de RMN de 15.76 mT. La surface de l'échantillon, déterminée par une isotherme d'adsorption d' ^3He (voir section 3.3.1), est de 47.13 m².

2.4.2 Les cellules pour $T < 1$ mK

L'utilisation des cellules de surface à des températures inférieures à 1 mK (C_4 et C_5) nous a conduit à améliorer considérablement leur conception. Le principe de construction suit essentiellement la technique développée dans notre laboratoire [48] en améliorant le contact thermique et en réduisant le plus possible les dimensions du support.

Le substrat utilisé pour cette cellule est du Papyex (S 607), un graphite exfolié de meilleure qualité que le Grafoil (voir section 3.1.1). Les feuilles de Papyex ont une épaisseur de 0.2 mm et une longueur de 15 mm. Elles sont coupées de telle manière qu'on peut insérer l'ensemble dans un support cylindrique en obtenant un taux de remplissage élevé ($\approx 60\%$). Deux feuilles de Papyex sont collées par diffusion thermique (800 °C) sur une feuille d'argent d'une épaisseur de 0.025 mm, donnant ainsi une structure de sandwich qui assure un très bon contact thermique. Pendant ce processus, les feuilles d'argent de l'ensemble des sandwiches sont également soudées par diffusion sur une tige d'argent d'un diamètre de 1 mm, ce qui assure le contact thermique entre la source froide et l'échantillon. Celui-ci contient 17 sandwiches (masse du Papyex = 0.632 g) séparés par un papier à cigarette afin d'éviter l'échauffement par courants de Foucault.

Un support cylindrique a été construit à partir d'une feuille de Kapton aux dimensions suivantes: 120 mm \times 2.3 mm \times 0.025 mm. Une cinquantaine de fils de cuivre (40 μm) a été collé avec du Stycast sur la feuille de Kapton avant de la rouler autour d'une tige de Teflon. Ces fils sont thermalisés sur la boîte à mélange et permettent le refroidissement du support de la bobine de RMN. Deux couvercles en Araldite sont ainsi collés sur les deux bouts du cylindre en Kapton en formant un support étanche. Un capillaire de remplissage d'un diamètre de 0.6/0.8 mm est collé sur un des deux couvercles. La bobine de RMN a ensuite été bobinée

autour du support (fil de cuivre de $40\ \mu\text{m}$). L'inductance a été préalablement calculée, afin d'ajuster la fréquence de résonance du circuit à une fréquence d'environ 3.6 MHz.

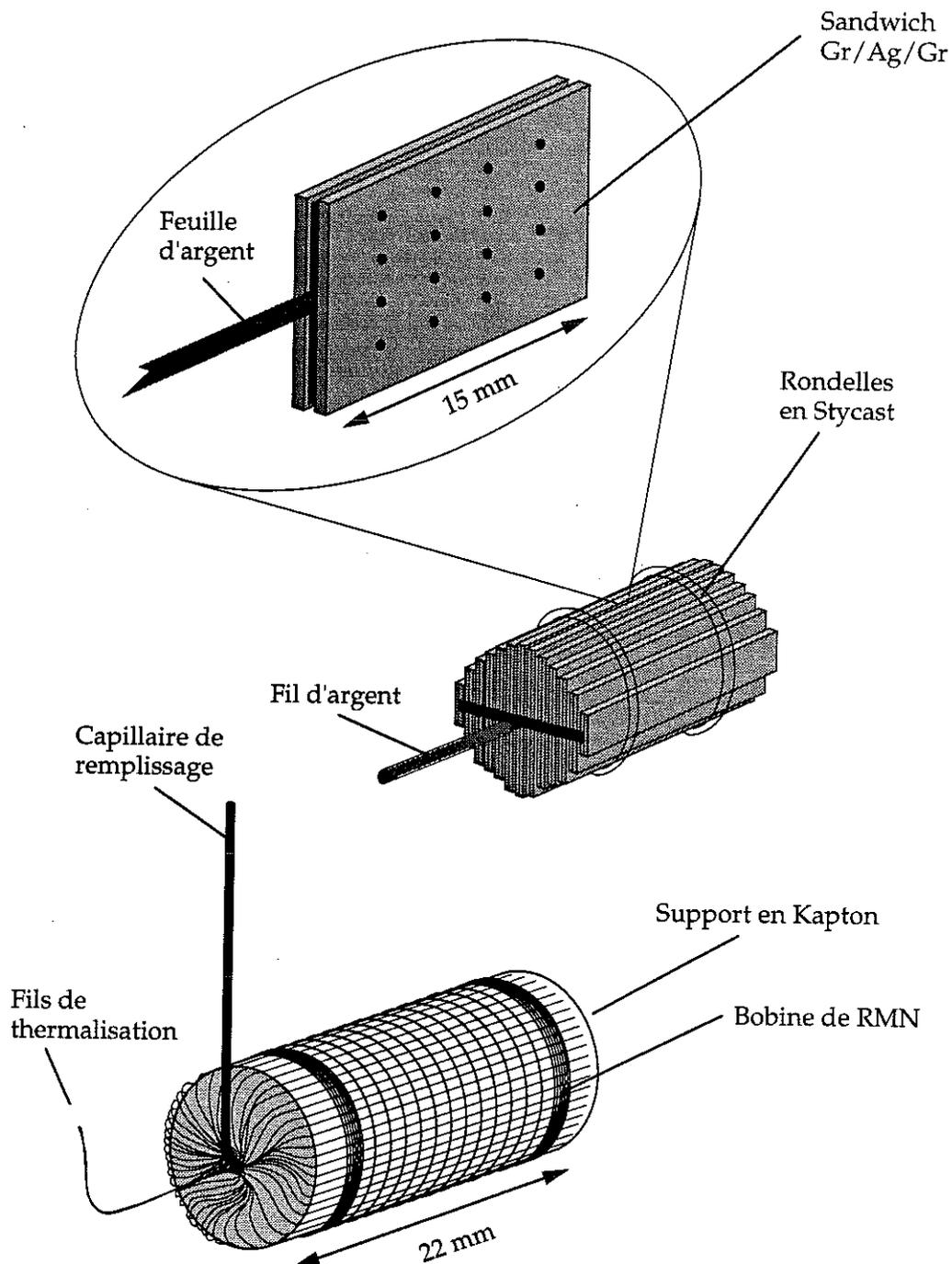


Figure 2.19: Schéma de la cellule expérimentale utilisée pour l'expérience sur le liquide.

En ce qui concerne la cellule utilisée pour les expériences sur le liquide (C_5), nous avons essayé de diminuer au maximum le contact entre le support de la bobine et l'échantillon de graphite. Pour cela nous avons séparé l'échantillon de graphite du support par deux rondelles de papier imprégné dans du Stycast. Cette opération diminue le couplage entre la bobine de RMN et l'échantillon, mais permet un découplage thermique du support de l'échantillon, nécessaire pour atteindre des températures bien inférieures à 1 mK. Un schéma de cette cellule est montré sur la figure 2.19.

Le seul contact thermique important est donc la tige d'argent qui est collée sur l'un des deux couvercles en Araldite. Afin de diminuer ce contact nous avons séparé le couvercle en Araldite de la tige en argent par une feuille de papier enduite de Stycast d'une épaisseur de 0.2 mm. Cette méthode nous a permis de refroidir la cellule à une température d'environ $200 \mu\text{K}$ sans avoir de gradient de température entre le thermomètre de platine et la cellule d' ^3He .

Chapitre 3

Diagramme de phases de l' ^3He adsorbé sur du graphite

3.1 Le graphite comme substrat

Le substrat utilisé pour les expériences réalisées au cours de cette thèse est du graphite exfolié. Il se présente sous la forme de plaquettes cristallines de graphite dont la taille caractéristique est environ 100 \AA , ayant une orientation préférentielle. La structure microscopique de ces cristallites est essentiellement celle du graphite: Dans une couche atomique, de structure hexagonale, les atomes sont espacés de 1.42 \AA . La distance entre les couches est 3.37 \AA . Le graphite exfolié est une poudre comprimée de ces plaquettes cristallines. La procédure de fabrication peut être trouvée dans Dash *et al.* [11, 32].

Du fait de son homogénéité, ce substrat est très bien adapté pour des études de surfaces [33]. Dans cette thèse, deux types de graphite exfolié ont été utilisés: les mesures systématiques de la deuxième couche (voir chapitre 4) ont été effectuées sur du Grafoil [34]. Le Papyex [35] a été employé pour les expériences sur la dépendance du champ magnétique du solide ferromagnétique (chapitre 5) et pour les mesures des films d' ^3He adsorbé sur une couche d' ^4He (chapitre 6). Les plaquettes cristallines du Papyex sont environ 2 à 3 fois plus grandes que celles du Grafoil. Ceci a été mis en évidence dans ces expériences.

3.2 Les diagrammes de phases

Dans les sections qui suivent nous résumons brièvement le diagramme de phases de l' ^3He adsorbé sur du graphite tel qu'il était connu jusqu'à présent. Nous nous concentrons principalement sur la structure de ces systèmes bidimensionnels dans ce chapitre. L'origine de l'échange dans les phases solides sera discuté dans le chapitre 4. Le sixième chapitre est

consacré à la discussion des films d' ^3He liquides. Une description très détaillée du diagramme de phases peut être trouvée dans l'article de revue de Godfrin et Lauter [11].

3.2.1 La première couche

Le diagramme de phases de la première couche est le plus étudié, grâce aux mesures de diffraction de neutrons, qui donnent une détermination directe de la structure du film. Ce diagramme est montré dans la figure 3.1. A basse densité le film est liquide (phase L_1), du fait de l'énergie du point zéro très élevée dans l' ^3He . Toutefois, on observe une faible quantité de solide ancré sur les sites de forte adsorption du substrat [42]. La proportion de ce solide dans une monocouche varie de 2 à 4 % selon la densité totale du film.

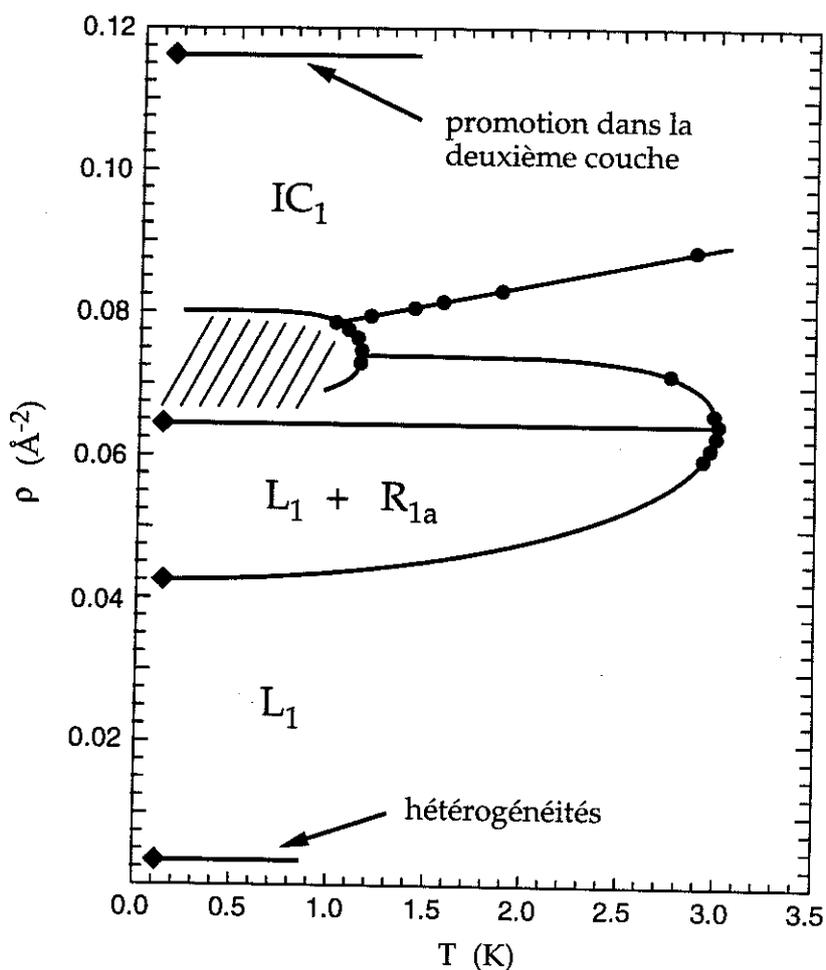


Figure 3.1: Diagramme de phases de la première couche d' ^3He adsorbé sur du graphite. Les cercles correspondent aux pics de fusion mesurés en chaleur spécifique par le groupe de Seattle [2, 38, 39, 40, 41]. Les losanges correspondent aux résultats à basse température des références [5, 42].

A une densité¹ d'environ $\rho = 0.043 \text{ \AA}^{-2}$, le film commence à se solidifier et on rentre dans une zone de coexistence² ($L_1 + R_{1a}$) liquide-solide. La solidification complète de la première couche est observée à une densité $\rho = 0.064 \text{ \AA}^{-2}$. Il s'agit d'une phase solide (R_{1a}) qui est commensurable avec le substrat, notée $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$, où chaque troisième site du graphite est occupé.

En augmentant la densité du film, on rentre dans une région ($0.64 \leq \rho \leq 0.80 \text{ \AA}^{-2}$, indiquée par la région hachurée dans la figure 3.1) où le diagramme de phases est encore controversé. Les mesures de neutrons [4] suggèrent l'existence de parois, tandis que les mesures de chaleur spécifique [5] sont interprétées comme une coexistence entre deux phases commensurables. A plus forte densité ($\rho > 0.080 \text{ \AA}^{-2}$) la structure du film devient incommensurable (phase IC_1).

On observe peu d'échange au sein des phases solides de la première couche. Dans la région où la structure du film d' ^3He est encore mal connue, un faible échange ferromagnétique se manifeste sur la susceptibilité et la chaleur spécifique ($J_\chi \approx 0.15 \text{ mK}$; $J_C \approx 0.3 \text{ mK}$). La phase commensurable et aussi la phase incommensurable sont paramagnétiques.

A partir d'une densité de $\rho = 0.116 \text{ \AA}^{-2}$, on commence à peupler la deuxième couche (promotion des atomes en deuxième couche). La première couche se comprime légèrement pendant le remplissage de la deuxième couche.

3.2.2 La deuxième couche

Le diagramme de phases de la deuxième couche est essentiellement basé sur des mesures thermodynamiques (chaleur spécifique et RMN). Ceci est illustré dans la figure 3.2. Malheureusement il existe peu de mesures de neutrons car le pic du graphite (0002) masque la région (angles de diffraction) où l'on attend le pic des phases solides de la deuxième couche.

L'évolution de la deuxième couche est très similaire à celle de la première couche. A basse densité on observe un film liquide comme en première couche. La solidification de la deuxième couche commence à une densité environ $\rho = 0.179 \text{ \AA}^{-2}$. On pense que la phase solide en deuxième couche (R_{2a}) est commensurable avec la première couche, avec un rapport de densités $\rho_2/\rho_1 = 4/7$. Cette phase a un comportement antiferromagnétique.

A plus forte densité, le diagramme de phases est encore très mal connu. Une hypothèse [5] est l'existence d'une deuxième phase commensurable R_{2b} avec un rapport de densités $\rho_2/\rho_1 = 2/3$, avant la transformation du film en une structure incommensurable IC_2 . Malheureusement il n'existe pas de mesures de neutrons dans cette région du diagramme de phases. Il existe seulement des mesures de neutrons pour le solide en deuxième couche à forte densité ($\rho > 0.280 \text{ \AA}^{-2}$). Cependant, c'est dans cette région que des propriétés magnétiques

¹Les densités surfaciques sont basées sur l'échelle de Grenoble (voir section 3.3.2).

²Nous adoptons ici la notation utilisée par Greywall [5].

intéressantes sont observées pour le solide en deuxième couche: en augmentant la densité du film, le solide en deuxième couche passe d'un comportement antiferromagnétique à un comportement ferromagnétique. Une promotion des atomes en troisième couche est également observée dans cette région du diagramme de phases.

A partir de la troisième couche le film reste toujours liquide, le potentiel d'adsorption étant très faible. Toute cette partie du diagramme de phases sera discutée en détail dans le chapitre 4.

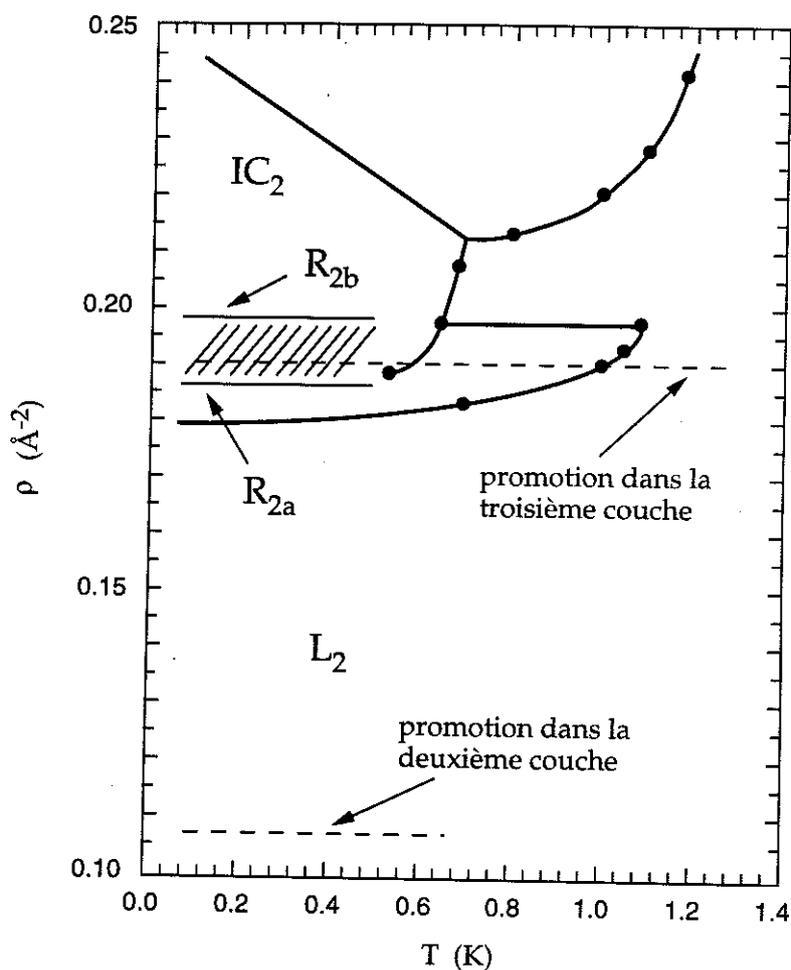


Figure 3.2: Diagramme de phases de la deuxième couche d' ^3He adsorbé sur du graphite. Les points dans le diagramme de phases correspondent aux résultats des mesures de chaleur spécifique des références [40, 41].

3.3 Echelles de taux de couverture

La connaissance de la densité du film adsorbé est essentielle si l'on veut obtenir des informations quantitatives sur la structure de ces systèmes. En outre, si l'on veut comparer les résultats obtenus par RMN avec les mesures de chaleur spécifique, une échelle de couverture commune est indispensable.

On trouve cependant des écarts de l'ordre de quelques pour cent entre les échelles de couverture proposées par les différents laboratoires. C'est actuellement un problème majeur pour donner une interprétation quantitative des résultats.

Il existe plusieurs méthodes pour estimer la surface d'un échantillon. Une méthode très utilisée en physique des surfaces est la mesure d'une isotherme d'adsorption en appliquant la méthode de BET pour l'estimation de la surface. Cependant, cette méthode n'est pas appropriée, car elle n'est pas suffisamment précise.

Afin d'obtenir une détermination très précise de la surface, on utilise des transitions de phases qui montrent des changements brusques à une densité précise. Dans le cas de l' ^3He adsorbé sur du graphite, la mesure de la phase commensurable R_{1a} permet une détermination très précise de la surface de l'échantillon.

3.3.1 Isotherme d'adsorption de l' ^3He

Une méthode pour déterminer une *échelle commensurable* consiste à mesurer en fonction du taux de couverture le pic de chaleur spécifique de fusion de la phase commensurable. Le groupe de Seattle [2] a utilisé cette méthode pour déterminer la surface de son échantillon (cell B). Le pic le plus grand correspond à la phase commensurable parfaite (R_{1a}) pour laquelle nous pouvons calculer la densité à partir du paramètre de maille du réseau de graphite. La densité de cette phase est:

$$\rho_{\text{commensurable}} = 0.06366 \text{ atomes}/\text{\AA}^2 \quad (3.1)$$

Pour se rapporter à cette échelle commensurable on mesure une isotherme d'adsorption d' ^3He et on recale cette isotherme sur celle du groupe de Seattle.

Cette normalisation définit le facteur d'échelle f entre les deux isothermes. Il détermine directement le rapport des volumes adsorbés, ainsi que le rapport des surfaces des échantillons.

Le groupe de Seattle a mesuré sur son échantillon un volume adsorbé pour la phase commensurable:

$$V_{\text{ads}}^{\text{Seattle}} = 63.8 \text{ cm}^3\text{STP}$$

Ainsi, le volume adsorbé pour la phase commensurable d'un échantillon quelconque X est

donné par:

$$V_{ads}^X = \frac{63.8}{f} \text{ cm}^3\text{STP}$$

La figure 3.3 montre la normalisation obtenue pour notre cellule C_1 . On obtient un facteur d'échelle de $f = 5.60$ qui correspond à un volume de $11.39 \text{ cm}^3\text{STP}$ pour la phase commensurable, c'est à dire une surface de 48.11 m^2 .

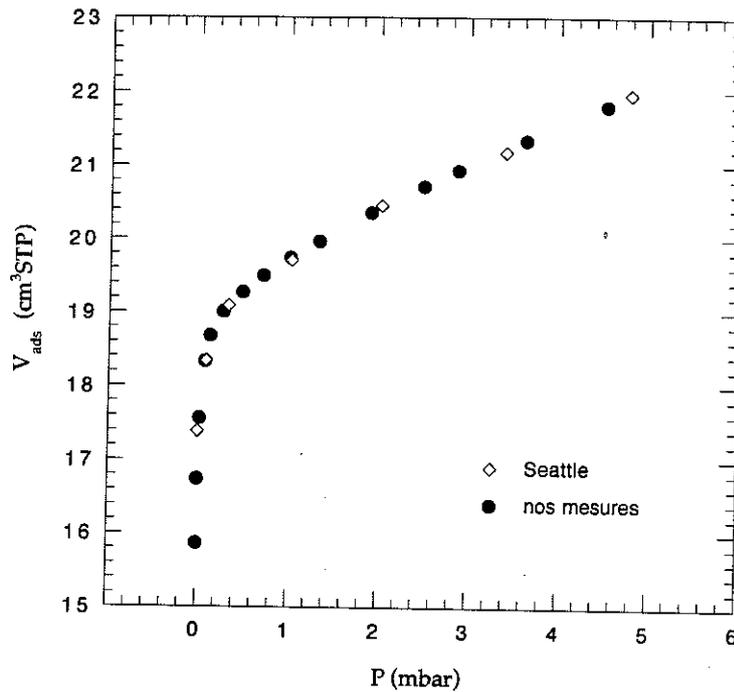


Figure 3.3: Volume adsorbé en fonction de la pression pour notre échantillon C_1 et pour l'échantillon B du groupe de Seattle [2] divisé par un facteur d'échelle égal à 5.60.

Cette méthode permet d'obtenir la surface d'un échantillon et aussi l'établissement d'une échelle de couverture *commensurable*. Dans la suite nous appelons l'échelle commensurable obtenue par cette méthode *l'échelle de Seattle*.

3.3.2 Echelle de Grenoble

Des mesures de RMN permettent également la détermination d'une échelle de couverture commensurable en mesurant la solidification de la phase commensurable R_{1a} par RMN. Ceci est illustré dans la figure 3.4. L'augmentation linéaire de l'aimantation en fonction du volume adsorbé correspond à une coexistence classique liquide-solide. Le point S correspond à la solidification complète de la première couche et détermine donc le nombre d'atomes nécessaire pour compléter la phase commensurable, et donc la surface.

Cette méthode permet d'obtenir également une échelle de couverture commensurable. Pour notre cellule C_1 on obtient un volume pour la phase commensurable $V_{ads} = 11.17 \text{ cm}^3 \text{ STP}$ ce qui correspond à une surface de 47.18 m^2 . Ces valeurs sont en bon accord (écart inférieur à 2%) avec l'échelle de Seattle. Il faut souligner que la comparaison entre ces deux échelles est obtenue d'une manière indirecte, par la mesure d'une isotherme d'adsorption d' ^3He .

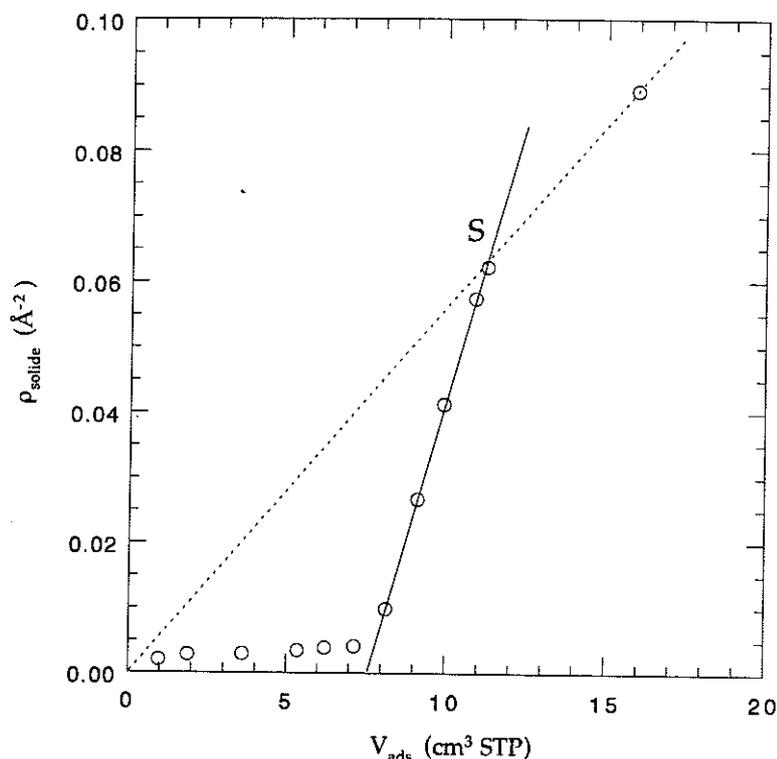


Figure 3.4: Densité du solide en fonction du volume adsorbé. Le trait pointillé correspond à la contribution d'un solide paramagnétique. Le point S correspond à la solidification parfaite de la première couche (phase R_{1a}).

Comme nos mesures ont une précision très supérieure à celles de Seattle (effectuées en 1974), tous les taux de couvertures donnés dans cette thèse seront exprimés dans l'échelle obtenue par la méthode décrite ici. Nous appellerons désormais cette échelle commensurable *l'échelle de Grenoble*.

3.3.3 Isotherme d'adsorption de N_2

Une autre méthode pour obtenir une échelle de couverture commensurable consiste à mesurer une isotherme d'azote à 74 K. Cette méthode a été utilisée par Greywall [5] afin de déterminer son échelle de couverture. Cette isotherme est caractérisée par un changement de pente correspondant au régime de coexistence liquide-solide [33]. Cette méthode devrait donc conduire à une échelle de couverture commensurable.

En comparant l'échelle de couverture de Greywall avec celle de Seattle on observe une différence de 4.5 %, ce qui est nettement supérieur aux erreurs expérimentales estimées. De même, si l'on compare nos mesures de susceptibilité effectuées à des points caractéristiques du diagramme de phases (solidification des deux premières couches, apparition du ferromagnétisme, etc.) aux mesures de chaleur spécifique de Greywall, on trouve systématiquement une différence en taux de couverture d'environ 4 %.

Ce désaccord nous a conduit à vérifier cette méthode de détermination de la surface sur notre échantillon C_1 . Sur la figure 3.5, nous montrons les isothermes de N_2 pour notre échantillon et pour celui de Greywall.

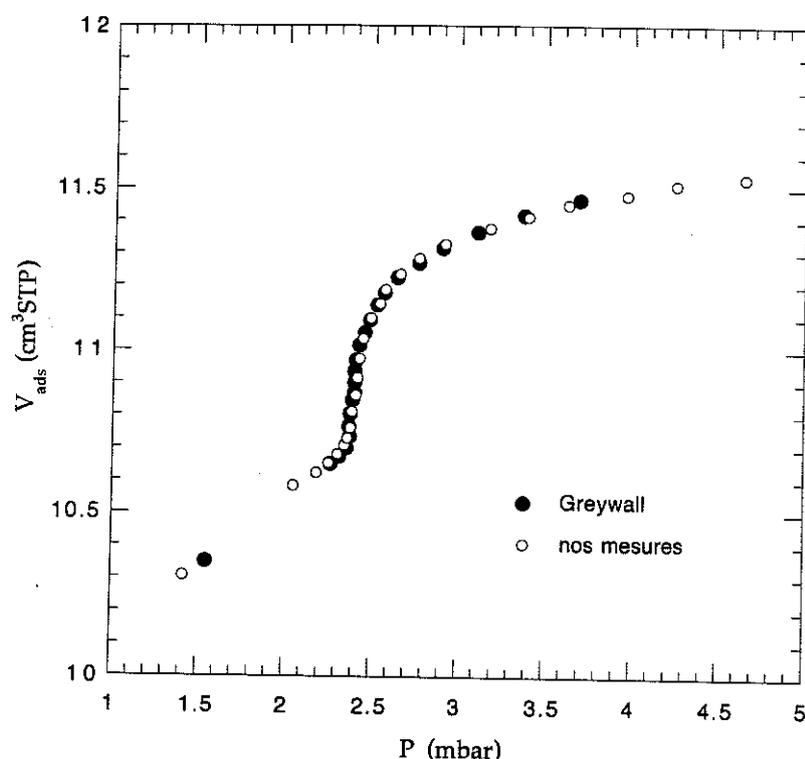


Figure 3.5: Volume de N_2 adsorbé en fonction de la pression à une température de 74 K pour notre cellule C_1 et celle de Greywall. Les volumes adsorbés mesurés par Greywall ont été divisés par un facteur 4.265.

L'arrondi après le brusque changement de pente dans l'isotherme intervient lorsqu'on complète la phase commensurable parfaite. Le volume adsorbé pour cette phase est donné par [44]:

$$V_{ads} = 1.055 V_{ads}^* \quad (3.2)$$

où V_{ads}^* correspond au volume adsorbé où le brusque changement de pente est observé.

Si on applique cette procédure pour notre échantillon on obtient un volume adsorbé de 11.26 cm³STP et donc une surface de 47.56 m², en très bon accord avec la détermination de

la surface par RMN. Ce fait suggère que les méthodes décrites ici pour déterminer la surface sont consistantes et, *a priori*, les densités obtenues par ces méthodes devraient être en accord avec une précision de l'ordre du pour cent. En appliquant une correction de 4% aux densités mesurées par Greywall, on obtient un excellent accord entre nos mesures de RMN et les mesures de chaleur spécifique de Greywall sur toute la gamme de densités. Ceci est illustré par la figure 4.2.4, où nous comparons une isotherme d'aimantation de nos mesures avec une isotherme de chaleur spécifique de Greywall.

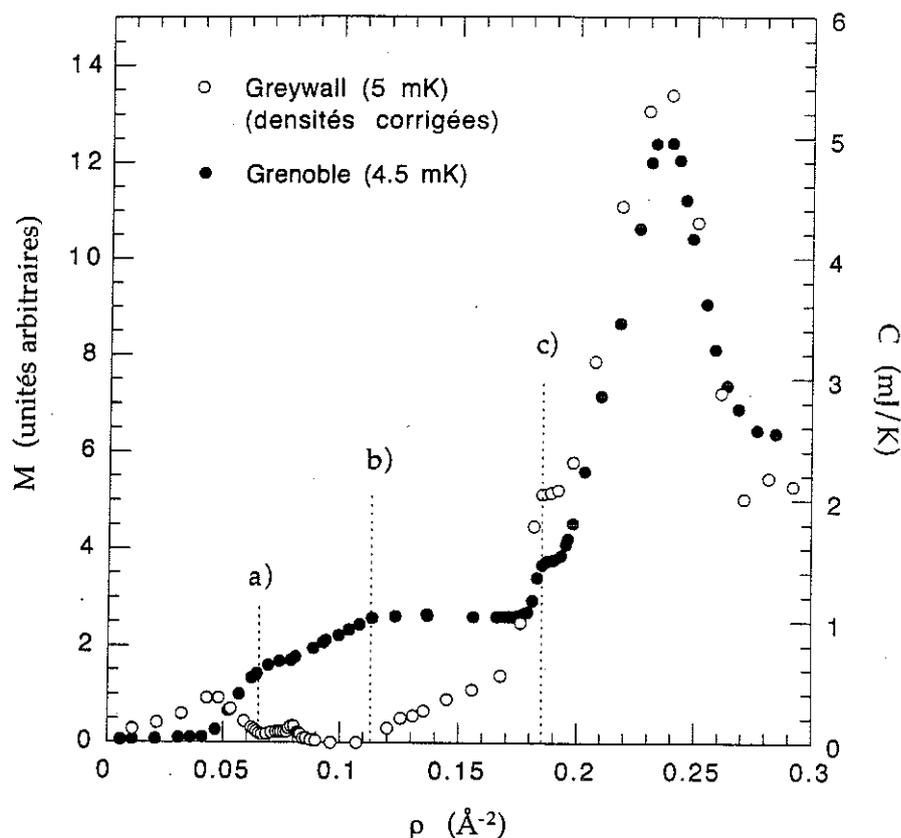


Figure 3.6: Isotherme d'aimantation et de chaleur spécifique [5] sur une très grande gamme de densités. Les points a), b) et c) correspondent respectivement à la solidification de la première couche, à la promotion du liquide en deuxième couche et à la solidification de la deuxième couche. Il faut souligner que les densités de Greywall ont été corrigées.

L'accord entre les deux séries de données est remarquable, notamment en ce qui concerne les points caractéristiques (points a), b), et c)) indiqués dans la figure 4.2.4.

Une conséquence directe de cette étude est que le diagramme de phases en sousmonocouche est simplifié. Une phase lacunaire (d'environ 6%) avait été proposée par Greywall afin de fixer la phase commensurable à une densité de $\rho = 0.06366$ atomes/Å². Cet écart est simplement dû à l'incorrection de son échelle de couverture. La première couche solidifie donc simplement dans une phase commensurable $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ sans passer par une phase lacunaire.

3.3.4 Echelle de taux de couverture mesurée aux neutrons

Une mesure de diffraction de neutrons donne accès à la distance interatomique des atomes d'hélium, et donc à une échelle de couverture [45, 4]. La figure 3.7 montre la densité du film mesurée par diffraction de neutrons en fonction de la densité totale du film déterminée en utilisant l'échelle de Grenoble.

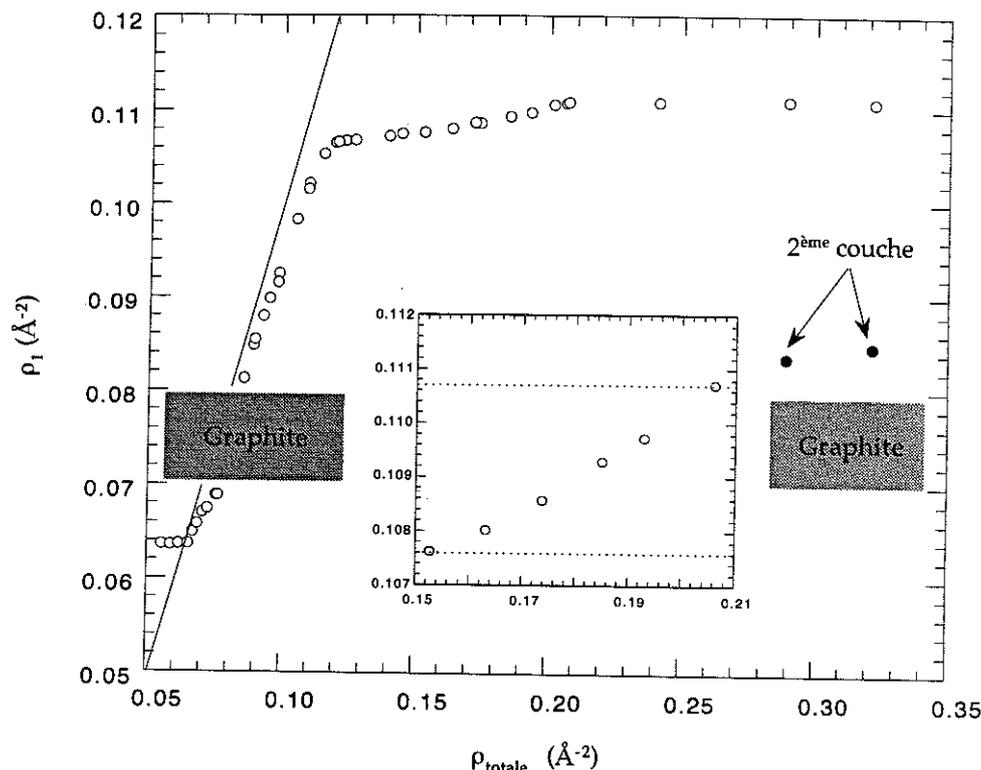


Figure 3.7: Densité du film d'³He adsorbé mesurée par diffraction de neutrons en fonction de la densité totale du film (échelle de Grenoble). (O): première couche. (●): deuxième couche. Le trait plein correspond à la situation $\rho_1 = \rho_{\text{totale}}$.

On remarque qu'à partir d'une densité supérieure à $\rho = 0.064 \text{\AA}^{-2}$, les deux échelles ne sont plus en accord. Ceci est dû au fait que le substrat n'est pas idéal. Le potentiel d'adsorption n'est pas homogène sur toute une plaquette de graphite. Ceci est illustré par la figure 3.8.

Pour un film avec une première couche très dense, les atomes d'³He peuvent donc occuper des sites qui ne sont pas occupés à une densité plus faible. La surface effective de l'échantillon augmente ainsi en fonction de la densité du film. Comme la densité totale du film (en abscisse, nous avons utilisé l'échelle commensurable) est calculée avec une surface constante (correspondant à la phase commensurable), ces densités sont donc plus élevées que celles obtenues par les mesures de neutrons qui donnent accès à la vraie densité (paramètre

de maille). La différence entre les deux échelles (neutrons et RMN) est de l'ordre de 6% au point où l'on complète la première couche.

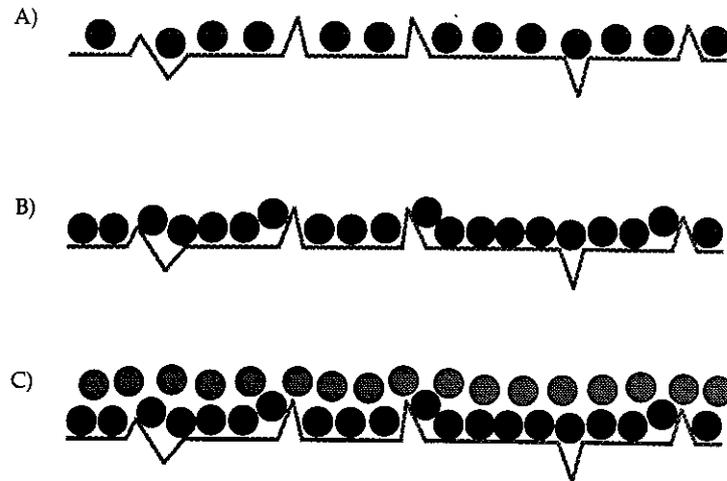


Figure 3.8: Evolution de la surface du substrat en fonction de la densité. A): surface occupée pour un solide de basse densité (e.g. phase commensurable). B): surface occupée par un solide très dense. La surface effective augmente à cause de l'hétérogénéité du substrat. C): la surface effective pour la deuxième couche (en gris) est légèrement plus grande que pour la première couche.

3.4 Conclusion

Nous avons montré que les différentes méthodes pour déterminer une échelle de taux de couverture commensurable sont en très bon accord (écarts inférieurs à 1%). Ce fait suggère que les densités déterminées par Greywall doivent être corrigées de 4%.

D'autre part, les mesures neutroniques nous permettent de tenir compte de l'augmentation de la surface effective du substrat en fonction du taux de couverture. Ces résultats permettent une analyse détaillée et quantitative de l'ensemble des mesures réalisées jusqu'à présent sur les systèmes d' ^3He adsorbé sur du graphite.



Chapitre 4

Les films d' ^3He pur: Une étude systématique

La figure 4.1 montre d'une manière très nette l'évolution de l'aimantation en fonction de la densité et de la température d'un film d' ^3He adsorbé sur du graphite.

Ce graphe est un résumé de toutes les mesures de RMN effectuées dans notre laboratoire sur le système d' ^3He pur. Les données en sous-monocouche sont basées sur les mesures de Rapp *et al.* [48] et de Morhard *et al.* [42]. Les données de la deuxième couche ($\rho > 0.120 \text{ \AA}^{-2}$) proviennent entièrement des mesures qui seront présentées dans ce chapitre. Afin d'obtenir ce graphe, toutes les données antérieures ont été réanalysées.

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats des mesures systématiques effectuées par RMN sur des films d' ^3He pur adsorbé sur du graphite. Une grande plage de densités a été étudiée. Les mesures présentées ici ont été effectuées sur le réfrigérateur à dilution. Dans certains cas, nous comparerons ces mesures à celles obtenues sur le nouveau réfrigérateur à désaimantation nucléaire.

Tout d'abord nous discutons quelques aspects de la première couche. Nous présentons l'étalonnage de notre spectromètre à RMN et discutons les propriétés des raies de RMN.

Ensuite, nous nous concentrons sur les propriétés du solide de la deuxième couche où des comportements magnétiques uniques sont observés. Nous discuterons chaque région du diagramme de phases de la deuxième couche en détail.

En ce qui concerne l'échange dans les phases solides, nous rappelons brièvement les différents modèles qui ont été proposés pour la description de l'interaction dans ces systèmes.

La discussion des phases liquides sera traitée en détail dans le chapitre 6.

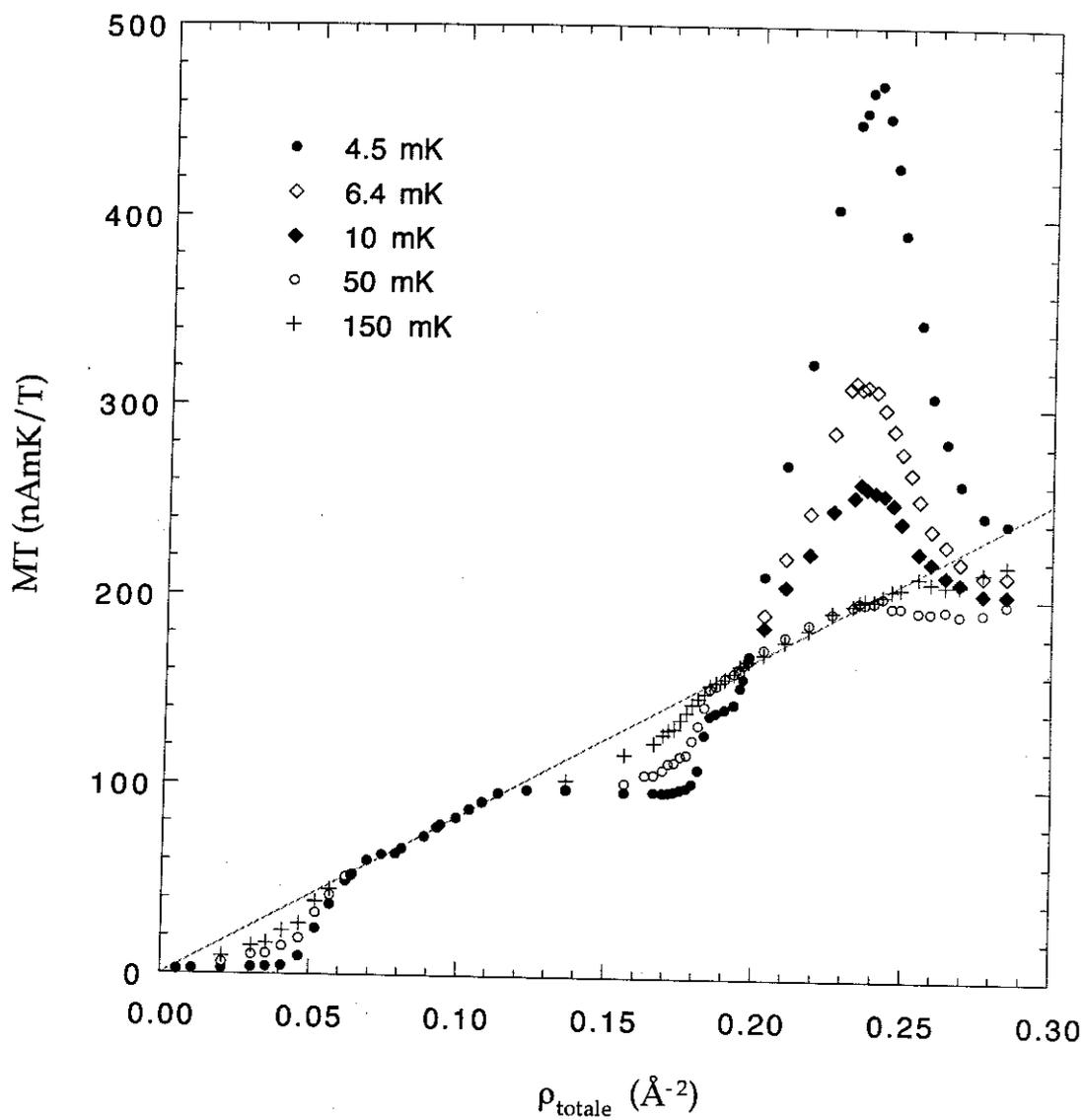


Figure 4.1: Produit de l'aimantation et de la température d'un film d'³He adsorbé sur du graphite en fonction de la densité totale pour différentes températures. La droite en trait plein correspond à la valeur attendue pour les spins libres.

4.1 La première couche

La première couche est la mieux caractérisée du diagramme de phases, grâce aux mesures de diffraction de neutrons. La formation de la phase commensurable $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ limite la région du diagramme de phases habituellement réservée au liquide. D'autre part, les solides de faible densité sont marqués par les effets de corrugation du substrat, et par le potentiel d'adsorption très élevé, qui réduisent fortement l'échange quantique des atomes d' ^3He .

Dans la suite nous allons traiter quelques aspects concernant les propriétés de la première couche.

4.1.1 Les sites de forte adsorption

A très faible densité (quelques pour cent d'une couche complète), on observe que l'aimantation des atomes d' ^3He adsorbés montre un comportement typique du solide, ce qui est attribué à des atomes d' ^3He localisés par des hétérogénéités du substrat (sites de forte adsorption) [42]. A très basses températures, nos mesures indiquent que ces atomes fortement localisés présentent un comportement antiferromagnétique avec une constante d'échange $J = -140 \mu\text{K}$. La quantité des atomes localisés dans ce cas correspond à une densité de 0.0012 \AA^{-2} . Ceci est montré sur la figure 4.2.

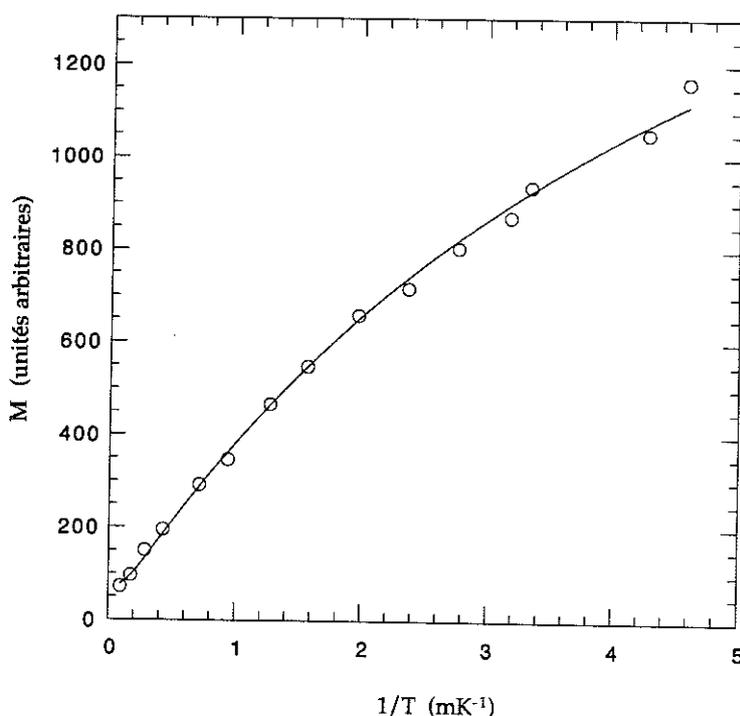


Figure 4.2: Aimantation des atomes fortement localisés en fonction de l'inverse de la température.

Ces atomes fortement localisés se situent probablement au bord des plaquettes de graphite (défaut du substrat). La quantité des sites de forte adsorption augmente linéairement avec la densité du film [42]. Au début de la solidification de la première couche ($\rho = 0.043 \text{ \AA}^{-2}$) elle atteint une valeur de 4% de la couche complète [42]. Les défauts du substrat ne sont donc pas négligeables et doivent être pris en compte dans une analyse quantitative.

4.1.2 Etalonnage du spectromètre à RMN

Dans la plage de densités $0.085 \leq \rho \leq 0.108 \text{ \AA}^{-2}$, le solide incommensurable suit la loi de Curie pour des températures supérieures à 4 mK [48]. Nos mesures à ultra basse température montrent que dans cette gamme de densités l'aimantation du solide suit un comportement paramagnétique jusqu'à une température de $180 \mu\text{K}$ (voir section 2.2.6). Ceci a également été observé par le groupe de Stanford [7] pour une densité très élevée où le solide en première couche est couvert par du liquide.

Une mesure de la susceptibilité d'un film solide permet donc un étalonnage absolu de l'aimantation dans cette gamme de densité. Ceci permet également de vérifier que l'échantillon est en équilibre avec le thermomètre. Deux étalonnages ont été effectués pour nos mesures, illustrés sur la figure 4.3, où nous représentons la constante de Curie par unité de volume d'³He adsorbé ($\text{cm}^3 \text{ d}'^3\text{He}$ gazeux dans les conditions normales de température et de pression) en fonction de la température.

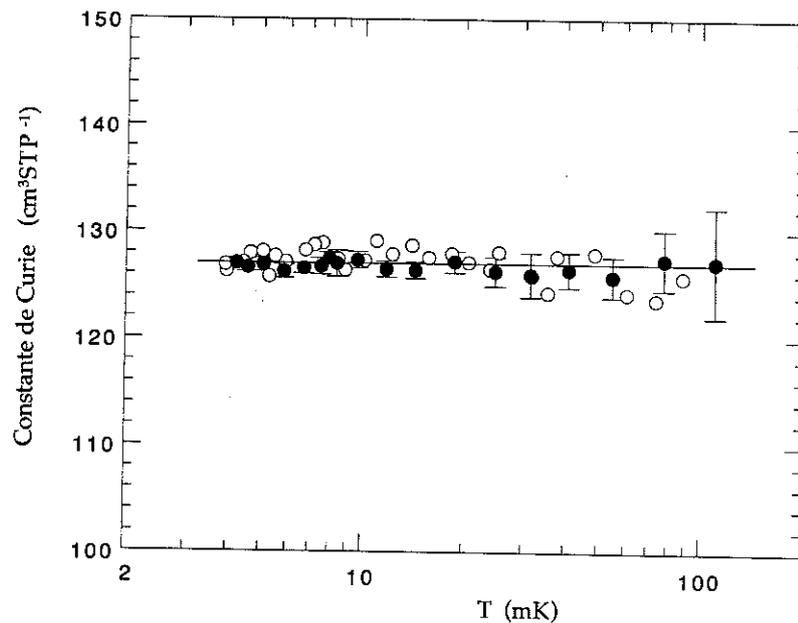


Figure 4.3: Constante de Curie par unité de volume adsorbé en fonction de la température d'un film d'³He solide en sous-monocouche.

Une première mesure (\circ : $\rho = 0.09295 \text{ \AA}^{-2}$) a été réalisée au début de l'expérience afin d'obtenir un étalonnage absolu du spectromètre à RMN. Une deuxième mesure (\bullet : $\rho = 0.09303 \text{ \AA}^{-2}$) a été effectuée à la fin de l'expérience (un an et demi plus tard) afin de vérifier la validité de l'étalonnage de l'aimantation. Les deux mesures sont en excellent accord (à 0.5% près) ce qui montre la bonne stabilité de notre spectromètre à RMN continue. On remarque également que les écarts par rapport à la loi de Curie sont inférieurs à 1% sur toute la gamme de températures ce qui constitue un bon test de la qualité de nos données. La constante de Curie par unité de volume d' ^3He adsorbé est de 127.1 (unités arbitraires par cm^3STP) pour les expériences effectuées sur le réfrigérateur à dilution.

4.1.3 Forme de raie et décalage en fréquence

A hautes températures ($T > 5 \text{ mK}$) les raies de RMN peuvent être décrites par une forme de raie lorentzienne et elles se trouvent à un champ qui correspond à la fréquence de Larmor. En baissant la température on observe différents effets montrés sur la figure 4.4: la raie s'élargit et devient asymétrique. On observe également un déplacement de la raie vers des champs plus bas.

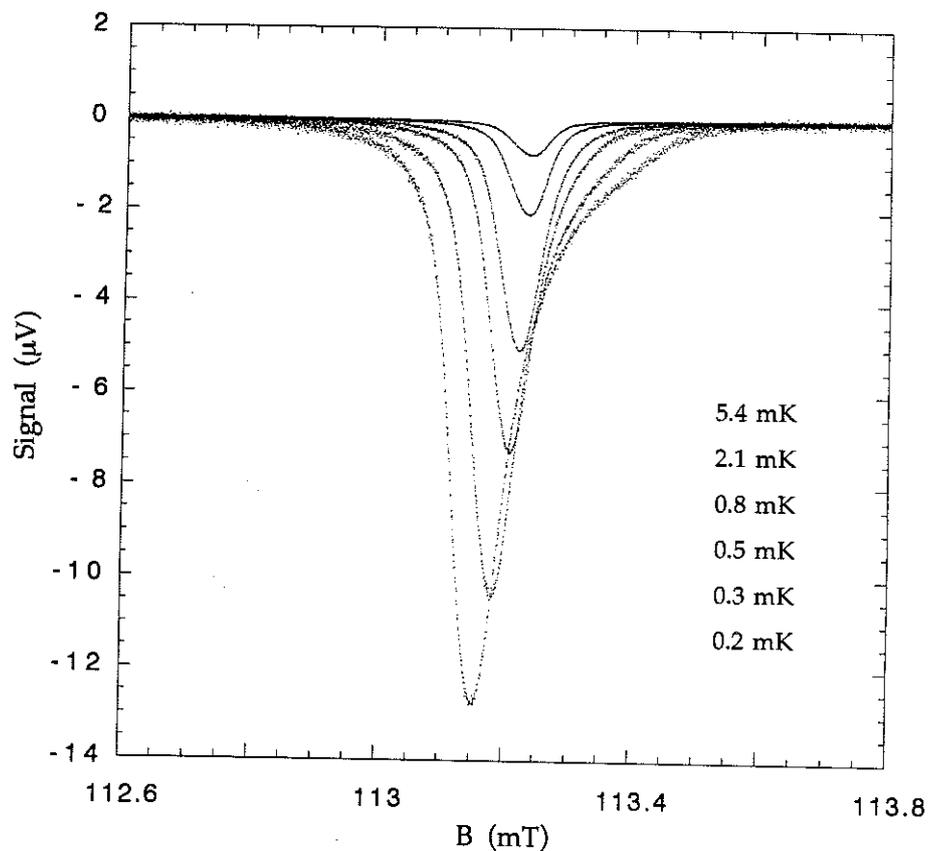


Figure 4.4: Raies de RMN mesurées à différentes températures.

La fréquence à laquelle le spin d'un atome d'³He résonne dépend du champ local auquel le spin est soumis. Le champ local dépend du champ dipolaire et il n'est pas identique pour tous les atomes d'³He, car le champ dipolaire varie en fonction de l'orientation d'une plaquette de graphite par rapport au champ externe. Si l'on calcule le champ dipolaire en fonction de l'orientation d'une plaquette en intégrant sur tous les spins d'un réseau triangulaire, le décalage en fréquence est donné par [49]:

$$\Delta\nu = P\nu_{max}(3\cos^2\Theta - 1) \quad (4.1)$$

où P est la polarisation du film, ν_{max} est le décalage maximum, et Θ est l'angle entre le champ magnétique externe et la normale à la plaquette de graphite. On s'aperçoit que pour une géométrie où les plaquettes sont alignées avec le champ externe on obtient un déplacement négatif (aux faibles champs) égal à $P\nu_{max}$ et dans le cas où les plaquettes sont perpendiculaires au champ externe on obtient un déplacement positif de $2P\nu_{max}$. Le déplacement maximum et la forme de la raie peuvent donc donner des informations sur la distribution des plaquettes.

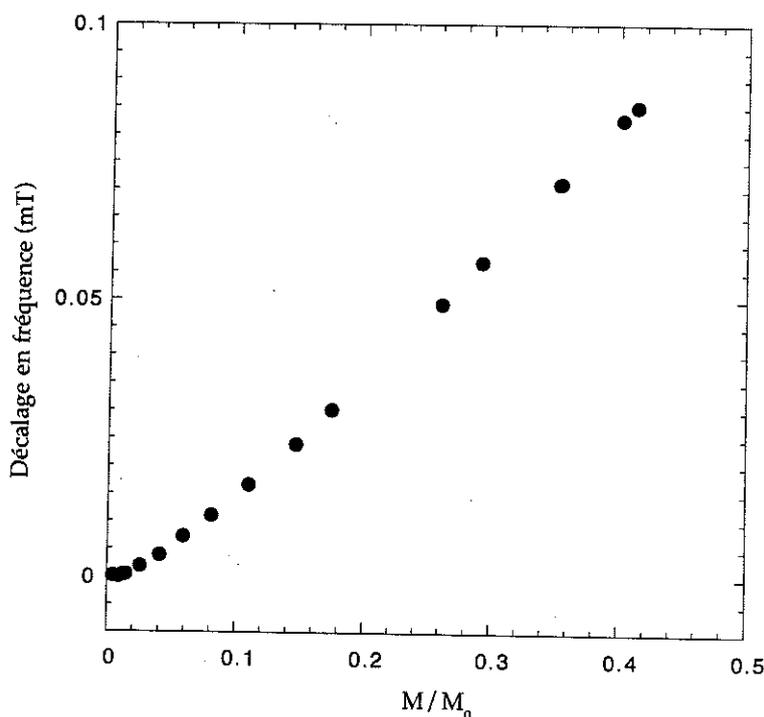


Figure 4.5: Décalage en fréquence des raies de RMN en fonction de la polarisation.

Le décalage en fréquence pour une densité de 0.135 \AA^{-2} est illustré par la figure 4.5. Ces mesures ont été effectuées à un champ relativement élevé (113 mT), où une polarisation du solide paramagnétique en première couche d'environ 42% est atteinte aux plus basses températures, de l'ordre de $200 \mu\text{K}$.

Un ajustement de la forme de raie peut être effectué en supposant une distribution gaussienne autour d'un angle Φ par rapport à la surface d'une plaquette. L'angle Φ et la largeur de la distribution sont déterminés par l'ajustement. Il faut également tenir compte de la forme de raie à haute température. Une forme lorentzienne a été utilisée pour la simulation de la forme de raie. Ensuite, le décalage en fréquence a été calculé en supposant une distribution gaussienne des plaquettes.

La figure 4.6 montre un exemple d'ajustement obtenu. Il donne une distribution gaussienne autour d'un angle d'environ $\Phi = 10^\circ$ (trait pointillé).

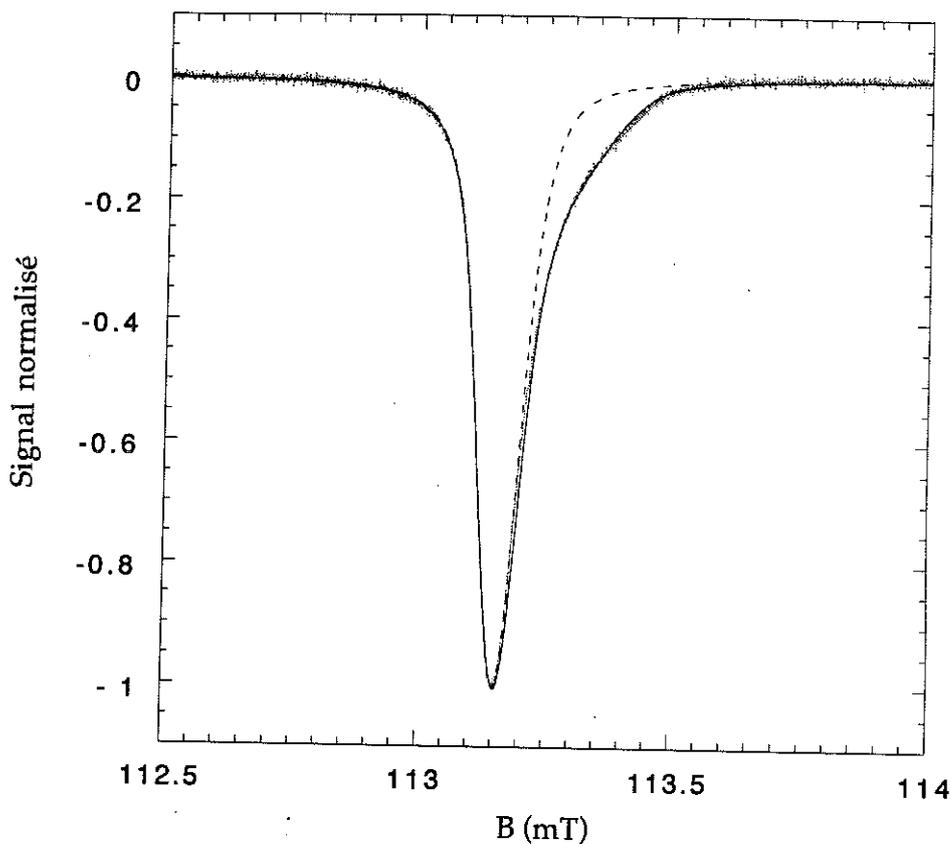


Figure 4.6: Raie de RMN à une température de $200 \mu\text{K}$. Les ajustements sont expliqués dans le texte.

Clairement une simple distribution gaussienne ne décrit pas d'une manière satisfaisante la forme de la raie. Un meilleur ajustement (trait plein) est obtenu en supposant une distribution qui se compose de deux gaussiennes centrées autour des angles $\Phi_1 = 10^\circ$ et $\Phi_2 = 30^\circ$. Cet ajustement est montré en trait plein dans la figure 4.6.

Des mesures de STM (Microscopie à Effet Tunnel) de notre substrat de Papyex sont actuellement en cours à l'université de Tsukuba afin de déterminer la taille et la distribution angulaire des plaquettes. Il serait donc intéressant de comparer la distribution des plaquettes

obtenue par cette méthode avec celle extraite de la forme de raie. Des mesures préliminaires montrent que la taille des plaquettes pour le Papyex est effectivement plus grande d'un facteur 2 à 3 que celle du Grafoil. Malheureusement les résultats des mesures de STM ne sont pas encore disponibles au moment de la rédaction de cette thèse.

4.1.4 La largeur des raies de RMN

La largeur des raies de RMN fournit des informations supplémentaires sur la structure et le diagramme de phases des films d'³He adsorbé. La dépendance de la largeur de raie en fonction de la densité montre un maximum pour une densité de 0.116 \AA^{-2} qui est attribué à la promotion des atomes en deuxième couche [48]. Ce fait peut également être utilisé pour une détermination de l'échelle de couverture.

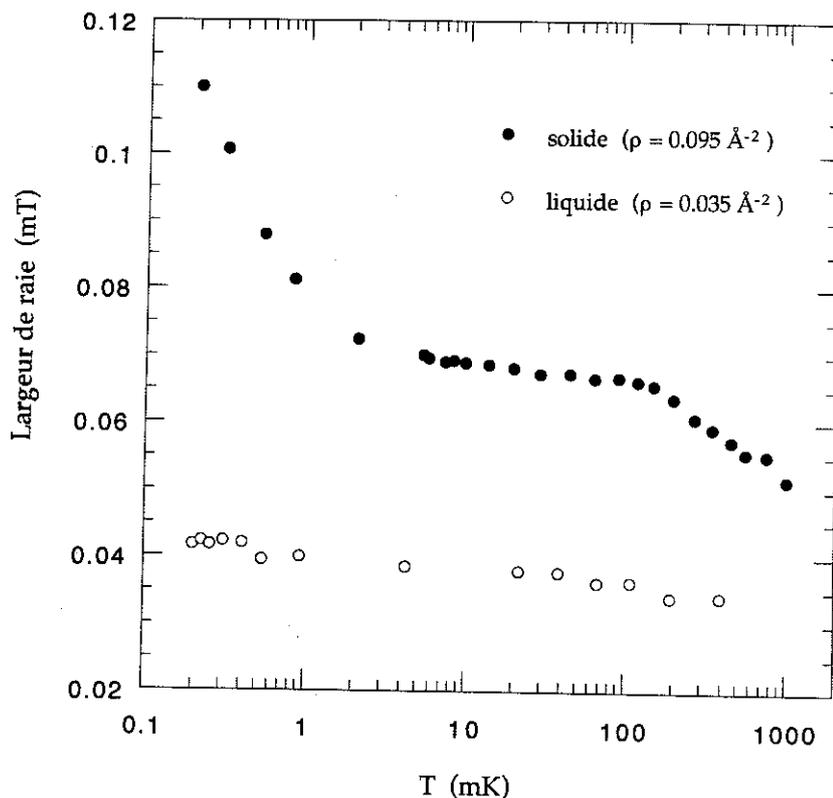


Figure 4.7: Largeur de raie de RMN en fonction de la température.

La dépendance de la largeur de raie en fonction de la température est montrée sur la figure 4.7. Les cercles pleins correspondent à une couche de solide incommensurable et les cercles vides à un film liquide. Les largeurs de raies illustrées dans cette figure sont définies par la largeur à mi-hauteur (FWHM). Dans ce cas le champ externe est de 113.2 mT.

La largeur de raie du liquide est plus faible que celle du solide. En fait, on s'attendrait à ce qu'elle soit plus petite de plusieurs ordres de grandeur. Nos mesures n'indiquent qu'un facteur 2 d'écart entre les largeurs de raie du solide et du liquide mesurées. Ce faible rapport est dû à l'élargissement de la raie du liquide induit par le diamagnétisme des plaquettes de graphite.

Pour la largeur du solide on observe trois régimes différents. A basse température ($T < 3$ mK) l'augmentation de la largeur de raie est due à la polarisation du solide (voir la section précédente). Pour des températures intermédiaires la largeur de raie est constante. En soustrayant la largeur du liquide on obtient une largeur homogène de 0.03 mT qui est en bon accord avec les mesures de Rapp *et al.* [48]. Cette valeur est substantiellement plus petite que la valeur correspondant au réseau rigide (≈ 0.3 mT). Ceci est attribué à l'échange dans le solide. A haute température ($T > 100$ mK) la raie diminue de manière exponentielle, caractérisant un processus d'activation thermique.

Pour une discussion détaillée de la largeur de raie nous ferons référence à l'article de Rapp *et al.* [48].

4.2 La deuxième couche

Dans cette section nous présentons des mesures systématiques sur une grande plage de densités à partir de la promotion du liquide en deuxième couche jusqu'à la formation du liquide en quatrième couche. Une trentaine de taux de couverture a été étudiée. La figure 4.8 montre les données brutes de nos mesures pour plusieurs densités. Un résumé de toutes les densités mesurées au cours de cette thèse est donné dans l'annexe A.

Nous consacrons cette section principalement à la structure et à l'échange quantique du solide en deuxième couche. Les propriétés magnétiques du liquide seront discutées en détail dans le chapitre 6.

La deuxième couche est particulièrement intéressante en ce qui concerne les propriétés magnétiques nucléaires. En changeant la densité du film, on peut ajuster la fréquence de l'échange quantique. A faible densité le solide a un comportement antiferromagnétique. Comme il s'agit d'un solide ayant une structure triangulaire, on s'attend également à observer des effets de frustration. En augmentant la densité, le solide devient ferromagnétique avec des propriétés uniques.

4.2.1 Le liquide: $0.116 \leq \rho \leq 0.179 \text{ \AA}^{-2}$

A partir d'une densité d'environ 0.116 \AA^{-2} , on observe la présence de liquide en deuxième couche. Nous présentons sur la figure 4.9 différentes isothermes de l'aimantation en fonction de la densité totale du film adsorbé qui illustrent cet effet.

A très basse température, la contribution du liquide à l'aimantation est négligeable par rapport au signal du solide de la première couche. L'aimantation à très basse température constitue donc une mesure directe de la densité de la première couche. Celle-ci forme un solide incommensurable (avec une structure triangulaire), ayant une énergie d'échange inférieure à $10 \mu\text{K}$ [7]; par conséquent, l'échange avec le liquide en deuxième couche est très faible. La première couche joue donc simplement le rôle d'un substrat de faible potentiel d'adsorption pour la deuxième couche.

En augmentant la densité du film, on observe une légère compression de la première couche. Celle-ci est en accord quantitatif avec les mesures de diffraction de neutrons [4]. Les isothermes d'aimantation à des températures plus élevées révèlent une augmentation de l'aimantation avec la densité du film. Cette augmentation est attribuée à la contribution du liquide à l'aimantation. On observe que l'aimantation augmente plus rapidement qu'une progression linéaire ce qui indique que la température de Fermi du liquide diminue en fonction de la densité.

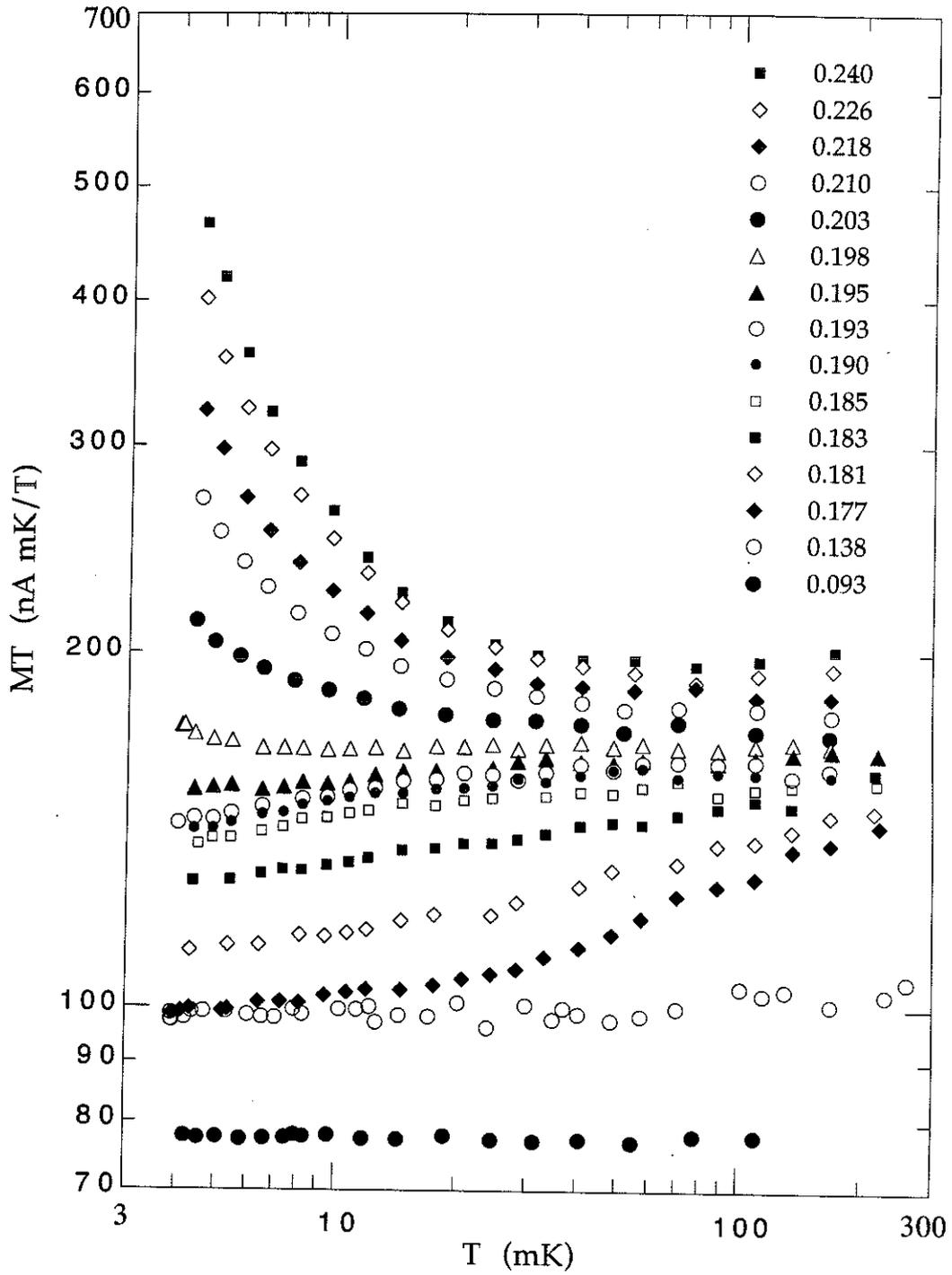


Figure 4.8: Produit de l'aimantation et de la température en fonction de la température pour des densités variant sur une large plage de taux de couverture.

En fait, ce liquide en deuxième couche devient extrêmement corrélé, et on obtient des températures de Fermi qui sont inférieures à 100 mK. L'aspect des liquides fortement corrélés sera discuté en détail dans le chapitre 6.

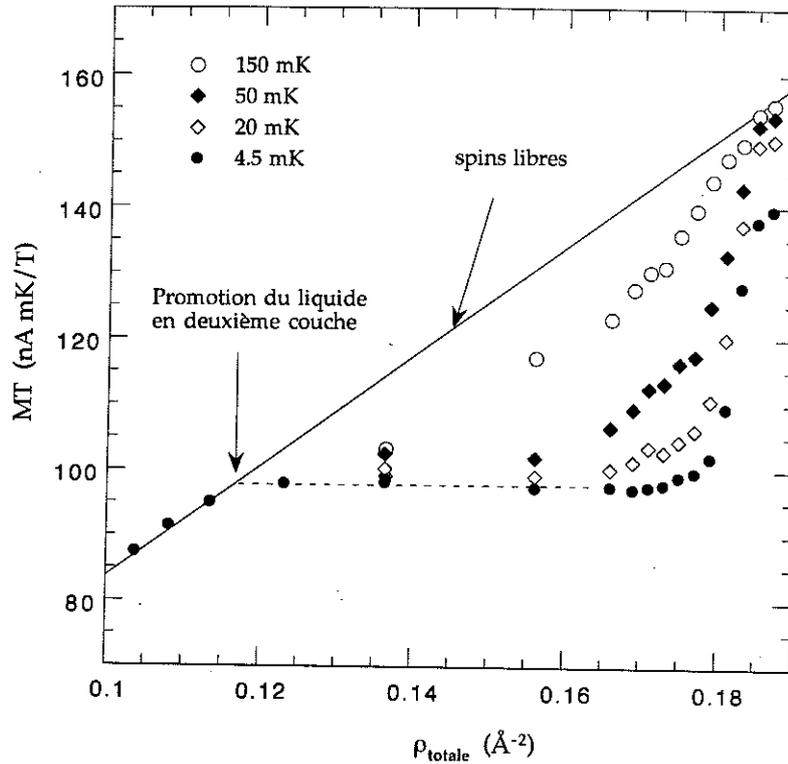


Figure 4.9: Isothermes d'aimantation en fonction de la densité totale du film d' ^3He adsorbé.

4.2.2 La solidification: $0.179 \leq \rho \leq 0.185 \text{ \AA}^{-2}$

A une densité d'environ 0.179 \AA^{-2} , l'aimantation à basses températures augmente très rapidement en fonction de la densité. Cette augmentation est liée au début de la solidification de la deuxième couche.

Dans une plage de densités entre 0.179 et 0.185 \AA^{-2} , on observe une coexistence liquide-solide caractérisée par une dépendance linéaire de l'aimantation en fonction de la densité. La chaleur spécifique montre également une dépendance linéaire en fonction de la densité [5]. Une comparaison de nos mesures de susceptibilité avec celles de chaleur spécifique est présentée dans figure 4.10. Les deux grandeurs évoluent de manière identique en fonction de la température. Il faut cependant souligner que les densités de Greywall ont dû être corrigées de l'ordre de 4 % (voir chapitre 3).

La dépendance de l'aimantation en fonction de la température peut s'expliquer par une coexistence entre un liquide fortement corrélé et un solide antiferromagnétique¹.

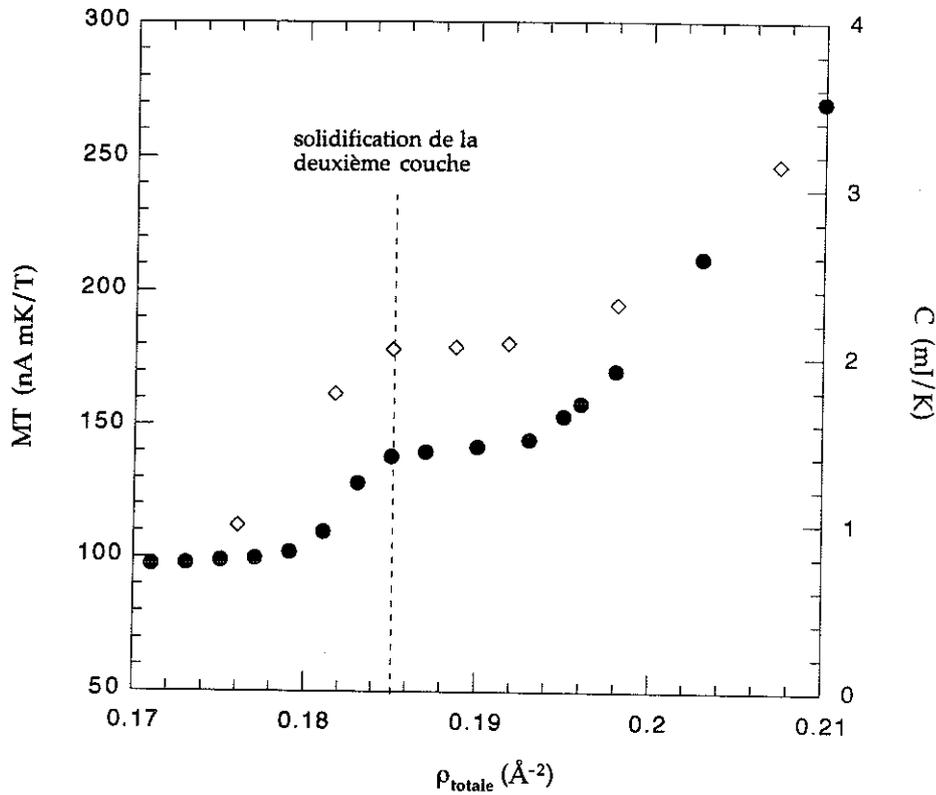


Figure 4.10: Isothermes de l'aimantation et de la chaleur spécifique en fonction de la densité totale. Le trait hachuré correspond à la densité où le solide en deuxième couche a complètement solidifié. (◇): chaleur spécifique, données de Greywall [5], corrigées en densité; (●): aimantation, nos données.

La figure 4.11 montre le produit de l'aimantation et de la température MT en fonction de la densité dans le régime de coexistence liquide-solide. Les données ont été ajustées par l'expression:

$$MT = \rho_1 C + \rho_{2L} C \frac{T}{\sqrt{T^2 + T_{F^{**}}^2}} + \rho_{2S} C \frac{T}{T + \Theta} \quad (4.2)$$

où Θ est la température de Curie Weiss ($\Theta = 3J_{AF}$), $T_{F^{**}}$ est la température de Fermi effective et ρ_{2S} et ρ_{2L} sont respectivement la densité du solide et du liquide de la deuxième couche. La dépendance en température de la susceptibilité du liquide est basée sur la théorie phénoménologique de Dyugaev [96] (voir le chapitre 6). Les trois paramètres ajustables sont donc $T_{F^{**}}$, Θ et ρ_{2S} . La densité du liquide est donnée par $\rho_{2L} = \rho_{tot} - \rho_1 - \rho_{2S}$.

¹une phase purement antiferromagnétique est observée quand le film est complètement solidifié.

Une séparation entre la contribution du liquide et du solide est obtenue sans ambiguïté si l'échelle d'énergie (T_F^{**} pour le liquide et Θ pour le solide) pour les deux quantités est très différente. Pour notre cas cette différence est de l'ordre de 30, ce qui rend une détermination précise des paramètres ajustables plus difficile.

En utilisant une température de Fermi de l'ordre de $T_F^{**} = 90$ mK (température obtenue pour le liquide juste avant la solidification; voir chapitre 6) nous obtenons une constante d'échange pour la phase antiferromagnétique de l'ordre de $\Theta = -2 \pm 0.6$ mK, valeur proche de celle observée dans le régime où le solide est purement antiferromagnétique. La figure 4.11 montre les ajustements (lignes en trait plein) obtenus en supposant que la constante d'échange ne varie pas dans le régime de coexistence liquide-solide ($\Theta = -1.8$ mK, valeur observée pour le solide antiferromagnétique (voir section 4.24)). La température de Fermi, dans ce cas, reste relativement constante: elle varie entre 80 et 110 mK pour les différents ajustements utilisés.

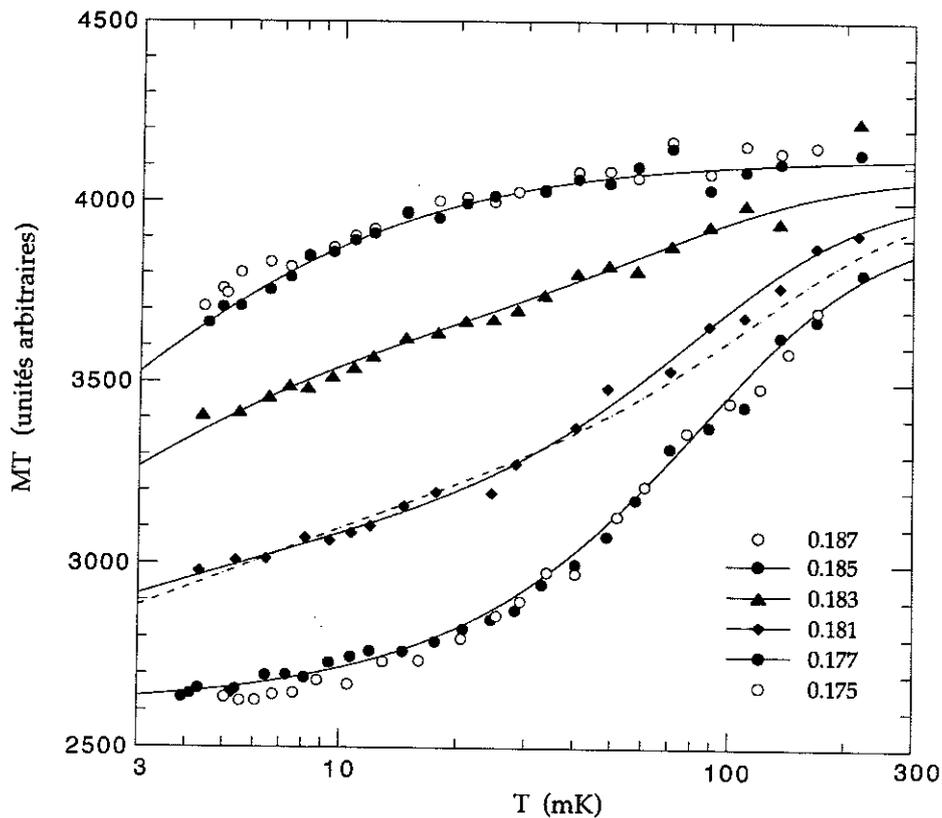


Figure 4.11: Produit de l'aimantation et de la température en fonction de la température dans le régime de coexistence liquide-solide en deuxième couche.

Ces ajustements sont d'une très bonne qualité, ce qui nous conduit à interpréter la région de coexistence comme une coexistence classique entre un liquide et un solide ayant leurs propriétés magnétiques invariantes.

Le groupe de Londres a trouvé des valeurs de J_{AF} variant de -1.4 à -0.7 mK dans le régime de coexistence [51], ce qui est en contraire à nos observations. Par exemple, à une densité de 0.181 \AA^{-2} , ils observent une valeur de $J_{AF} = -1.4 \text{ mK}$. En utilisant cette valeur de J_{AF} pour un ajustement de nos données (trait pointillé dans la figure 4.11) nous obtenons une température de Fermi de l'ordre de 170 mK et une densité du solide de $\rho_{2S} = 0.030 \text{ \AA}^{-2}$. Ceci implique que les propriétés du liquide devraient changer d'environ un facteur 2 pendant la solidification! De plus, cette valeur pour la densité du solide n'est pas cohérente avec la densité du solide déduite de leurs propres mesures de la chaleur spécifique. La valeur de J_{AF} de -1.4 mK trouvée par le groupe de Londres semble donc être un problème d'ajustement de leurs données.

La quantité de solide en deuxième couche obtenue par les ajustements montrés dans la figure 4.11 est illustrée dans la figure 4.12. On observe une dépendance linéaire en fonction de la densité totale du film de l' ^3He , confirmant l'hypothèse d'une coexistence liquide-solide. Nous représentons également les résultats du groupe de Londres, obtenus par des mesures de chaleur spécifique, qui sont en bon accord avec les nôtres. Toutefois, le régime de coexistence liquide-solide semble être légèrement plus grand en densité que celui obtenu à partir de nos mesures. Il faut noter qu'il est très difficile de déterminer la quantité de solide par des mesures de chaleur spécifique.

La figure 4.13 montre les isothermes d'aimantation et de chaleur spécifique dans ce régime de coexistence liquide-solide. On observe un très bon accord entre les deux séries de données. La largeur en densité du régime de coexistence ($\Delta\rho \approx 0.006 \text{ \AA}^{-2}$) confirme la quantité de solide extraite par nos mesures de RMN. Il semble donc que les différences pour les quantités de solide de la deuxième couche sont simplement dues à l'analyse des données de chaleur spécifique.

Afin de vérifier que les propriétés magnétiques du liquide et du solide sont invariantes dans cette région de coexistence liquide-solide, nous avons réalisé des mesures à ultra basse température. Il faut noter que ces mesures ont été effectuées sur un système légèrement différent, où la première couche est remplacée par de l' ^4He afin de supprimer le signal magnétique de la première couche. Ce système est très similaire à celui de l' ^3He pur: les mêmes propriétés magnétiques du liquide et aussi du solide ont été observées [56, 121] (voir aussi le chapitre 6). Ces mesures, faites avec une précision très supérieure à celles sur les films d' ^3He purs, donnent une constante d'échange $J_{AF} = -0.55 \text{ mK}$, ce qui est en très bon accord avec la constante d'échange observée pour le système pur dans la région où le solide en deuxième couche est entièrement antiferromagnétique (voir section 4.2.4). La constante d'échange dans ce cas est déterminée avec beaucoup de précision car l'ajustement s'effectue jusqu'à une température de l'ordre de 2 mK où la contribution est entièrement déterminée par le solide. La température de Fermi obtenue par ces ajustements est également similaire à celle observée pour le système d' ^3He pur (voir chapitre 6).

Nous concluons donc qu'il s'agit ici d'une région de coexistence liquide-solide classique caractérisée par une dépendance linéaire de la quantité du solide (ou du liquide) en fonction de la densité totale du film et par l'invariance des propriétés magnétiques du liquide et du solide.

4.2.3 Modèles d'échange pour l'³He adsorbé sur du graphite

Nous rappelons brièvement dans cette section les différents modèles d'échange qui ont été proposés afin d'expliquer le magnétisme des films d'³He solide.

Une des propriétés uniques du mécanisme d'échange dans l'³He solide est que l'atome entier (les électrons et les noyaux) intervient dans l'échange. L'échange dans l'hélium est donc considéré comme une permutation de *sphères dures*.

L'échange d'Heisenberg

Le modèle d'Heisenberg décrit l'interaction entre deux particules ayant un spin S . L'hamiltonien est donné par

$$\mathcal{H} = -2 \sum_{(i,j)} J_{ij} S_i S_j \quad (4.3)$$

où la somme s'effectue sur tous les voisins (i, j) et J_{ij} est la constante d'échange. Avec cette définition, l'échange est ferromagnétique quand $J > 0$ et antiferromagnétique pour $J < 0$. En utilisant les opérateurs de permutation \mathcal{P}_{ij} pour spin $\frac{1}{2}$ cet hamiltonien peut s'écrire:

$$\mathcal{H}' = - \sum_{(i,j)} J_{ij} \mathcal{P}_{ij} \quad (4.4)$$

où

$$\mathcal{P}_{ij} = \frac{1}{2} + 2 S_i S_j \quad (4.5)$$

L'échange d'Heisenberg correspond donc à un échange où deux particules sont permutes.

L'état fondamental du modèle de ferromagnétisme d'Heisenberg à deux dimensions est l'état complètement ordonné où tous les spins sont alignés. Le cas d'un système antiferromagnétique avec une structure triangulaire, l'³He adsorbé sur graphite, est particulièrement intéressant. La topologie de ce réseau conduit à des effets de frustration. La question, si l'état fondamental est ordonné, n'est pas résolue actuellement. Des études récentes [58, 60, 61] montrent que l'état fondamental serait ordonné, contrairement aux prédictions de la théorie d'Anderson [59].

Pour un système uni- ou bidimensionnel avec des interactions à courte portée, il n'y a pas de transition d'ordre à une température finie [57]. A température finie, l'aimantation est détruite par des ondes de spin. Cet effet peut être étudié expérimentalement et il sera discuté en détail dans le chapitre 5.

L'échange multiple

La théorie d'échange multiple [62] peut décrire correctement les propriétés thermodynamiques observées dans l' ^3He solide massif. Il semble donc raisonnable de penser que les interactions décrites par ce modèle doivent également jouer un rôle important pour le système à deux dimensions.

Dans ce modèle on considère un échange cyclique entre n particules, ce qui est illustré dans la figure 4.14.

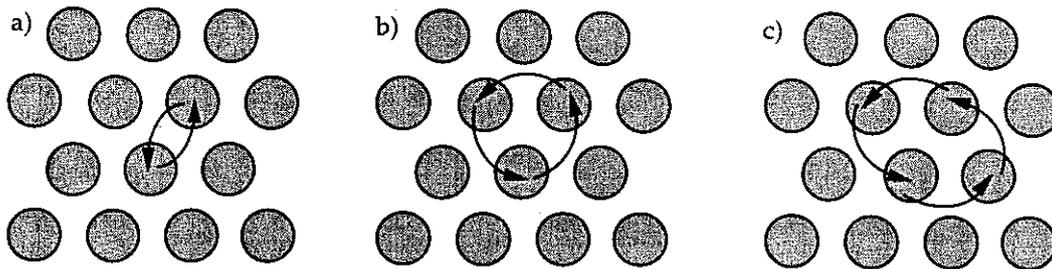


Figure 4.14: Echange cyclique entre deux (a), trois (b) et quatre particules (c).

La permutation de n particules peut être décrite par un produit des permutations entre deux particules et on obtient un hamiltonien qui est donné par:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_2 + \mathcal{H}_3 + \mathcal{H}_4 + \dots \quad (4.6)$$

où

$$\mathcal{H}_2 = - \sum_{(ij)} J_{ij} \mathcal{P}_{ij} \quad (4.7)$$

$$\mathcal{H}_3 = - \sum_{(ijk)} J_{ijk} (\mathcal{P}_{ij}\mathcal{P}_{jk} + (\mathcal{P}_{ij}\mathcal{P}_{jk})^\dagger) \quad (4.8)$$

.....

où \mathcal{H}_n correspond à l'échange cyclique de n particules entre proches voisins.

Un échange cyclique entre trois particules conduit également à un terme d'Heisenberg. Il faut noter que l'échange est ferromagnétique pour un nombre de particules n impair tandis qu'un échange antiferromagnétique est obtenu pour n pair [63]. Ceci est dû au fait qu'un échange cyclique entre un nombre pair de particules est accompagné d'un nombre impair de permutations, et que les permutations correspondent à un échange antiferromagnétique [63].

Les premières études utilisant le modèle d'échange multiple pour le cas d' ^3He adsorbé sur un réseau triangulaire ont été réalisées par Delrieu *et al.* [64]. Leurs résultats montrent

qu'un échange entre trois particules est favorable, ce qui conduit à un comportement ferromagnétique. Un tel comportement est effectivement observé pour la deuxième couche d'³He adsorbé sur graphite à forte densité [3] (voir section 4.2.6).

Les calculs de Roger [65] permettent d'estimer les fréquences caractéristiques des différents processus d'échange cyclique pour différentes valeurs de la densité du solide. A haute densité on obtient comme hiérarchie des différentes fréquences d'échange J_n : $J_3 > J_4 \approx J_6 > J_2$. Un échange ferromagnétique est donc obtenu à haute densité, en accord avec les mesures expérimentales.

A basse densité, l'échange antiferromagnétique devient plus important [66]. Des effets de frustration dus à une compétition entre un échange ferromagnétique et antiferromagnétique apparaissent. La hiérarchie des fréquences d'échange devient:

$$J_3 \approx J_2 \approx 2J_4 \approx 2J_6.$$

Dans ces calculs, un système strictement bidimensionnel a été supposé et le potentiel du graphite a été négligé. En fait, on observe des comportements différents pour le solide en première et en deuxième couche. Des calculs de Monte Carlo quantique (Path Integral Monte Carlo) [67] montrent que l'échange est affecté par le potentiel d'adsorption. Dans le cas d'un potentiel faible, la troisième dimension peut être utilisée lors du processus d'échange [68]. Ce caractère tridimensionnel est important même pour la première couche [67]. Le calcul des fréquences d'échange pour l'³He adsorbé sur graphite est donc un problème tridimensionnel difficile à résoudre.

Pour l'échange en sous-monocouche Bernu *et al.* [67] obtiennent une constante d'échange de l'ordre de 0.15 mK en accord raisonnable avec les mesures expérimentales.

Les développements valables à haute température les plus simples pour la chaleur spécifique et pour la susceptibilité sont donnés par [66, 67]:

$$C_V = \frac{9R}{4} \left(\frac{J_{eff}}{T} \right)^2 \quad (4.9)$$

$$\chi = \frac{C}{T - \Theta} \quad (4.10)$$

où

$$J_{eff}^2 = \left(J_2 - 2J_3 + \frac{5}{2}J_4 - \frac{7}{2}J_5 + \frac{1}{4}J_6 \right)^2 + 2 \left(J_4 - 2J_5 + \frac{1}{16}J_6 \right)^2 + \frac{23}{8}J_5^2 - J_5J_6 + \frac{359}{384}J_6^2$$

$$\Theta = -3 \left(J_2 - 2J_3 + 3J_4 - 5J_5 + \frac{5}{8}J_6 \right)$$

où J_n correspond à la fréquence d'échange cyclique entre n particules.

Des calculs au-delà de ce simple développement ont été récemment réalisés afin d'obtenir la dépendance en température des propriétés thermodynamiques. Roger [66] a étudié la

chaleur spécifique et la susceptibilité pour un amas de 16 spins. Ses calculs (approximation WKB multidimensionnelle) montrent une évolution d'un comportement antiferromagnétique à basse densité vers un système ferromagnétique à haute densité. Bernu *et al.* ont réalisé des calculs similaires (amas de 16 spins) en utilisant la méthode d'intégrale de chemin afin de déterminer les fréquences d'échange. Par diagonalisation exacte, ils observent une forte déviation du comportement de la susceptibilité et de la chaleur spécifique par rapport à un comportement d'Heisenberg pour une faible contribution d'échange cyclique entre quatre spins.

Le réseau de Kagomé

Les films d' ^3He solide donnent lieu à différentes phases commensurables et incommensurables (voir chapitre 3). En première couche, par exemple, on observe une phase commensurable où chaque troisième site du graphite est occupé.

La deuxième couche semble former une phase commensurable (R_{2a}) avec la première couche (à basse densité) avec un rapport des densités qui est égal à $\frac{4}{7}$. Une structure qui correspond à ce rapport (voir figure 4.15) a été proposée par Elser [52]. Tous les sites de cette phase ne sont pas identiques. Les atomes **A** (atomes en gris clair dans la figure 4.15) se situent dans les minima du potentiel d'adsorption et forment un réseau de Kagomé. Les atomes **B** se situent au-dessus des atomes de la première couche, et ont donc une faible énergie de liaison.

D'après le modèle de Elser [52], ce système peut être décrit par une interaction du type Heisenberg en supposant deux constantes d'échange J_{AA} et J_{AB} . J_{AA} est choisie antiferromagnétique pour rester cohérent avec les mesures de susceptibilité de Franco *et al.* [3] et J_{AB} est considérée comme négligeable d'après les mesures de chaleur spécifique de Greywall [5]. Ce modèle considère donc cette structure comme un réseau de Kagomé d'un spin $\frac{1}{2}$ ayant une interaction antiferromagnétique de type Heisenberg.

Une diagonalisation (pour un amas de 12 spins) indique que la dépendance en température de la chaleur spécifique devrait montrer deux pics séparés par une grande différence en température. Ceci est en accord qualitatif avec les mesures de Greywall [5], qui observe un pic de la chaleur spécifique à une température d'environ 2.5 mK. Greywall observe également que, en appliquant une extrapolation de ses données vers $T = 0$, il n'obtient que la moitié de l'entropie des spins. L'existence d'un deuxième pic à plus basses température, prédit par ce modèle, donne donc une explication de ce fait.

En ce qui concerne la susceptibilité, une aimantation correspondant à 75 % des atomes qui montrent un comportement antiferromagnétique et 25 % des atomes qui exhibent un comportement paramagnétique devrait être trouvée à très basse température.

Ce modèle donne donc une interprétation très intéressante des propriétés de la phase

commensurable antiferromagnétique R_{2a} . L'idée du réseau Kagomé est particulièrement intéressante en ce qui concerne l'état fondamental. La dégénérescence de la frustration topologique est plus importante pour ce système que pour le réseau triangulaire. On prédit en particulier que l'état fondamental est un liquide de spin [61].

L'échange indirect

Le système d'³He adsorbé sur graphite où la deuxième couche est couverte par du liquide est également très intéressant. Dans ce cas le solide peut interagir avec le liquide donnant lieu à une interaction effective dans le solide du type Rudermann-Kittel-Kasuya-Yoshida (RKKY). Ce problème a été étudié par plusieurs auteurs [70, 71, 72, 73, 74, 75] et une description détaillée de ces différents processus peut être trouvée dans [10].

Ces mécanismes d'échange peuvent conduire à un comportement ferromagnétique. En effet, l'échange dans la deuxième couche d'³He adsorbé passe d'un comportement antiferromagnétique à un comportement ferromagnétique, quand le liquide commence à apparaître en troisième couche.

Une comparaison des différents modèles avec les données expérimentales sera détaillée dans la suite de ce chapitre.

4.2.4 Le solide antiferromagnétique:

$$0.185 \leq \rho \leq 0.193 \text{ \AA}^{-2}$$

La solidification de la deuxième couche est observée à une densité de $\rho = 0.185 \text{ \AA}^{-2}$, comme traité en détail dans la section 4.2.2. La densité du solide est très faible (de l'ordre de 0.06 \AA^{-2} seulement). Il est accepté que ce solide est commensurable avec la première couche [53]. Des mesures précédentes [5] ont montré que la commensuration "parfaite" est observée lorsque le rapport des densités entre la deuxième et la première couche est égal à $\frac{4}{7}$. Une structure possible de cette phase commensurable, proposé par Elser [52], est illustrée sur la figure 4.15. Des calculs numériques [54] confirment la stabilité de cette phase.

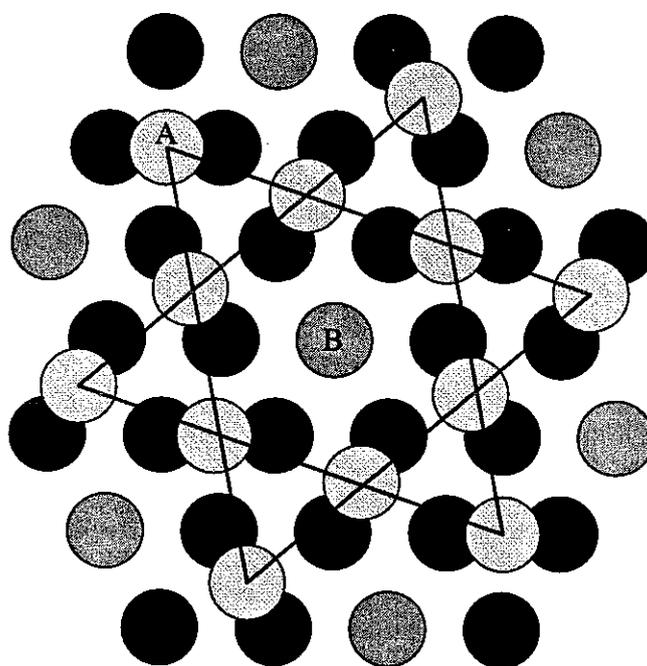


Figure 4.15: Structure de la phase commensurable de la deuxième couche proposée par Elser [52]. Les atomes en première couche sont en noir. Les atomes marqués en gris clair, notés *A*, se situent dans les minima du potentiel d'adsorption et forment un réseau de Kagomé (indiqué par les traits pleins). Les atomes en gris foncé, notés *B*, se situent au-dessus des atomes de la première couche.

Cependant, il n'existe pas de preuve directe de l'existence d'une telle phase commensurable. Cette hypothèse ne peut malheureusement pas être vérifiée par des mesures de neutrons, car les signaux de diffraction de neutrons sont très faibles, le facteur de Debye Waller étant très grand. Une autre difficulté est associée au fait que le pic du graphite (0002) se trouve très près de l'endroit dans le spectre où le pic de la deuxième couche est attendu.

Néanmoins, des études de systèmes similaires, où la première couche est remplacée par une couche d' ^4He (ou deux couches de HD), tendent à confirmer l'existence d'une phase $\frac{4}{7}$ ^{eme} [56, 55].

Au delà d'une densité de $\rho = 0.185 \text{ \AA}^{-2}$ le diagramme de phases est encore très controversé. Les mesures de Greywall montrent une dépendance linéaire de la chaleur spécifique en fonction de la densité ρ_2 de la deuxième couche, interprétée comme une coexistence entre deux phases commensurables. La deuxième phase commensurable R_{2b} serait observée à une densité $\rho = 0.201 \text{ \AA}^{-2}$ (0.193 \AA^{-2} pour l'échelle de Greywall), où le rapport entre les densités de la deuxième et de la première couche est égal à $\frac{2}{3}$. Ceci est illustré sur la figure 4.16.

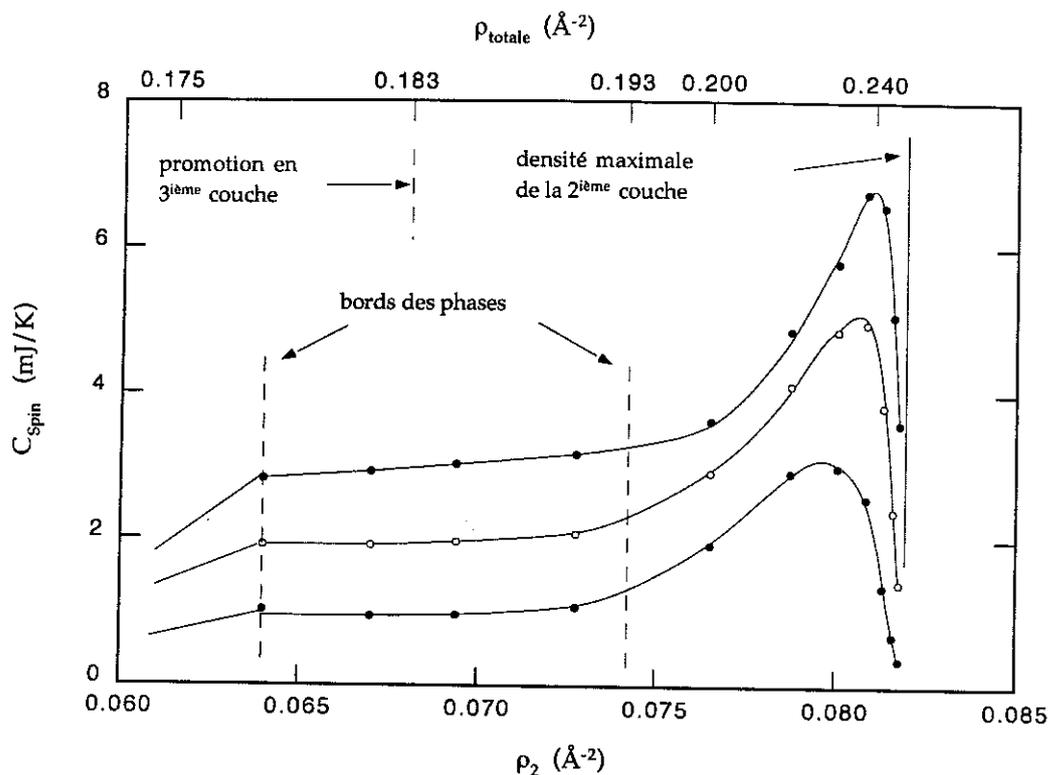


Figure 4.16: Chaleur spécifique en fonction de la densité de la deuxième couche mesurée par Greywall [5]. Les deux traits pointillés correspondent au bord de la région de coexistence entre les deux phases commensurables R_{2a} et R_{2b} estimé par Greywall.

Cependant les arguments de Greywall ne sont pas tout à fait convaincants. On n'observe pas de changement des propriétés magnétiques entre ces deux phases: la constante d'échange mesurée par RMN [3] est pratiquement constante dans ce régime, et de plus, la chaleur spécifique varie peu. Par ailleurs, à une densité d'environ 0.190 \AA^{-2} , Greywall observe une promotion du liquide en troisième couche. Pour tenter de mieux comprendre l'évolution de la structure et du magnétisme de ces systèmes, nous avons étudié en détail cette région du diagramme de phases.

La suite de cette section est principalement consacrée au régime de coexistence entre deux phases commensurables, tel que proposé par Greywall [5]. La figure 4.17 montre nos mesures de l'aimantation du film d' ^3He en fonction de la densité totale à une température de 4.5 mK . Aux plus basses densités, l'aimantation est dominée par la contribution de la

première couche et fournit une mesure directe de la densité de la première couche. A une densité de 0.179 \AA^{-2} on observe une augmentation très nette de l'aimantation qui correspond au début de la solidification de la deuxième couche. Dans la gamme de densité de 0.185 à 0.193 \AA^{-2} un plateau est observé pour l'aimantation, attribué à l'échange antiferromagnétique de la deuxième couche. Dans cette région, que nous appellerons la région de "l'antiferromagnétisme pur", l'aimantation est très bien décrite par une loi de Curie Weiss avec une température de Curie Weiss Θ constante dans toute la région. A partir d'une densité de 0.193 \AA^{-2} , l'aimantation augmente assez rapidement, ce qui correspond au début du ferromagnétisme.

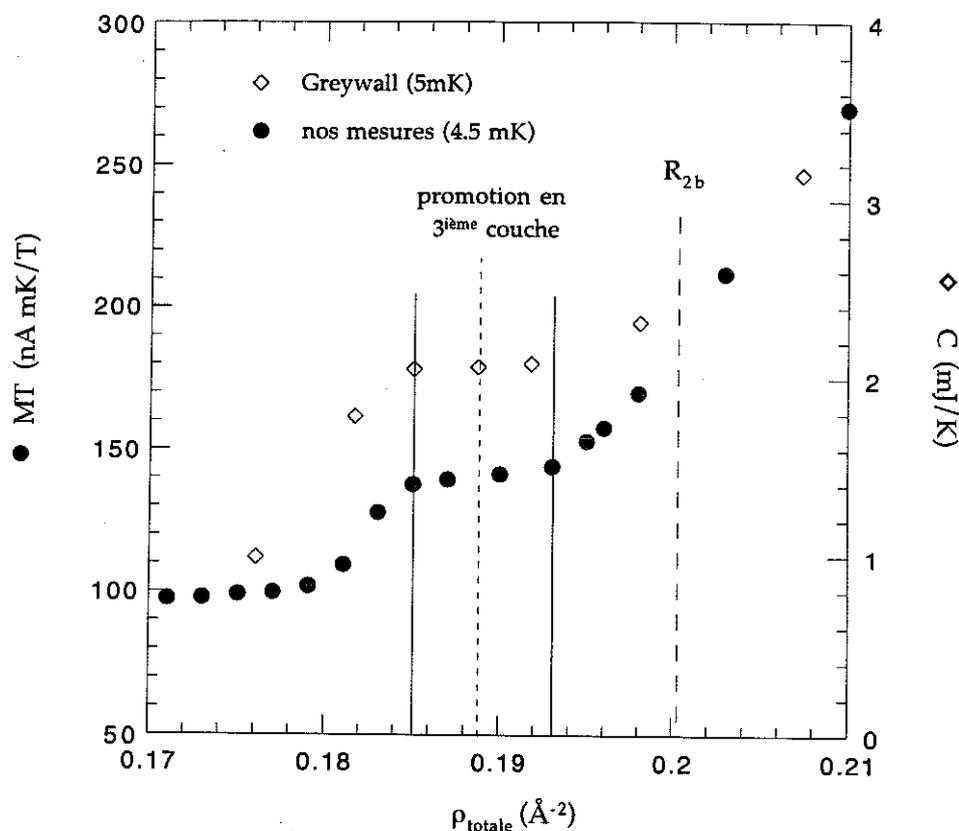


Figure 4.17: Isotherme de l'aimantation et de la chaleur spécifique dans le régime de coexistence solide-solide. Les deux traits pleins délimitent la région où nous observons le régime purement antiferromagnétique. Le trait hachuré indique la densité où Greywall observe la phase R_{2b} .

Nous montrons également une isotherme de chaleur spécifique à une température de 5 mK mesurée par Greywall [5]. On observe un très bon accord qualitatif entre les deux séries de données. Les traits pleins délimitent la région où nous observons le régime purement antiferromagnétique. Le trait hachuré indique la densité où Greywall situe la phase R_{2b} .

On remarque que le régime où l'on observe un comportement purement antiferromagnétique est beaucoup plus étroit que celui estimé par Greywall. La largeur du palier

ne correspond pas quantitativement à l'hypothèse d'une coexistence de deux phases solides ayant des rapports de densités respectivement de $\frac{4}{7}$ et $\frac{2}{3}$ par rapport à la première couche.

En outre, l'aimantation et la chaleur spécifique varient peu dans cette région. Autrement dit, les propriétés magnétiques sont indépendantes de la densité. Il est peu probable d'avoir une coexistence de deux phases commensurables présentant exactement les mêmes propriétés magnétiques.

La figure 4.18 montre les constantes d'échange J obtenues par des ajustements en utilisant une loi de Curie Weiss ($\Theta = 3J$) pour l'aimantation de la deuxième couche. Nous représentons également les résultats des mesures antérieures.

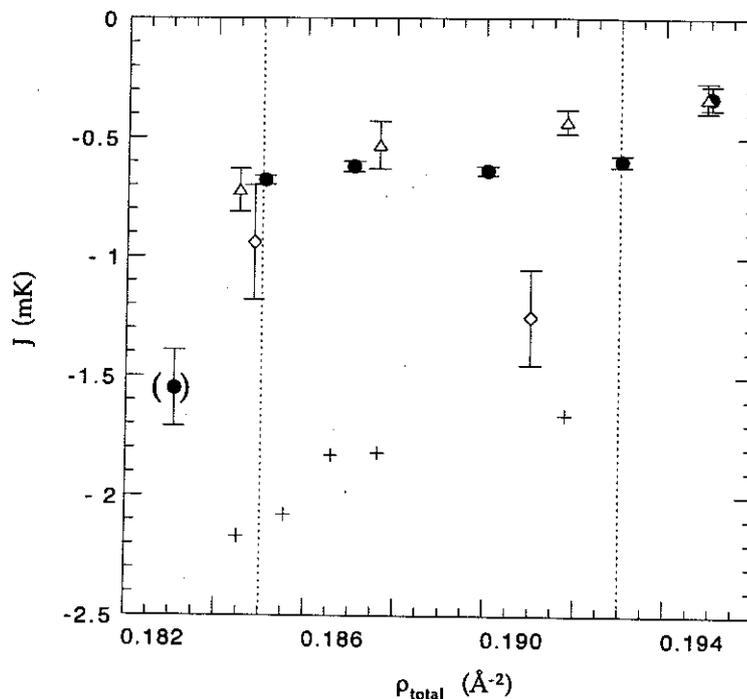


Figure 4.18: Constante d'échange en fonction de la densité totale du film dans le régime antiferromagnétique: (\diamond): données de Franco *et al.* [3]; (\triangle): données de Siqueira *et al.* [95]; (\bullet): nos données. Les symboles (+) correspondent aux valeurs de J extraites des mesures de la chaleur spécifique de Siqueira *et al.* [8].

La grille fine et la haute précision de nos mesures nous permettent d'identifier clairement le régime de l'antiferromagnétisme pur (indiqué par des traits pointillés) et de le distinguer d'une part de la région de coexistence liquide-solide à basse densité et d'autre part du début du ferromagnétisme à haute densité. La constante d'échange dans le régime de coexistence liquide-solide, montrée entre parenthèses dans la figure 4.18, a été obtenue en utilisant un ajustement de Curie Weiss et en supposant que tous les atomes de la deuxième couche appartiennent au solide. Cet ajustement est d'une très mauvaise qualité et on obtient une température de Curie Weiss qui n'a aucune signification physique. Ceci montre clairement

que nous pouvons distinguer le régime de coexistence du régime de l'antiferromagnétisme pur sans ambiguïté.

L'écart entre les constantes que nous avons mesurées et celles obtenues par Franco *et al.* est dû à l'imprécision de leurs mesures, les premières qui aient été réalisées sur ce système.

Comme nous l'avons décrit dans la section précédente, la région de coexistence liquide-solide peut être très bien caractérisée par une coexistence classique où les propriétés magnétiques du solide (et du liquide) restent invariantes. Ce fait suggère que le film d' ^3He solidifie dans une phase commensurable très stable.

Les symboles (+) dans la figure 4.18 correspondent aux constantes d'échange obtenues par les mesures de chaleur spécifique de Siqueira *et al.* [8]. La différence entre les constantes d'échange mesurées par RMN et celles obtenues par la chaleur spécifique peut être interprétée comme une indication de l'existence d'échange multiple. Ce fait a déjà été observé dans le cas d' ^3He solide massif [62]. Nous avons vu dans la section précédente, que les différents processus d'échange (échange à 2,3... particules) donnent des comportements antiferromagnétiques et ferromagnétiques. Comme la chaleur spécifique dépend d'une manière différente des échanges cycliques par rapport à la susceptibilité (voir les équations (4.9) et (4.10)), un comportement antiferromagnétique peut être observé pour la chaleur spécifique tandis que la susceptibilité montre un comportement ferromagnétique, et vice versa.

Nous allons revenir sur la discussion de l'échange dans la prochaine section. Nous discutons maintenant nos résultats concernant le type de commensurabilité observé pour la deuxième couche.

La figure 4.19 montre des isothermes de l'aimantation pour différentes températures. A basse température, dans la région où la deuxième couche est solide, l'aimantation est inférieure à la valeur correspondant aux spins libres, car le solide est antiferromagnétique. A haute température, l'aimantation mesurée tend vers cette valeur.

Dans cette figure nous avons normalisé l'aimantation par rapport à celle de la première couche juste avant la solidification de la deuxième couche. Nous rappelons que l'aimantation à basse température avant la solidification de la deuxième couche est une mesure directe de la densité de la première couche. La phase $4/7^{eme}$ correspond ainsi à une densité où l'aimantation normalisée a une valeur de $\frac{11}{7}$. Ceci est indiqué par le trait horizontal plein. La densité qui correspond à la phase $4/7^{eme}$ est ensuite donnée par l'intersection de ce trait avec celui qui correspond à la contribution des spins libres. En fait, la phase commensurable est observée pratiquement au milieu du régime de l'antiferromagnétisme pur. Il faut souligner que cette observation est déduite directement des constantes de Curie de la première et de la deuxième couche, qui sont proportionnelles au nombre d'atomes. Cette méthode est précise et ne dépend pas du choix de l'échelle de couverture utilisée. Le trait hachuré correspond à la densité où l'on observerait la phase $2/3$.

L'interprétation la plus simple est de considérer que la phase $4/7^{eme}$ est stable dans un domaine de densités dans le régime antiferromagnétique. Des défauts, l'hétérogénéité et une compression de la première couche expliquent probablement la largeur finie de cette région où la phase $4/7^{eme}$ est stable.

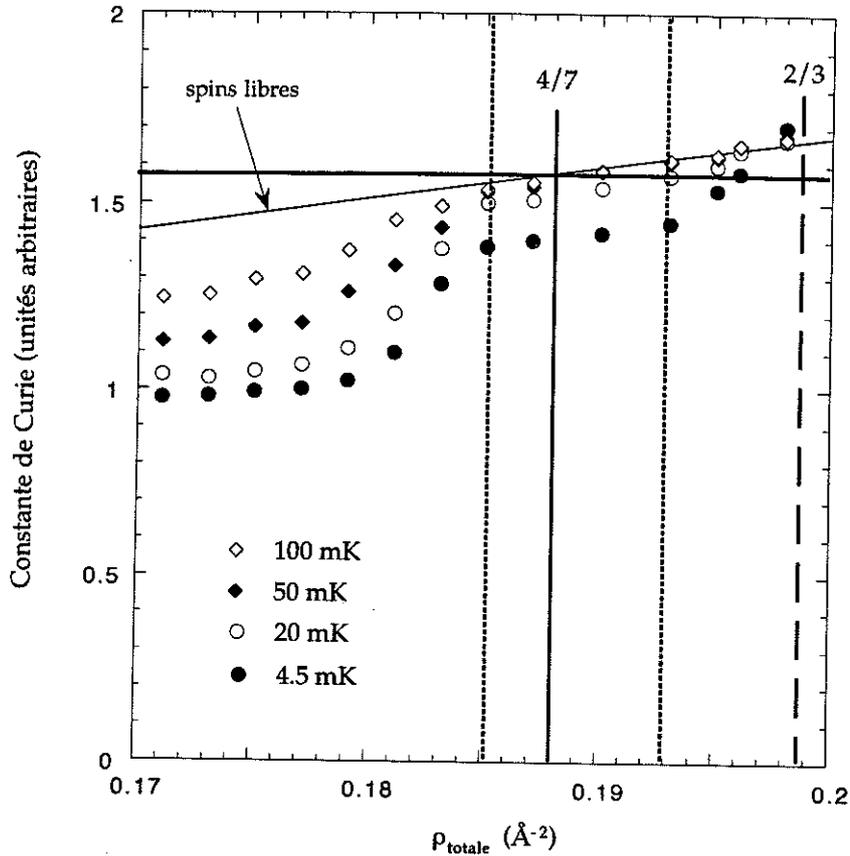


Figure 4.19: Aimantation dans le régime de l'antiferromagnétisme pur pour différentes températures. Dans ce cas, l'aimantation est divisée par l'aimantation de la première couche, mesurée juste avant la solidification de la deuxième couche.

En effet, à une densité de 0.185 \AA^{-2} où la deuxième couche est solide, Greywall observe que 5% de la deuxième couche reste encore liquide. Cette contribution liquide diminue en fonction de la densité et disparaît à une densité d'environ 0.190 \AA^{-2} . C'est exactement l'endroit où nous observons la phase $4/7^{eme}$. A la même densité Greywall observe également la promotion des atomes en troisième couche.

L'apparition du ferromagnétisme a lieu à une densité d'environ 0.193 \AA^{-2} . Ceci est confirmé par des mesures à ultra basse température du groupe de Stanford, où une petite contribution ferromagnétique est observée [7]. Ces mesures ont été effectuées jusqu'à des températures de l'ordre de $80 \mu\text{K}$. Aux températures les plus basses, ils observent que quelques pour cent des atomes en deuxième couche montrent un comportement ferromagnétique (à ces températures la contribution du solide antiferromagnétique est négligeable).

A haute température, au contraire, on remarque que l'aimantation est encore au-dessous de la valeur des spins libres (voir figure 4.19). L'évolution de l'antiferromagnétisme vers le ferromagnétisme est un problème structural et magnétique complexe qui sera discutée en détail dans la section (4.2.6).

En conclusion, nous avons observé que les propriétés magnétiques du solide en deuxième couche (constante d'échange antiferromagnétique, aimantation et chaleur spécifique) restent invariantes dans une gamme de densités bien définie. Nos mesures d'aimantation impliquent que la deuxième couche solidifie dans une phase commensurable très stable où le rapport entre les densités de la deuxième et de la première couche est $\frac{4}{7}$. Ce rapport est déterminé avec précision par la mesure de l'aimantation de la première et de la deuxième couche. L'hypothèse de l'existence de la phase commensurable R_{2b} proposée par Greywall n'est pas confirmée par nos mesures.

4.2.5 Les mesures à des températures inférieures à 2 mK

Dans cette section nous discutons le comportement du solide antiferromagnétique à très basse température ($T < 2$ mK). Il s'agit d'un système particulièrement intéressant, car il constitue un modèle expérimental simple pour l'antiferromagnétisme des systèmes frustrés. Nous présentons ici pour la première fois des résultats dans le régime où la température est inférieure à l'énergie d'échange.

Ces mesures ont été effectuées sur un système où la première couche d' ^3He est remplacée par une couche d' ^4He . Dans ce cas le signal magnétique de la première couche est supprimé et l'aimantation mesurée est entièrement due à la contribution du solide en deuxième couche. Ces expériences ont été effectuées à relativement fort champ (113.2 mT, ce qui correspond à une fréquence de RMN de 3.673 MHz), en utilisant la cellule C_5 .

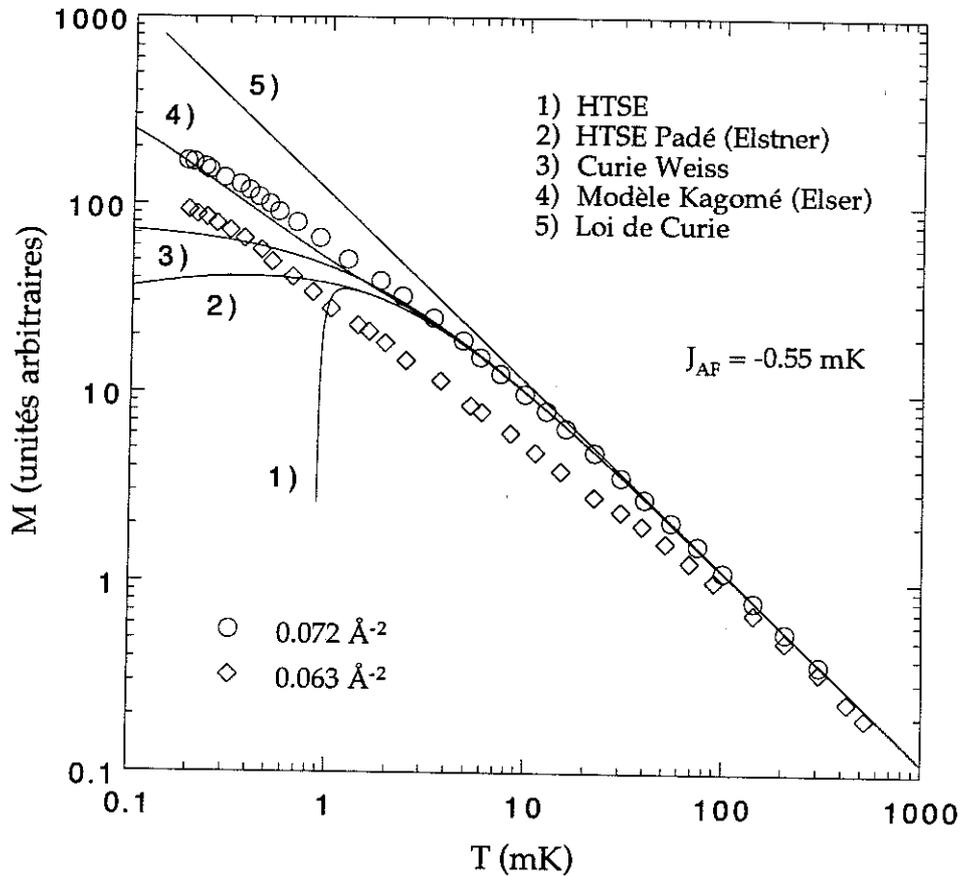


Figure 4.20: Aimantation en fonction de la température pour un film d' ^3He solide adsorbé sur une couche d' ^4He dans le régime antiferromagnétique. Pour $\rho = 0.063 \text{ \AA}^{-2}$, environ 48 % des atomes d' ^3He sont solides. Pour $\rho = 0.072 \text{ \AA}^{-2}$ le film d' ^3He est entièrement solide. Les traits pleins correspondent à différents modèles théoriques (voir texte).

La figure 4.20 montre l'aimantation pour deux taux de couverture en fonction de la température. Le taux de couverture 0.063 \AA^{-2} correspond à un film d' ^3He où environ 48 % des atomes sont en phase solide (coexistence liquide-solide). Pour une densité de 0.072 \AA^{-2} le film est entièrement solide. Cette densité correspond à la phase commensurable pure ($4/7^{\text{ème}}$) de la deuxième couche (0.188 \AA^{-2} en unités pour le système d' ^3He pur, voir section 2.4 dans ce chapitre). L'aimantation de saturation pour ce taux de couverture est de 1033 unités arbitraires.

Plusieurs courbes théoriques sont également représentées: 1) correspond au développement exact en série hautes températures (HTSE) du modèle antiferromagnétique d'Heisenberg à deux dimensions pour un réseau triangulaire [76, 77, 79] (HTAF). Cette série diverge pour des températures proches de $2 J_{AF}$; 2) correspond à une approximation de Padé de la série HTSE, valable jusqu'à des températures $T \simeq 0.4 J_{AF}$ [79]; 3) correspond à la loi de Curie Weiss ($\Theta = 3 J_{AF}$); 4) correspond au modèle d'Elser [52]. Pour cette courbe nous avons utilisé l'approximation de Padé pour le réseau Kagomé [78] pour la contribution antiferromagnétique. Pour toutes ces courbes la constante d'échange est $J_{AF} = -0.55 \text{ mK}$. 5) correspond à la loi de Curie (illustrée pour comparaison).

La figure 4.21 montre les mesures de chaleur spécifique très récentes de Fukuyama *et al.* [81] dans le même régime et qui vont également jusqu'à des températures d'environ 0.2 mK . Nous avons aussi représenté différentes courbes théoriques: le trait pointillé correspond au modèle d'Elser [52]; la courbe semi-pointillée correspond à la série HTSE (en utilisant l'approximation de Padé de Elstner *et al.* [79]); le trait solide correspond au calcul d'échange multiple de Roger [66] pour $r = -\frac{1}{4}$ (r est le paramètre de frustration).

Une remarque importante est le fait que nous n'observons aucune transition de phase jusqu'à des températures d'environ $200 \mu\text{K}$. Ceci contraste avec le système tridimensionnel pour lequel une transition de phase est observée à une température d'environ 1 mK . Les mesures de chaleur spécifique de Fukuyama *et al.* confirment cette observation [81]. Ceci suggère que ce système peut être considéré comme purement bidimensionnel.

Pour nos mesures de susceptibilité on observe que jusqu'à des températures de l'ordre de 2 mK les prédictions théoriques décrivent bien les données expérimentales. En dessous de cette température, l'aimantation dévie substantiellement des courbes théoriques.

Le modèle d'Elser [52] semble bien décrire la dépendance en température. Cependant l'écart entre cette théorie et les mesures expérimentales est de l'ordre de 20 %. Comme expliqué précédemment, ce modèle considère que 25 % des atomes de la deuxième couche sont des spins libres. Nous avons vu dans la section 1 de ce chapitre qu'à une température de $200 \mu\text{K}$ un solide paramagnétique possède une polarisation de l'ordre de 42 % conduisant à un décalage en fréquence considérable. Les mesures de Fukuyama *et al.* [81], illustrées sur la figure 4.21, ne montrent pas le pic à une température de 0.4 mK prédit par le modèle d'Elser. Il existe donc peu d'évidences expérimentales en faveur de ce modèle.

La déviation de la susceptibilité par rapport au modèle d'Heisenberg est déjà significative pour des températures de l'ordre du mK. Elle n'a pas été observée lors des mesures de RMN du groupe de Londres [82, 8], probablement à cause de l'importance de la contribution paramagnétique de la première couche. Leurs mesures ont été effectuées sur le système d' ^3He pur, pour lequel la contribution de la première couche domine celle de la deuxième couche. En outre, leurs mesures sont limitées à des températures supérieures à 0.6 mK. Leur conclusion était alors que la susceptibilité est correctement décrite par la série HTAF pour la deuxième couche.

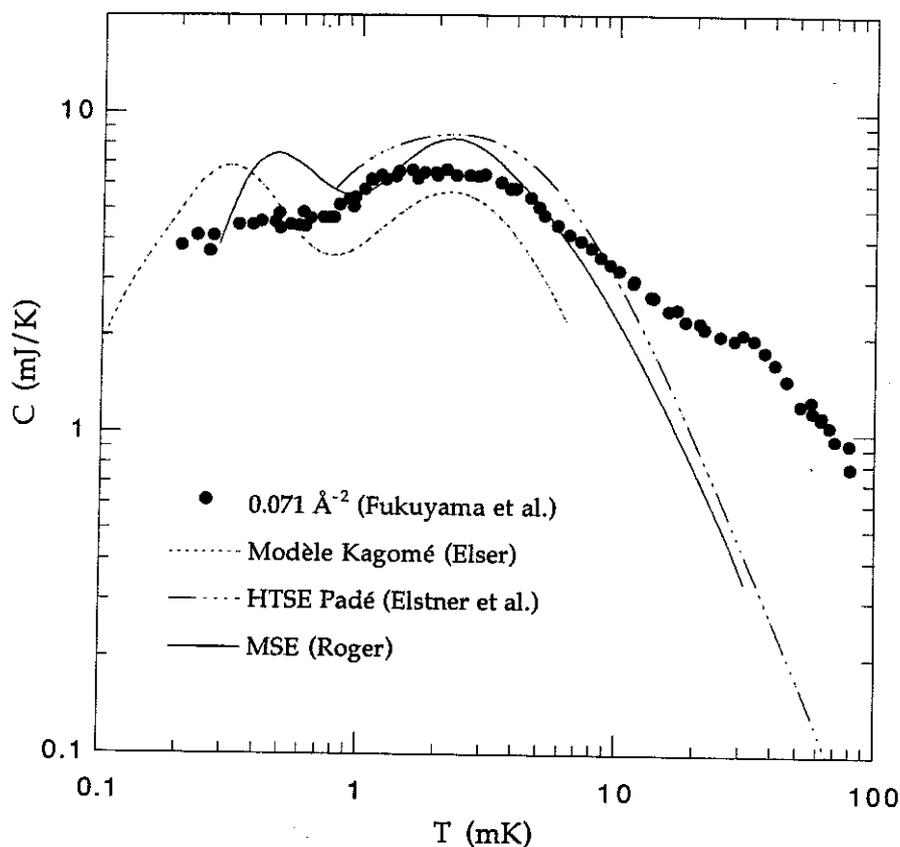


Figure 4.21: Chaleur spécifique en fonction de la température d'un film d' ^3He solide dans le régime antiferromagnétique mesurée par Fukuyama et al. [81]. Ces mesures ont été effectuées sur le système d' ^3He pur à une densité de 0.188 \AA^{-2} , ce qui correspond à une densité de la deuxième couche de 0.071 \AA^{-2} (exprimée dans notre échelle). Les traits correspondent à différents modèles théoriques (voir texte).

Les mesures de chaleur spécifique de ce même groupe de Londres [8] montrent également que celles-ci peuvent être très bien décrites par la série HTAF (en utilisant l'approximation de Padé de Elstner et al. [79]). Les constantes d'échange extraites de ces ajustements sont montrées dans la figure 4.18. La différence entre les constantes d'échange obtenues par les

mesures de chaleur spécifique et par les mesures de susceptibilité suggère que l'échange est du type multiple [62]. D'autre part, les calculs de Roger [66] montrent un maximum pour la chaleur spécifique dont la position et la hauteur coïncide avec les mesures. Cependant il faut noter que la hauteur du pic qui correspond au solide antiferromagnétique est de l'ordre de 30 % plus grande que celle observée par Greywall [5]. Les mesures de Fukuyama *et al.*, au contraire, confirment la hauteur du pic mesurée par Greywall. Il n'est donc pas clair actuellement que la chaleur spécifique puisse être décrite par la série HTAF, et il faut être prudent avec les interprétations des mesures du groupe de Londres.

D'autre part, les déviations de la susceptibilité par rapport à la loi de Curie Weiss peuvent être expliquées par le modèle d'échange multiple. Bernu *et al.* ont effectué des calculs de Monte Carlo quantique pour un amas de 16 spins [67] qui montrent que 10 % d'échange J_4 (échange cyclique entre 4 particules) est suffisant pour changer complètement le comportement de la chaleur spécifique et aussi celui de la susceptibilité par rapport au modèle d'Heisenberg. Pour une densité de 0.0785 \AA^{-2} (pour un film d' ^3He en sous-monocouche) on observe de forts écarts par rapport à un modèle d'Heisenberg à des températures de l'ordre de $T/J_{eff} \approx 10$, où $J_{eff} = 166 \mu\text{K}$ et $\Theta/3 = +159 \mu\text{K}$ (nous utilisons une notation qui donne un Θ négatif pour un échange antiferromagnétique). Ces constantes d'échange comprennent des échanges cycliques jusqu'à $n=6$. Elles sont en bon accord avec les mesures expérimentales [48, 5]. Pour la deuxième couche ($\rho = 0.189 \text{ \AA}^{-2}$, 0.181 \AA^{-2} en unités de Greywall), Bernu obtient des valeurs de $J_{eff} = 12 \pm 1 \text{ mK}$ et $\Theta/3 = -2 \pm 0.4 \text{ mK}$ [83]. On s'attend donc à ce que les déviations par rapport à la loi de Curie Weiss apparaissent à des températures relativement élevées (de l'ordre de plusieurs mK), en accord avec nos mesures.

Des calculs numériques sur la dépendance de la chaleur spécifique et de la susceptibilité en fonction de la température devraient donc donner des informations nouvelles concernant l'échange antiferromagnétique dans les films d' ^3He adsorbé sur du graphite.

Finalement, nous présentons nos données (voir figure 4.20) concernant le système AF pur sous différentes formes, afin de faciliter la comparaison avec d'éventuels calculs théoriques que ce travail pourrait motiver concernant par exemple le modèle d'Heisenberg 2D où celui d'échange multiple pour $T \leq J$.

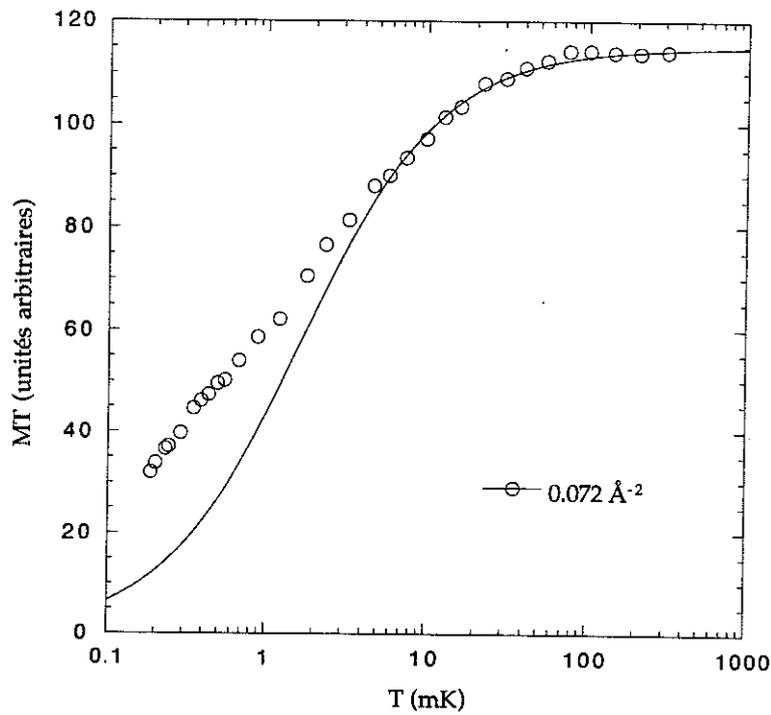


Figure 4.22: Produit de l'aimantation en fonction de la température. Le trait plein correspond à la loi de Curie Weiss avec $J_{AF} = -0.55$ mK. Une forte déviation du produit MT est observée pour des températures inférieures à 2 mK.

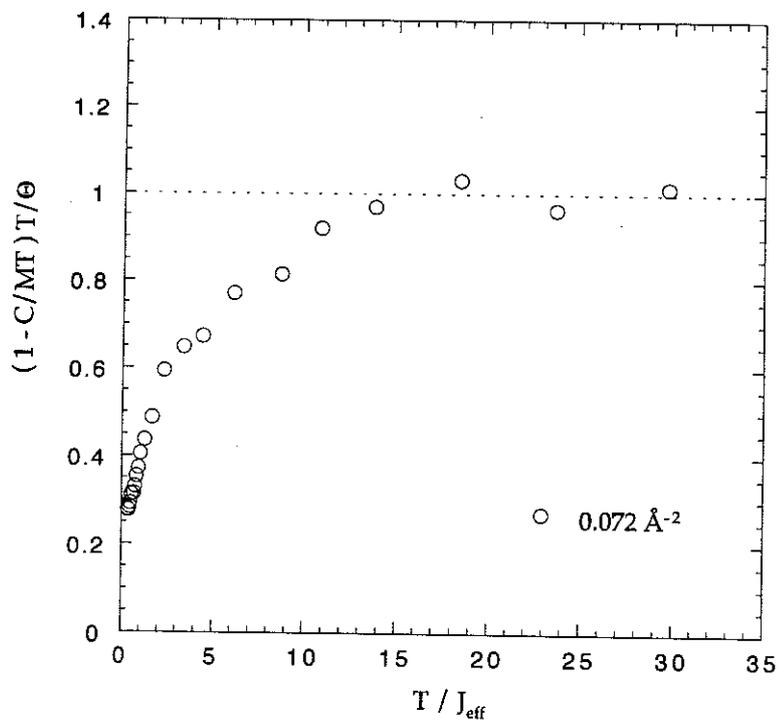


Figure 4.23: Déviation de l'aimantation par rapport à la loi de Curie Weiss en fonction de T/J_{eff} , avec $J_{eff} = -0.55$ mK.

4.2.6 L'évolution de l'antiferromagnétisme vers le ferromagnétisme: $0.193 \leq \rho \leq 0.240 \text{ \AA}^{-2}$

Nous avons vu dans les sections précédentes, que l'aimantation change brusquement à une densité de $\rho = 0.193 \text{ \AA}^{-2}$ associée à l'apparition du ferromagnétisme. En augmentant la densité, la contribution ferromagnétique croît graduellement. A une densité d'environ $\rho = 0.240 \text{ \AA}^{-2}$ une anomalie ferromagnétique est observée [3]. Cette région du diagramme de phases est discutée en détail dans les paragraphes suivants.

La coexistence solide-solide proposée par Greywall

D'après Greywall, cette région peut être interprétée comme une coexistence solide-solide de la phase commensurable R_{2b} et la phase incommensurable IC_2 [5]. La coexistence dans ce modèle correspond à une gamme de densités de 0.201 à 0.240 \AA^{-2} . La contribution ferromagnétique est attribuée à la phase IC_2 . Ceci est suggéré par le fait qu'à partir d'une densité $\rho = 0.240 \text{ \AA}^{-2}$ (où seule la phase IC_2 existe) la chaleur spécifique suit une dépendance à haute température en T^{-2} tandis que dans le régime de coexistence solide-solide la dépendance en température est plus compliquée.

Cette idée de coexistence a été reprise pour l'analyse des mesures à ultra basse température du groupe de Stanford [7]. Leur résultats montrent en effet que l'aimantation M_0 (obtenue par une extrapolation à $T = 0$) augmente linéairement avec la densité de la deuxième couche (en utilisant les densités de Greywall). Dans ce cas, M_0 correspond à la contribution des spins qui présentent un échange ferromagnétique. Ces auteurs montrent également qu'à haute température la dépendance de l'aimantation en fonction de la température est bien décrite par un modèle de ferromagnétisme d'Heisenberg à deux dimensions si on suppose que seulement une fraction des spins de la deuxième couche participe à l'échange ferromagnétique. Cette fraction est déterminée par le rapport entre M_0 et M_{sat} , où M_{sat} est l'aimantation de saturation correspondant à une polarisation complète de la deuxième couche. Cependant, il faut souligner que cette interprétation dépend fortement de la densité de la deuxième couche, qui change rapidement dans cette région.

Le modèle des gouttes liquides 2D

Une interprétation très différente peut être donnée à ces résultats [87]. En réanalysant les données existantes [5, 3, 86, 7] nous observons que le terme linéaire de la chaleur spécifique γ varie linéairement en fonction de la densité de la troisième couche ρ_3 . Ce fait suggère que le liquide en troisième couche n'est pas distribué uniformément, mais qu'il forme des îlots. Bien que pour une géométrie strictement bidimensionnelle une condensation (coexistence liquide-gaz) soit interdite [88], des calculs réalisés par Brami et al. [89] ont mis en évidence qu'une phase condensée est possible si l'on admet une certaine mobilité des atomes suivant

la troisième dimension (modèle à deux dimensions et demie). Pour le liquide en troisième couche où le potentiel est très faible cette condition est certainement satisfaite. Nous montrons ensuite que les propriétés magnétiques de la deuxième couche pourraient être induites par ce liquide: les constantes d'échange déduites des mesures de RMN [3, 86], la chaleur spécifique [5] et aussi l'aimantation M_0 de la deuxième couche [7] montrent une dépendance linéaire en fonction de ρ_3 qui est en accord avec l'hypothèse d'une condensation du liquide 2D de la troisième couche. [89, 90].

Cette linéarité est observée jusqu'à $\rho_3 = 0.04 \text{ \AA}^{-2}$. A cette densité, on observe l'anomalie ferromagnétique ainsi que la promotion des atomes en quatrième couche. Dans le cadre du modèle de coexistence de deux phases solides, ce fait est plutôt une coïncidence. Dans le cadre de cette nouvelle interprétation ceci est une conséquence naturelle: pour une densité d'environ $\rho_3 = 0.04 \text{ \AA}^{-2}$, les îlots se joignent et toute la deuxième couche est couverte par du liquide. On observe donc un échange maximal pour cette densité. Au delà, les atomes sont promus en quatrième couche.

Une conséquence directe de ce modèle est que la deuxième phase commensurable R_{2b} n'est pas nécessaire et le diagramme de phase est simplifié. Ceci est en accord avec nos résultats obtenus dans le régime antiferromagnétique, discutés dans la section (4.2.4).

Ce modèle tend à renforcer l'hypothèse de l'existence d'un échange indirect dominant.

Densité de la deuxième et troisième couche

L'interprétation des propriétés magnétiques dans cette région du diagramme de phase dépend donc fortement des valeurs de la densité de la deuxième couche. Malheureusement, nous ne disposons que de deux mesures de neutrons à haute densité ($\rho = 0.289$ et 0.321 \AA^{-2}) où le solide en deuxième couche est incommensurable [84]. Dans la suite de cette section nous présentons nos résultats pour la densité de la deuxième couche.

Pour le système d'³He pur, Greywall [5] a fourni une estimation des valeurs de la densité de la deuxième couche, obtenues par une méthode indirecte. Greywall a supposé que la température de fusion de la deuxième couche dépend de la densité de la même manière que celle de la première couche [5]:

$$\frac{dT_{m,2}}{d\rho_2} \approx \frac{dT_{m,1}}{d\rho_1} \quad (4.11)$$

où $T_{m,1}$ et $T_{m,2}$ sont respectivement les températures de fusion de la première et de la deuxième couche. Cependant, la validité de cette hypothèse n'est pas évidente car le diagramme de phases est différent pour la deuxième couche: une promotion du liquide en deuxième couche est observée quand la densité de la première couche a pratiquement atteint sa valeur maximale. La promotion des atomes en troisième couche, au contraire, est observée juste après la solidification de la deuxième couche.

Utilisant ensuite les données du groupe de Seattle pour $T_{m,1}$ [39] et $T_{m,2}$ [41] des phases incommensurables, Greywall obtient une expression pour la densité de la deuxième couche valable pour $\rho_2 \geq 0.068 \text{ \AA}^{-2}$:

$$\rho_2 = 0.068 + 0.014 \left(1 - e^{-51.9(\rho - 0.182)}\right) \quad (4.12)$$

Cependant, nous avons vu dans le chapitre 3 que les densités de Greywall doivent être corrigées. Il faut donc tenir compte de ce fait pour l'interprétation des mesures expérimentales.

En principe, une mesure de la densité de la deuxième couche peut être réalisée par une mesure de RMN, car le comportement de l'aimantation à basse température ($T \ll T_F^{**}$) est dominée par la contribution du solide. Un ajustement de la dépendance en température de l'aimantation donne ainsi les densités du solide et du liquide. Cependant, ceci n'est pas trivial pour la deuxième couche. La contribution ferromagnétique du solide est tellement forte que même à une température de l'ordre de $T \approx 50 \text{ mK}$ celle-ci domine encore la contribution du liquide.

La figure 4.24 montre les densités de la deuxième et de la troisième couche obtenues des mesures de Greywall [5], de nos mesures et des deux mesures de neutrons. Les densités de la troisième couche déterminées par la relation $\rho_3 = \rho_{tot} - \rho_2 - \rho_1$. Nous montrons également les densités obtenues par Lusher *et al.* pour le système ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}/\text{Gr}$.

Les densités de Greywall correspondent à celles publiées dans le tableau II de la référence [5]. A haute densité, ces valeurs sont inférieures de 3% par rapport aux valeurs de neutrons. Cependant, il faut noter que les densités de Greywall sont exprimés dans son échelle, où la densité maximale de la première couche est de 0.114 \AA^{-2} . La densité maximale de la première couche déterminée par les mesures de neutrons est de 0.1106 \AA^{-2} . Les densités de la deuxième couche données par Greywall sont obtenues par une procédure très discutable, et ne constituent qu'une "estimation raisonnable".

Lusher *et al.* ont mesuré la densité de la deuxième couche par RMN pour un système légèrement différent, où la première couche d' ${}^3\text{He}$ est remplacée par de l' ${}^4\text{He}$ (${}^3\text{He}/{}^4\text{He}/\text{Gr}$). Leurs résultats montrent une évolution en densité assez particulière, que ces auteurs attribuent au remplissage des différentes couches. On observe que la densité de la deuxième couche pour $\rho_{tot} > 0.3 \text{ \AA}^{-2}$ augmente, contrairement aux densités de Greywall. Il faut également noter que selon les mesures de Lusher l'anomalie ferromagnétique est observée à une densité totale de $\rho_{tot} = 0.220 \text{ \AA}^{-2}$, une valeur considérablement au-dessous de la valeur observé pour le système d' ${}^3\text{He}$ pur [3, 86, 5] ($\rho_{tot} = 0.240 \text{ \AA}^{-2}$). Ceci est en désaccord avec les mesures de neutrons [45] et nos mesures de RMN pour le système ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}/\text{Gr}$ où les densités sont environ 5% plus élevées par rapport au système d' ${}^3\text{He}$ pur (voir chapitre 6).

Nos données sont exprimées dans l'échelle des neutrons qui fournit la vraie densité (voir chapitre 3 et 6). A haute densité $\rho_{tot} > 0.25 \text{ \AA}^{-2}$, nos résultats pour ρ_2 sont en excellent accord

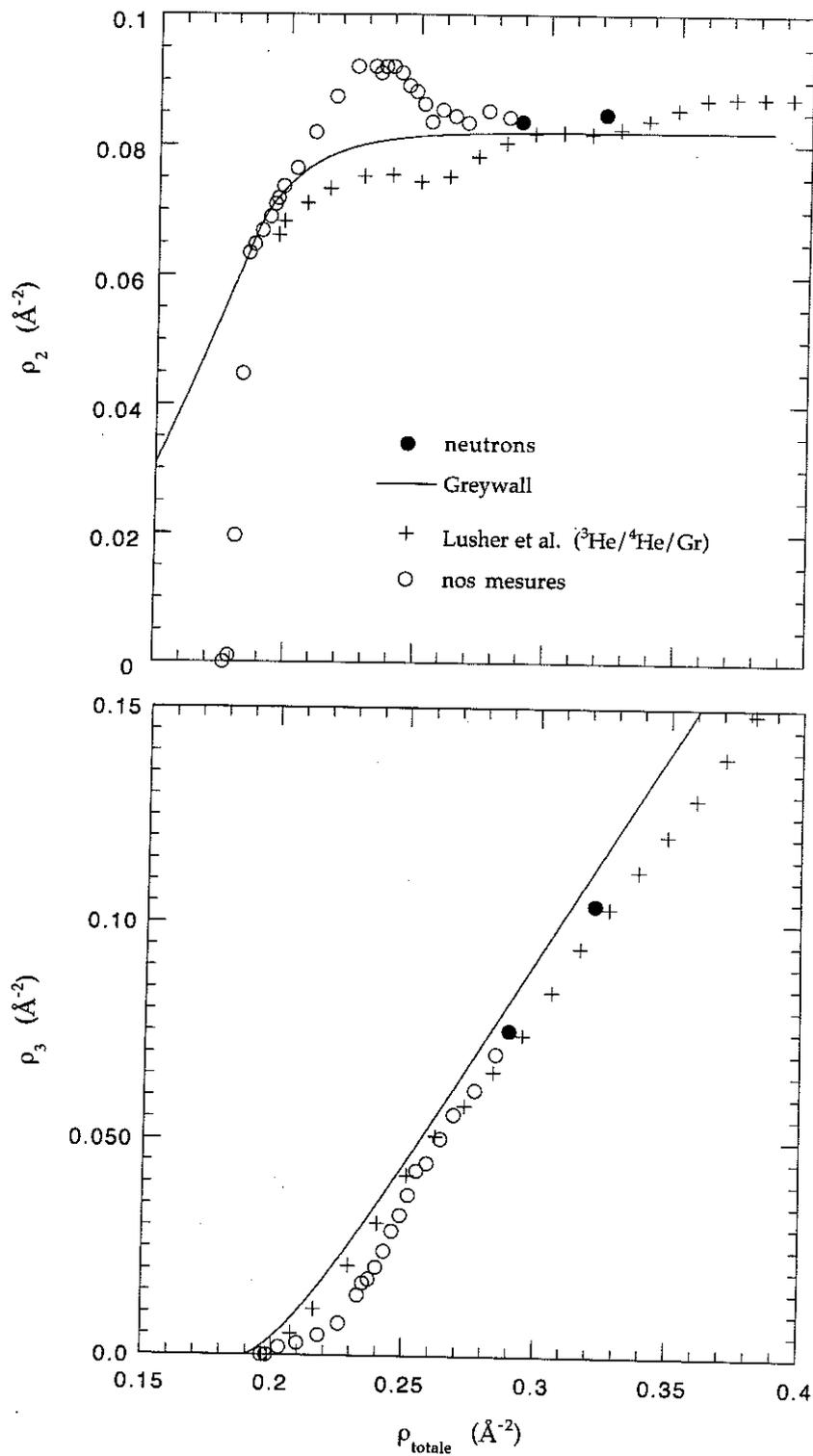


Figure 4.24: Densité de la deuxième et de la troisième couche en fonction de la densité totale du film d'³He. (\diamond): Greywall, tableau II de réf. [5]; (+): ³He/⁴He/Gr, Lusher et al. [56]; (●): mesures de neutrons [84]; (○): nos données.

avec les valeurs de neutrons. Pour ces densités, les valeurs de ρ_2 obtenues à partir de nos mesures de RMN est fiable, car la contribution du solide ferromagnétique a considérablement diminué. Le liquide peut être clairement identifié.

A plus basse densité ($\rho_{tot} \leq 0.190 \text{ \AA}^{-2}$) la densité de la deuxième couche est directement donnée par $\rho_2 = \rho_{tot} - \rho_1$ car il n'y a pas de liquide en troisième couche. L'apparition du liquide est observée pour une densité de $\rho_{tot} \approx 0.196 \text{ \AA}^{-2}$, légèrement plus élevée que celle observée par Greywall ($\rho_{tot} = 0.190 \text{ \AA}^{-2}$, exprimée dans notre échelle), et très proche de celle obtenue par des mesures de chaleur spécifique de Siqueira *et al*, qui observent une promotion en troisième couche à une densité $\rho_{tot} \approx 0.194 \text{ \AA}^{-2}$ [85].

Dans le régime où le ferromagnétisme contribue fortement à haute température ($0.210 \leq \rho \leq 0.250 \text{ \AA}^{-2}$), une séparation entre le liquide et le solide est difficilement identifiable.

L'analyse des données a été effectuée en utilisant pour la dépendance en température de la deuxième couche la série HTSE pour le modèle d'Heisenberg ferromagnétique $(2D)^2$. La contribution du liquide en troisième couche est en principe très faible par rapport à celle du solide ferromagnétique, si l'on suppose que la température de Fermi de ce liquide est supérieure à 100 mK, comme on l'observe d'ailleurs en première et en deuxième couche pour des densités comparables. Les densités de la deuxième (et troisième couche) déduites des ajustements sont montrés sur la figure 4.24.

On observe un comportement assez surprenant. La densité de la deuxième couche augmente jusqu'à la densité totale correspondant à l'anomalie ferromagnétique et diminue ensuite. On pourrait imaginer que la densité de la deuxième couche augmente jusqu'à une densité maximale et qu'ensuite on observe une reconstruction de la surface, un effet bien connu en physique des surfaces. Cependant, la densité de la deuxième couche atteint pratiquement celle de la première couche! Cette hypothèse est donc peu probable.

Il semble plus raisonnable de considérer que l'évolution de la densité de la deuxième couche en fonction du taux de couverture est monotone, et qualitativement similaire à celle proposée par Greywall. Ceci nous conduit à attribuer l'excès d'aimantation que nous observons par rapport au modèle "Heisenberg ferromagnétique + liquide de Fermi" soit à une déviation à haute températures de l'aimantation du solide par rapport au modèle d'Heisenberg, soit à une forte polarisation du liquide en troisième couche.

Afin de résoudre ce problème, des mesures de haute précision doivent être effectuées. L'utilisation de notre spectromètre à froid, capable de mesurer des signaux jusqu'à une température d'environ 1 K, devrait nous permettre de distinguer de manière fiable les quantités de liquide et de solide. Ces mesures sont actuellement en cours.

²A haute densité ($\rho_{tot} > 0.240 \text{ \AA}^{-2}$) le solide est très bien décrit par le modèle d'Heisenberg ferromagnétique (2D).

Une autre possibilité est de mesurer le liquide en troisième couche en remplaçant les deux premières couches par de l' ^4He . Dans ce cas, le signal de RMN est entièrement dû au liquide.

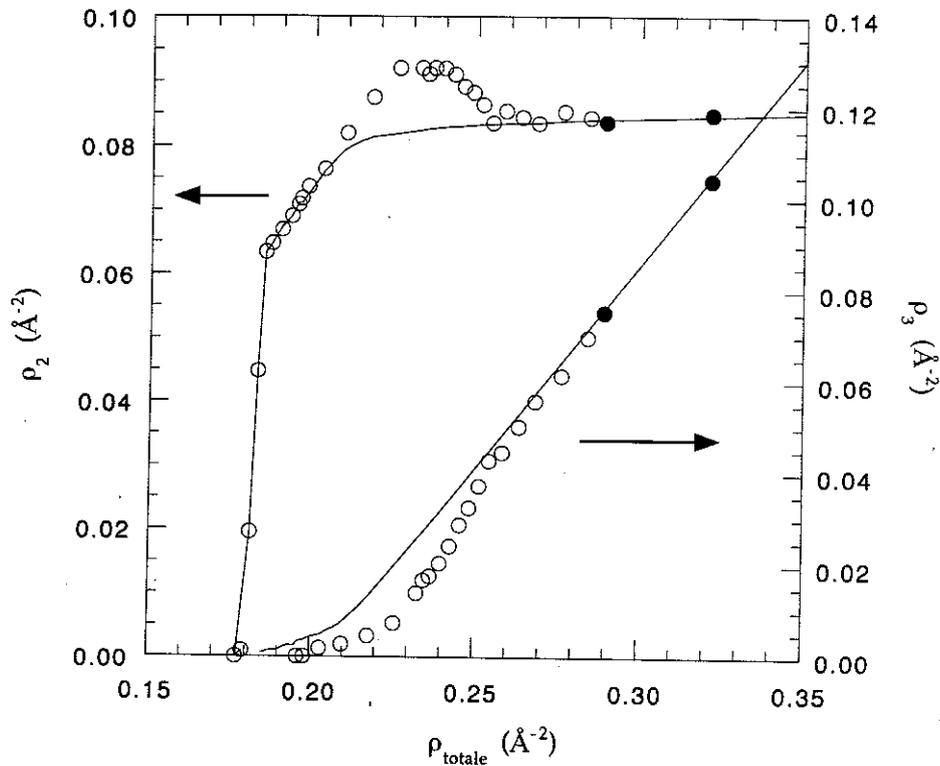


Figure 4.25: Densité corrigée de la deuxième et de la troisième couches en fonction de la densité totale du film d' ^3He . (●): densité de la deuxième couche; (○): densité de la troisième couche.

Pour l'analyse des données présentées par la suite nous utilisons les densités de la deuxième et de la troisième couche présentées dans la figure 4.25. A haute et à basse densité, ces valeurs correspondent à nos mesures de RMN. Pour la gamme de densités intermédiaires ($0.200 \leq \rho \leq 0.250 \text{\AA}^{-2}$) nous avons effectué un "ajustement souple" (cubic spline fit). Celui-ci présente par rapport à l'expression fournie par Greywall l'avantage d'être cohérent avec les résultats de diffraction neutronique.

On observe une augmentation très douce de la quantité de liquide en troisième couche à des faibles densités, alors qu'à des densités plus élevées celle-ci augmente pratiquement linéairement avec la densité du film car la compression de la deuxième couche est faible.

Nous montrons sur la figure 4.26 et 4.27 l'évolution de l'aimantation du film d' ^3He en fonction de la densité totale dans le régime où l'aimantation passe d'un comportement antiferromagnétique à un comportement ferromagnétique ($\text{AF} \rightarrow \text{FM}$). La figure 4.26 montre plusieurs isothermes d'aimantation multipliée par la température MT en fonction de la densité totale tandis que la figure 4.27 illustre la variation de MT en fonction de la température pour plusieurs densités.

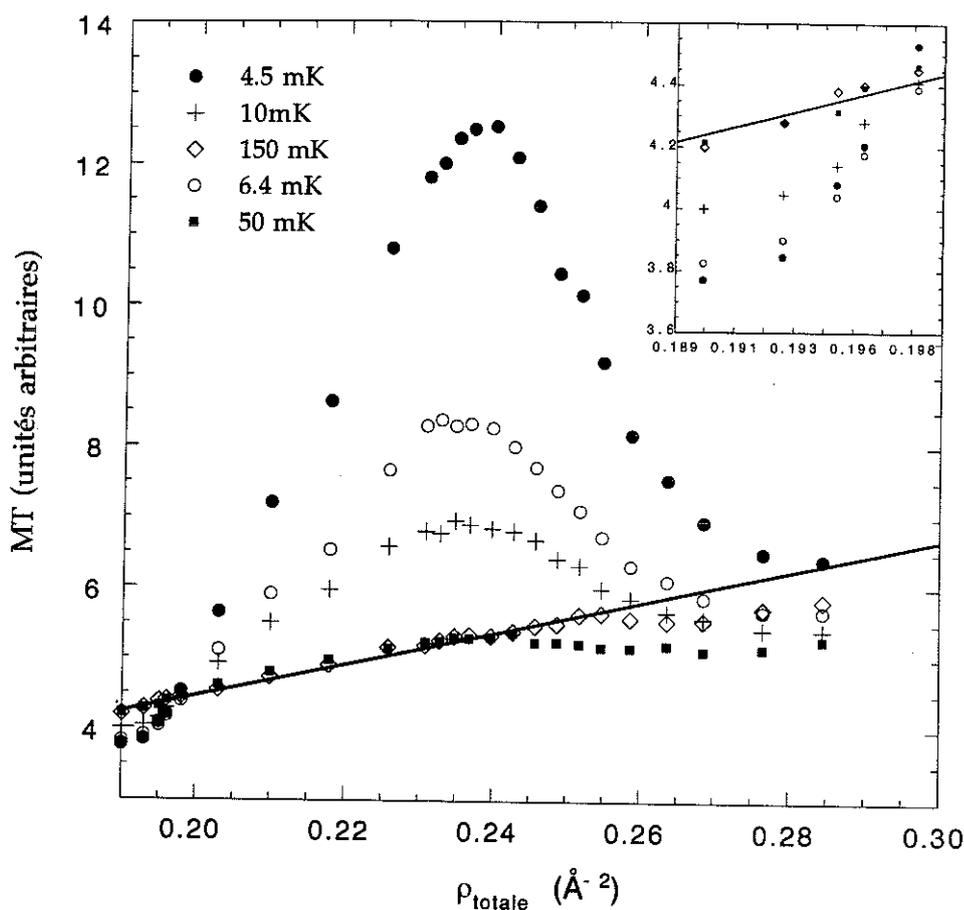


Figure 4.26: Aimantation multipliée par la température en fonction de la densité totale pour différentes températures. Le trait plein correspond à la valeur attendue pour les spins libres.

On observe une augmentation très nette de l'aimantation à une densité de 0.193\AA^{-2} qui est attribuée à l'apparition du ferromagnétisme. Dans la suite nous allons montrer que cette augmentation n'est décrite ni par un modèle de coexistence entre deux phases solides, ni par le modèle des îlots, décrits précédemment.

Pour la gamme de densités $0.193 \leq \rho \leq 0.198 \text{\AA}^{-2}$ l'aimantation suit encore un comportement antiferromagnétique: dans la gamme de température explorée ici l'aimantation est inférieure à la valeur des spins libres. La dépendance de l'aimantation en fonction de la

température peut être décrite par la loi de Curie Weiss, où tous les spins de la deuxième couche participent à l'échange antiferromagnétique. Les constantes d'échange obtenues par ces ajustements sont représentées sur la figure 4.28.

Nous observons un comportement magnétique assez particulier pour le taux de couverture de 0.198 \AA^{-2} : à haute température ($T > 10 \text{ mK}$) le produit MT diminue très légèrement en abaissant la température, indiquant un faible échange antiferromagnétique. A des températures inférieures à 10 mK , le produit MT augmente, ce qui caractérise un échange ferromagnétique. Pour ce taux de couverture on observe donc à la fois une contribution ferromagnétique et antiferromagnétique à l'aimantation.

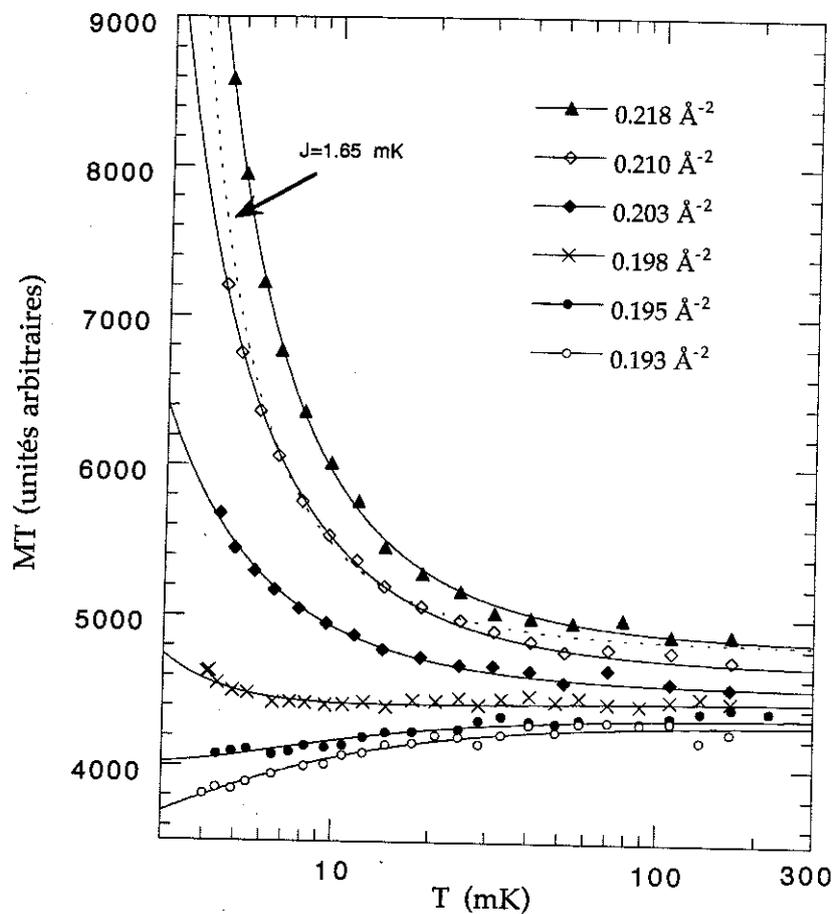


Figure 4.27: Produit de l'aimantation et de la température en fonction de la densité totale pour différentes températures.

Examinons les résultats pour les deux couvertures 0.195 et 0.198 \AA^{-2} du point de vue d'une coexistence entre une phase solide antiferromagnétique et une phase solide ferromagnétique. La dépendance en température de l'aimantation peut être décrite par une contribution antiferromagnétique et ferromagnétique. En effet, comme on l'a mentionné précédemment, le groupe de Stanford observe une petite contribution ferromagnétique à

un taux de couverture de 0.193 \AA^{-2} . A cette même densité le groupe de Londres observe l'apparition d'un décalage en fréquence de la raie de RMN, ce qui indique également une contribution ferromagnétique. Cette gamme de densité ($0.193 \leq \rho \leq 0.198 \text{ \AA}^{-2}$) semble donc être caractérisé par une contribution antiferromagnétique dominante à haute température, et une contribution ferromagnétique qui domine le comportement de l'aimantation à basse température. Les ajustements tracés dans la figure 4.27 (pour ces deux taux de couverture) sont basés sur cette hypothèse. Dans ce cas une constante de Curie Weiss $\Theta = -1.8 \text{ mK}$ (obtenue pour le régime de l'antiferromagnétisme pur) a été utilisée. La quantité des atomes qui présentent un échange ferromagnétique, déduite de l'ajustement, augmente très rapidement. Pour les densités 0.195 et 0.198 \AA^{-2} on obtient respectivement qu'un pourcentage de 20 et 55 % des atomes en deuxième couche suit un comportement ferromagnétique. Ceci n'est pas cohérent avec l'hypothèse d'une coexistence solide-solide proposée par Greywall, car la quantité du solide ferromagnétique croît trop rapidement.

A partir d'une densité de 0.203 \AA^{-2} , on observe une très forte augmentation de l'aimantation à très basse température. Dans ce cas l'aimantation est très bien décrite par la série HTSE pour le modèle d'Heisenberg avec un échange ferromagnétique (2D), où tous les spins de la deuxième couche participent à l'échange ferromagnétique. Cela est démontré par les ajustements (trait pleins) tracés dans la figure 4.27.

Cependant les mesures de Schiffer *et al.* [7] montrent que l'aimantation de saturation (extrapolation à $T=0$ de l'aimantation mesurée) augmente linéairement avec la densité de la deuxième couche. Ceci a été interprété comme une preuve de la coexistence entre un solide antiferromagnétique et un solide ferromagnétique pour la gamme des densités de $0.200 \leq \rho \leq 0.260 \text{ \AA}^{-2}$. Pour le taux de couverture de 0.218 \AA^{-2} , 45 % des atomes de la deuxième couche devraient montrer un comportement ferromagnétique d'après Schiffer *et al.* avec $J=1.65 \text{ mK}$. Cet ajustement est montré par le trait pointillé sur la figure 4.27. L'ajustement passe largement au-dessous des nos données expérimentales. Clairement, on ne peut pas décrire la dépendance en température de l'aimantation dans une grande gamme de températures avec une description d'Heisenberg de la contribution ferromagnétique.

Il faut noter que la précision des mesures du groupe de Stanford est assez limitée à haute température. A une température de l'ordre de 10 mK leur rapport signal sur bruit est de l'ordre de 1. La raie du solide est caractérisée par des ailes très larges, et pour un rapport signal sur bruit aussi faible, il est très difficile de vérifier que l'on ne perd pas de signal. Il est donc très probable que l'aimantation mesurée par Schiffer *et al.* à des températures supérieures à 3 mK doit être substantiellement corrigée (de l'ordre de 5 à 10%).

Afin de vérifier ce fait, nous avons superposé nos données avec celles du groupe de Stanford. Pour des hautes densités ($\rho \geq 0.228 \text{ \AA}^{-2}$) nos données se superposent très bien avec ces dernières. Nous obtenons les mêmes valeurs de J pour les deux séries de mesures (voir figure 4.28). A plus basse densité, au contraire, nous observons que leurs valeurs d'aimantation sont substantiellement au-dessous de nos données pour une température supérieure à

5 mK. A basse température l'ajustement effectué pour nos données se superpose très bien avec les données de Schiffer *et al.*. Les constantes de J obtenues par ces ajustements, notées " J Stanford corrigé", sont illustrées sur la figure 4.28. Nous montrons également les valeurs de J du groupe de Londres.

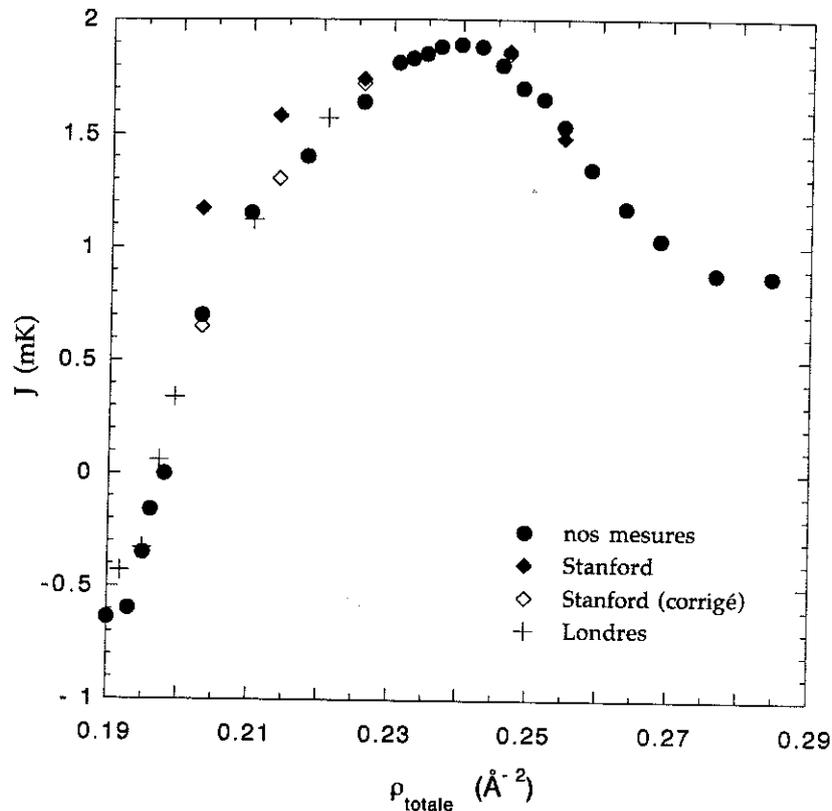


Figure 4.28: Constante d'échange en fonction de la densité totale. (●): nos données; (◇): données de Schiffer *et al.* [7]; (◇): données de Schiffer *et al.* corrigées (voir texte); (+): données de Siqueira *et al.* [95].

La constante d'échange commence à augmenter assez rapidement à partir d'une densité de 0.193 \AA^{-2} qui correspond à l'apparition du ferromagnétisme. On observe une évolution continue de la constante d'échange en fonction de la densité totale. Elle atteint un maximum à une densité d'environ 0.240 \AA^{-2} . L'aimantation montre également un maximum à cette densité. Les valeurs des constantes d'échange du groupe de Stanford pour les densités de 0.203 et 0.214 \AA^{-2} sont trop élevées du fait du problème des mesures à haute température expliqué précédemment. Nos mesures de haute précision dans ce régime montrent donc qu'une simple coexistence entre un solide antiferromagnétique et un solide ferromagnétique ne décrit pas les résultats expérimentaux.

Revenons sur l'idée que l'évolution de l'aimantation dans le régime de transition (AF \rightarrow FM) puisse être décrite par le modèle où le ferromagnétisme est induit par le liquide condensé en troisième couche [87].

Dans ce cas, le solide antiferromagnétique en deuxième couche devient ferromagnétique dès qu'il est couvert d'un îlot de liquide, ce qui conduit à une variation linéaire des propriétés magnétiques de la deuxième couche en fonction de la quantité de liquide en troisième couche.

La figure 4.29 montre une isotherme d'aimantation et la constante d'échange effective J en fonction de la densité du liquide en troisième couche. Dans le cadre de ce modèle, J est une constante d'échange effective: $J = x_F J_F + x_{AF} J_{AF}$, combinaison des fractions ferro et antiferromagnétiques x_F et x_{AF} de la deuxième couche. On observe de fortes déviations par rapport à la linéarité, surtout dans le cas de la constante d'échange, qui ne peuvent pas s'expliquer par l'imprécision des données ou la détermination de la densité de la troisième couche. L'effet est particulièrement marqué à basse densité, où l'on observe une variation très rapide des propriétés magnétiques dans une faible gamme de densité de la troisième couche. Cette région particulièrement intéressante n'avait pas été explorée précédemment. Grâce à la précision des mesures ainsi qu'à la fine grille en couvertures nous sommes en mesure d'écarter ce modèle.

Nous considérons donc maintenant l'hypothèse d'une évolution continue et uniforme des propriétés magnétique de la deuxième couche en fonction du taux de couverture. Avant l'apparition du liquide en troisième couche, le magnétisme du solide en deuxième couche trouve une explication naturelle dans la théorie de l'échange multiple. Dans le cadre de ce modèle la nature de l'échange dépend fortement de la densité de ce solide. Pour les différents échanges cycliques on observe également une forte compétition entre des échanges antiferromagnétiques et ferromagnétiques qui dépendent fortement de la densité. Pour une faible densité de la deuxième couche l'échange est antiferromagnétique [66, 67] tandis que à une densité élevée un échange ferromagnétique est observé [64, 66]. Pour ce régime de transition où le solide en deuxième couche sort de la phase commensurable antiferromagnétique un basculement très rapide d'un comportement antiferromagnétique vers un comportement ferromagnétique est certainement attendu. Des calculs dans le cadre de ce modèle devraient être capables d'expliquer ce basculement rapide.

Cependant, il faut noter qu'au moment où ce changement (AF \rightarrow FM) est observé, nous observons l'apparition du liquide en troisième couche. Il semble donc que le liquide puisse jouer un rôle important dans l'échange magnétique. Si l'effet du liquide est simplement de permettre un échange indirect décrit par l'hamiltonien d'Heisenberg entre les atomes du solide *via* le liquide, alors ce processus peut être incorporé dans le modèle d'échange multiple par l'augmentation du coefficient J_3 de l'échange à trois spins [62, 3].

Par conséquent, on peut considérer deux situations extrêmes: soit le liquide joue un rôle important dans le processus d'échange, qui devrait être alors contrôlé par la masse effective du liquide et la densité de la troisième couche, soit l'échange est entièrement confiné dans la deuxième couche, et c'est la densité de la deuxième couche qui est le paramètre important.

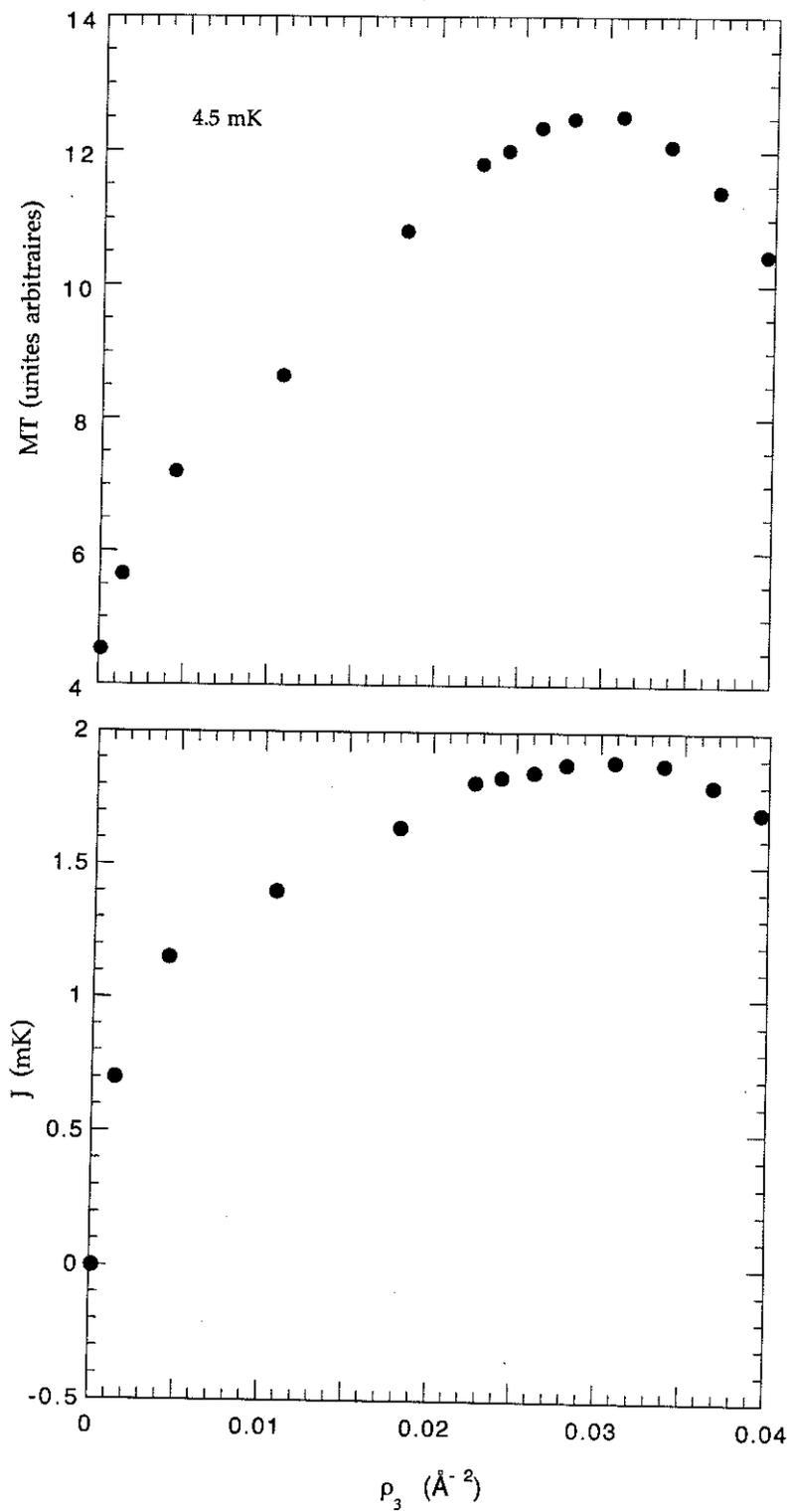


Figure 4.29: Aimantation et constante d'échange en fonction de la densité du liquide en troisième couche.

La réponse devrait être apportée par le calcul théorique des fréquences d'échange multiple. La théorie doit pouvoir expliquer les valeurs de J représentées sur la figure 4.28, et en particulier la variation rapide de J en fonction de la densité.

En conclusion, le magnétisme des films d' ^3He adsorbé bascule très rapidement d'un comportement antiferromagnétique vers un comportement ferromagnétique. Nos mesures infirment l'hypothèse d'une coexistence entre une phase solide antiferromagnétique et une phase solide ferromagnétique, ainsi que le modèle où le ferromagnétisme est dû à un liquide condensé en troisième couche.

Des calculs des fréquences d'échange en fonction de la densité devraient être effectués dans le cadre du modèle d'échange multiple afin de déterminer si l'évolution des propriétés magnétiques des films d' ^3He peut être expliquée par un échange dans la deuxième couche, ou si le liquide a une influence importante sur le magnétisme de la deuxième couche.

4.2.7 Au-delà de la deuxième couche

A partir d'une densité d'environ 0.240 \AA^{-2} l'échange ferromagnétique diminue de manière monotone en fonction de la densité totale. L'aimantation diminue également d'une manière monotone (voir les figures 4.26 et 4.28). Dans ce régime la contribution du liquide peut être clairement distinguée de celle de la deuxième couche par des mesures de RMN.

A plus forte densité, on observe des paliers pour la chaleur spécifique et aussi pour l'aimantation et la constante d'échange en fonction de la densité. Ces paliers sont attribués au remplissage successif des couches liquides consécutives. Les multicouches ne sont pas l'objet de ce travail, et pour cet aspect des films d' ^3He adsorbé nous renvoyons à l'article de Godfrin et Rapp [10].

Chapitre 5

Solide ferromagnétique: Dépendance en fonction du champ magnétique

Nous avons vu dans le chapitre précédent que des films d' ^3He solide adsorbé sur du graphite représentent des systèmes de modèle expérimentaux pour le magnétisme nucléaire à deux dimensions (2D). Les mesures que nous présentons dans cette section ont été réalisées pour une densité $\rho = 0.236 \text{ \AA}^{-2}$, où l'anomalie ferromagnétique est observée. A cette densité, le film se compose d'environ $2\frac{1}{2}$ couches atomiques. La première couche, très dense, a un comportement paramagnétique et joue le rôle de substrat. La deuxième couche est un solide de faible densité avec une structure de réseau triangulaire. L'échange quantique donne lieu à un comportement ferromagnétique très fort et les propriétés magnétiques aux très basses températures sont donc dominées par celui-ci. L'aimantation de la troisième couche partiellement remplie est négligeable aux basses températures, car il s'agit d'un liquide de Fermi dégénéré.

A cette densité, les propriétés magnétiques peuvent être décrites par le modèle de ferromagnétisme d'Heisenberg à deux dimensions [31] et ce système constitue donc un système modèle pour le magnétisme nucléaire à deux dimensions. La polarisation de la deuxième couche peut atteindre facilement des valeurs de l'ordre de 70 %, même dans des champs magnétiques très faibles (quelques milliteslas). Cet effet remarquable est attribué à des interactions d'échange ferromagnétique très fortes.

Différents modèles théoriques décrivent la dépendance en température de l'aimantation pour $T < J$ et prédisent la dépendance de l'aimantation en fonction du champ magnétique et en fonction de la taille du système. Cela nous a conduit à étudier l'influence du champ magnétique et de la taille du système, jamais explorée expérimentalement. Pour cela, nous avons mesuré l'aimantation en fonction du champ magnétique en utilisant du Papyex comme substrat de graphite exfolié.

5.1 Modèle d'Heisenberg et théorie des ondes de spin

A une densité de $\rho = 0.236 \text{ \AA}^{-2}$, l'aimantation peut être décrite par un modèle de ferromagnétisme d'Heisenberg à deux dimensions pour un réseau triangulaire. L'hamiltonien est défini par l'expression suivante:

$$H = -2Jk_B \sum_{i>j} S_i \cdot S_j \quad (5.1)$$

où J est la constante d'échange et S_i est la matrice de spin nucléaire de l'atome d' ^3He . La somme sur le réseau triangulaire ne s'effectue qu'entre les sites $\langle i, j \rangle$ voisins.

A haute température ($T > J$) l'aimantation est représentée par le développement exact en série hautes températures (HTSE) [76, 77]:

$$M = \frac{\mu B M_0}{k_B T} \left[1 + \sum_{n \geq 1} a_n \left(\frac{J}{T} \right)^n \right] \quad (5.2)$$

où B est le champ magnétique, μ le moment magnétique de l'atome d' ^3He , a_n les coefficients numériques¹ et M_0 l'aimantation de saturation à $T = 0$ (où tous les spins sont alignés).

A basse température ($T < J$), le comportement de l'aimantation pour un système bidimensionnel de taille finie peut être décrit par des calculs d'ondes de spin [31]. L'aimantation à saturation M_0 est réduite par la création d'ondes de spin thermiques. Elle est donnée par l'expression:

$$M = M_0 \left[1 - \frac{T_0}{2\pi J \sqrt{3}} \left[1 - \left(\frac{T}{T_0} \right) \ln \left(\exp \left(\frac{T_0}{T} \right) - 1 \right) \right] \right] \quad (5.3)$$

où T_0 correspond à la fréquence de coupure, associée à l'onde de spin de plus grande longueur d'onde qui puisse être créée dans un système d'une taille finie. En utilisant la relation de dispersion des ondes de spin ferromagnétiques pour un réseau triangulaire,

$$\hbar\omega = \frac{3}{2} J a^2 k^2 \quad (5.4)$$

on obtient $T_0 = 8\pi^2 J (a/\xi)^2$, où $a = 3.8 \text{ \AA}$ est la distance entre les atomes d' ^3He et ξ est la taille des régions montrant un ordre ferromagnétique, de l'ordre de la taille des plaquettes de graphite (environ 100 \AA pour Grafoil et 200 à 300 \AA pour Papyex).

La rotation uniforme de l'aimantation des spins situés sur une plaquette microscopique du graphite dans un champ magnétique externe (mode $k = 0$) donne lieu à une réduction supplémentaire de l'aimantation, dépendant également de la taille du système [92]. En ajou-

¹les coefficients numériques sont connus jusqu'à $n = 13$ (voir annexe B).

tant ce terme, l'aimantation à basse température devient:

$$M = M_0 \left[1 - \frac{\Delta}{2\pi J\sqrt{3}} \left[1 - \left(\frac{T}{\Delta}\right) \ln \left(\exp\left(\frac{\Delta}{T}\right) - 1 \right) \right] - \frac{2}{N \cdot [\exp(T_B/T) - 1]} \right] \quad (5.5)$$

où N correspond au nombre des spins ferromagnétiques par plaquette de graphite et $\Delta = T_B + 8\pi^2 J/N$ avec $T_B = 2B\mu/k_B$. Les interactions entre ondes de spin ayant été négligées, le dernier terme dans l'équation (4.6) diverge à la limite $B \rightarrow 0$. Le gap Δ dans le spectre des ondes de spin dépend donc du champ magnétique et de la taille du système.

La figure 5.1 montre l'évolution du gap Δ du spectre des ondes de spin en fonction du champ magnétique pour deux substrats de graphite exfolié ayant des longueurs de corrélation différentes.

Les mesures réalisées auparavant ont été effectuées à bas champ, comme l'indiquent les flèches en pointillés sur la figure 5.1 [31, 7, 93]. Le gap était essentiellement dominé par la taille des plaquettes du substrat. Dans ce régime, les modèles théoriques représentaient une description satisfaisante des données expérimentales. Grâce aux mesures présentées dans cette section, nous pouvons explorer l'influence du champ magnétique sur le gap.

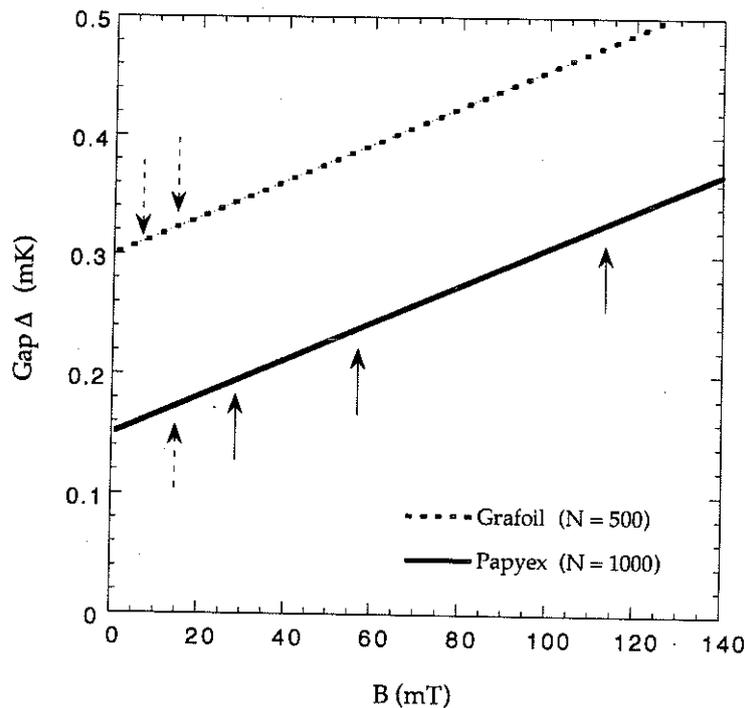


Figure 5.1: Gap du spectre des ondes de spin en fonction du champ magnétique pour deux substrats ayant des longueurs de corrélation différentes. Les flèches en pointillés indiquent le champ magnétique utilisé pour les expériences antérieures [31, 7, 93]. Les flèches en trait continu indiquent le champ magnétique utilisé pour nos expériences.

5.2 Mesures expérimentales

Le dispositif expérimental utilisé pour ces expériences est décrit dans la section (2.1.3). La cellule expérimentale (C_4) contient 0.560 g de graphite exfolié (Papyex). La surface du substrat est de 11.9 m^2 , déterminée par la méthode détaillée dans le chapitre 3. L'aimantation nucléaire a été mesurée pour différents champs magnétiques (28 mT, 56 mT et 113 mT) qui sont substantiellement plus grands que ceux utilisés dans les expériences précédentes [31, 7, 93].

Les figures 5.2 et 5.3 montrent nos données brutes mesurées pour ces trois valeurs du champ magnétique. La figure 5.12 montre l'aimantation en fonction de la température. A hautes températures ($T \gg J$), l'aimantation est proportionnelle au champ magnétique et suit une loi de Curie.

Si l'on approche des températures de l'ordre de J , l'aimantation commence à croître rapidement. Sa dépendance en fonction de la température peut être très bien décrite par un modèle d'Heisenberg ferromagnétique à 2D comme indiqué par l'ajustement montré dans la figure 5.3.

Pour des températures inférieures à J , l'aimantation varie plus lentement car la polarisation des atomes d' ^3He est voisine de la saturation. Cette polarisation s'effectue à plus hautes températures pour des mesures à champ plus fort. La susceptibilité en fonction de la température est représentée sur la figure 5.3. Pour les différents champs magnétiques toutes les courbes se superposent très bien à haute température. Aucun effet du champ n'est donc observé sur la susceptibilité dans le régime de faible polarisation.

Le comportement de l'aimantation de la deuxième couche à basses températures pour nos mesures est illustré par la figure 5.4, où nous représentons également les mesures du groupe de Stanford. Il faut noter que ces dernières ont été effectuées à un champ magnétique beaucoup plus faible (14.3 mT) et en utilisant du Grafoil comme substrat. La contribution de la première couche d'une densité de $\rho_1 = 0.119 \text{ \AA}^{-2}$ a été soustraite afin d'obtenir l'aimantation de la deuxième couche².

Dans la figure 5.4, nous représentons l'aimantation mesurée, divisée par l'aimantation de saturation $M_{sat} = N_2\mu$, pour laquelle nous avons supposé une densité de la deuxième couche de $\rho_2 = 0.090 \text{ \AA}^{-2}$. On constate que pour la deuxième couche l'aimantation M_0 obtenue par l'extrapolation de l'aimantation vers $T = 0$ ne donne pas une polarisation complète du film d' ^3He . Ceci a été également observé pour les expériences précédentes. Une explication de ce phénomène est que les spins qui se trouvent au bord d'une plaquette de graphite ne participent pas entièrement à l'échange ferromagnétique.

²la soustraction a été effectuée de la même manière pour les données du groupe de Stanford

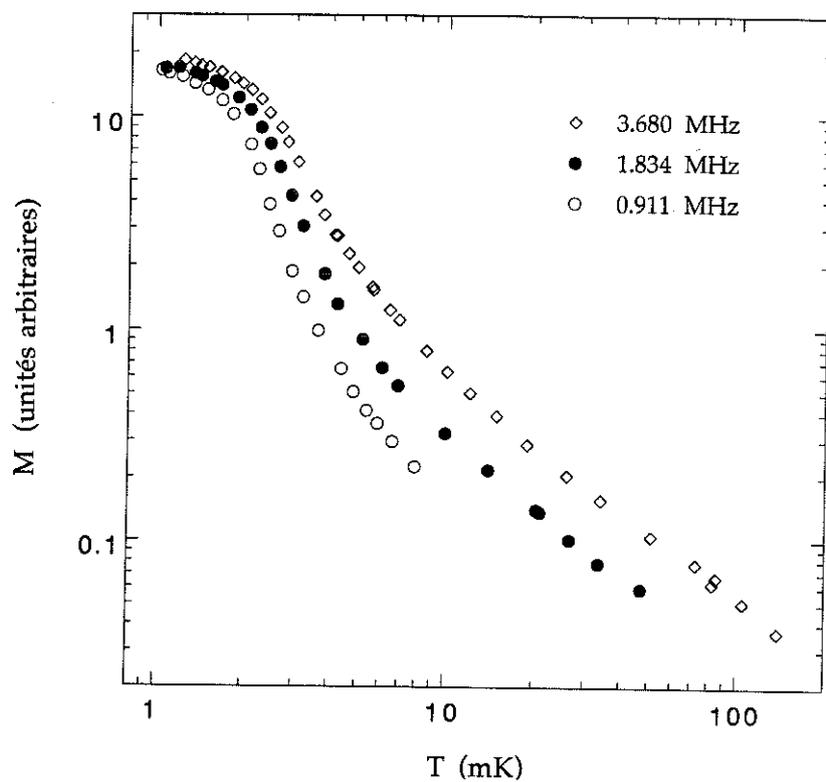


Figure 5.2: Aimantation en fonction de la température.

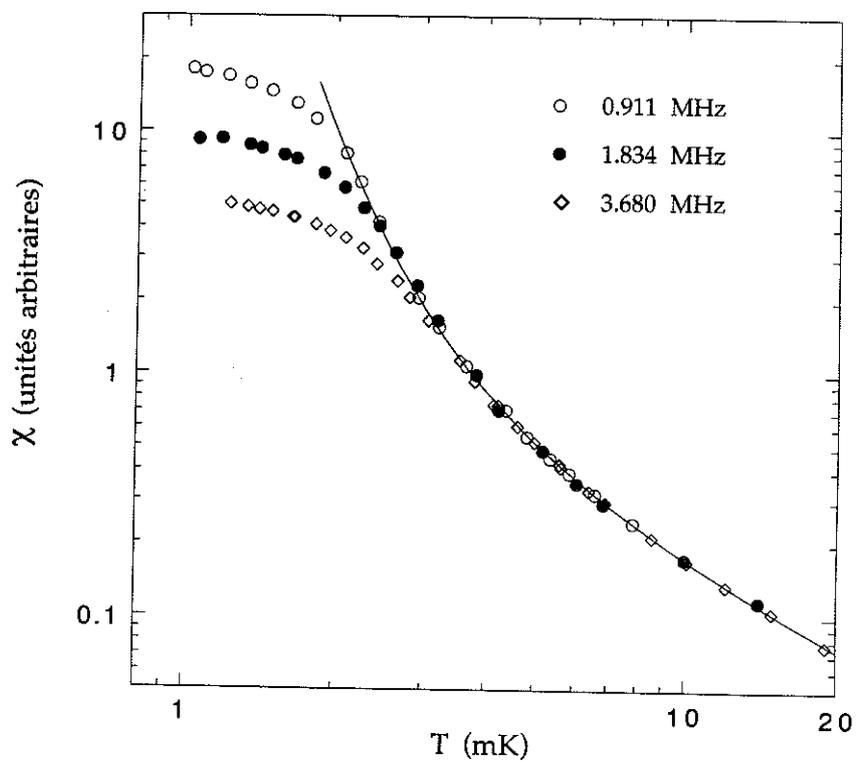


Figure 5.3: Susceptibilité en fonction de la température.

En supposant une taille typique d'une plaquette de l'ordre de 100 \AA , il est raisonnable d'estimer que 10-20 % des atomes d' ^3He sont situés sur les bords et ne participent pas à l'échange ferromagnétique. Cette explication est confirmée par le fait que les mesures réalisées sur du Papyex montrent une aimantation M_0 plus élevée par rapport aux mesures effectuées sur du Grafoil. Pour le Papyex on trouve une valeur de M_0/M_{sat} environ 0.8 tandis que $M_0/M_{sat} \approx 0.6$ dans le cas du Grafoil³. Ceci est dû au fait que le substrat Papyex se compose de plaquettes plus grandes et il y a donc moins d'atomes sur les bords des plaquettes par rapport au Grafoil.

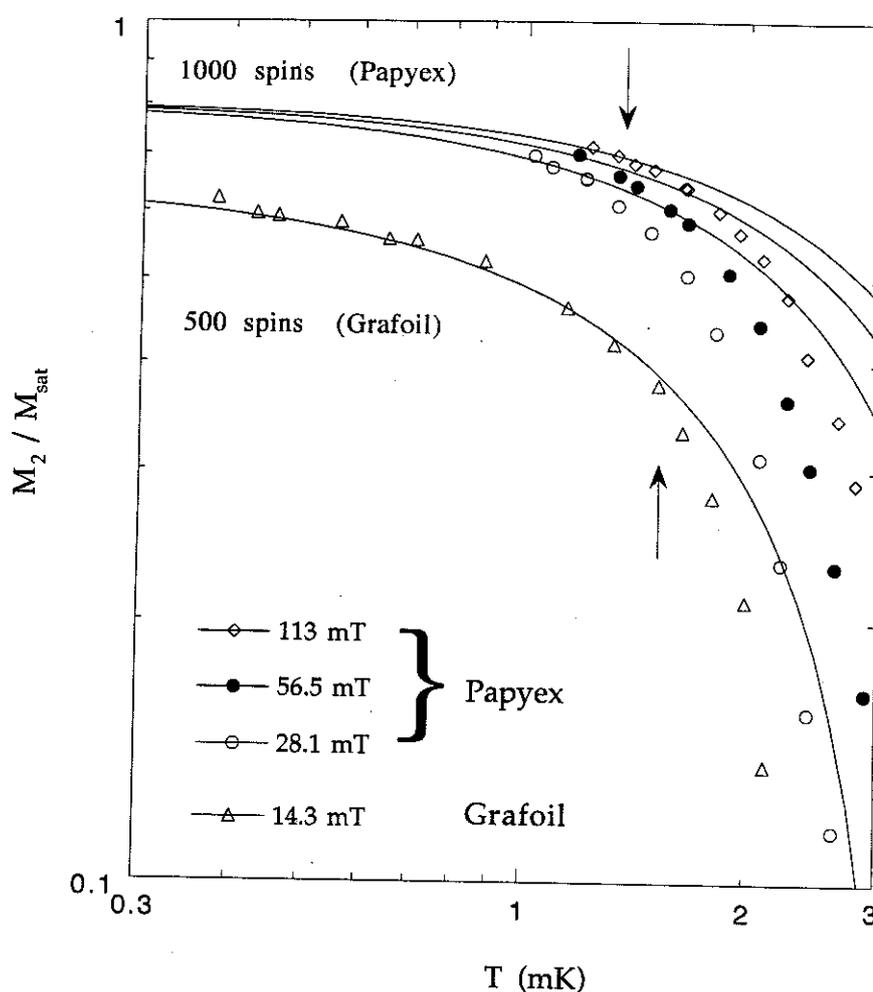


Figure 5.4: Aimantation de la deuxième couche divisée par l'aimantation de saturation de la deuxième couche en fonction de la température. Les flèches correspondent à la température où la longueur de corrélation ξ est égale à la taille d'une plaquette de graphite. Les ajustements sont expliqués dans le texte.

³Dans les deux cas les données étaient analysées avec une densité de la deuxième couche de $\rho_2 = 0.090 \text{ \AA}^{-2}$.

On pourrait également imaginer que les spins manquants se situent sur des plaquettes trop petites pour permettre un échange ferromagnétique. Des mesures de diffraction de neutrons et de rayons X [37, 36] montrent qu'environ 30 % de la surface du graphite comprend des plaquettes très petites qui sont distribuées d'une manière isotrope.

Les déviations de l'aimantation par rapport à M_0 à basse température peuvent être expliquées par les théories d'ondes de spin décrites précédemment. Les ajustements (simulations) montrés dans la figure 5.4 sont basés sur l'équation (4.6). On observe que cette théorie donne une description satisfaisante pour les différentes valeurs du champ magnétique et de la longueur de corrélation. En particulier, on obtient un nombre de spins par plaquette N qui est supérieur à 1000 pour le substrat de Papyex⁴ et qui est égal à 500 pour le Grafoil [7]. Ces valeurs sont en accord avec les mesures de neutrons [37]. Des mesures de STM (microscopie à effet tunnel) effectuées à l'université de Tsukuba montrent effectivement que la taille des plaquettes de notre échantillon est 2 à 3 fois plus grande que celle du Grafoil [50].

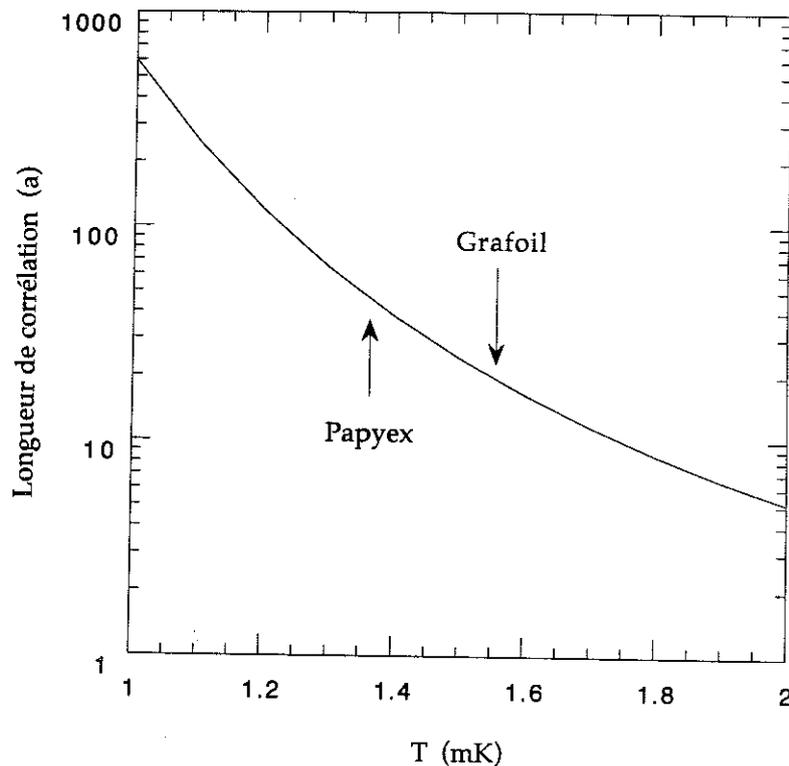


Figure 5.5: Longueur de corrélation en fonction de la température où a est la distance interatomique du modèle d'Heisenberg.

La dépendance du gap en fonction du champ magnétique prédite par la théorie est également bien obéie par les données expérimentales. Il faut noter que cette théorie n'est valable que

⁴la valeur 1000 est une limite inférieure car pour des valeurs $N > 1000$ le gap est indépendant de N et le terme de $k = 0$ devient négligeable.

pour des températures suffisamment basses où la longueur de corrélation est inférieure à la taille d'une plaquette de graphite. La longueur de corrélation varie très rapidement avec la température. Cette dépendance en température est illustrée sur la figure 5.5. Les flèches sur la figure 5.4 indiquent la température où la longueur de corrélation est égale à la taille du système. Au-dessus de cette température les prédictions ne sont plus valables et on observe une déviation.

5.3 Conclusion

En conclusion nous avons étudié l'influence du champ magnétique sur l'aimantation à basse température du système ^3He /Papyex pour une densité correspondant au pic ferromagnétique. En utilisant ce nouveau substrat (Papyex) ayant une grande longueur de corrélation, nous avons pu supprimer la rotation uniforme de l'aimantation des spins situés sur une plaquette (mode $k=0$) et réduire le gap du spectre des ondes de spin dû à la taille des plaquettes. Nous avons ainsi pu explorer pour la première fois un régime où le gap est dominé par le champ magnétique. Les résultats confirment le modèle de Kopietz *et al.*.

Chapitre 6

Films d' ^3He liquide: Un système modèle pour les Fermions fortement corrélés

L' ^3He liquide massif est un exemple canonique de liquide de Fermi. Ses propriétés thermiques et magnétiques qui ont été largement étudiées [100, 101] sont très bien décrites par la théorie phénoménologique proposée par Landau [97, 98].

On peut faire varier la masse effective réduite de 2.8 à 5.85 et le renforcement de la susceptibilité de 9.18 à 23.7 [102] en changeant la pression externe. La masse effective réduite est définie comme $\frac{m^*}{m}$, où m^* est la masse des quasiparticules de la théorie de Landau et m est la masse de l'atome d' ^3He . Le renforcement de la susceptibilité est défini comme le rapport entre la susceptibilité du système à température nulle $\chi(0)$ et la susceptibilité d'un gaz de Fermi idéal à la même densité $\chi_0(0)$.

En peut explorer un domaine d'interactions plus vaste pour les films d' ^3He adsorbés sur un substrat. Dans ce cas, le mouvement atomique est confiné dans deux dimensions, à cause du fort potentiel d'adsorption (-136K pour le graphite nu). Or, la densité surfacique du film liquide peut être variée de manière continue d'un régime d'un gaz très dilué sans interactions à un régime fortement corrélé.

En particulier on n'observe pas de transition de phase gaz-liquide à deux dimensions (2D) [88], contrairement au système à trois dimensions (3D). Pour le liquide en deuxième couche on a également la possibilité de modifier le potentiel d'adsorption en remplaçant les atomes d' ^3He de la première couche par d'autres atomes (^4He ou HD par exemple).

Le comportement de ces "nouveaux" liquides de Fermi a été étudié au moyen de mesures de chaleur spécifique [2, 5] et de RMN [42, 103, 104]. A basse température, la chaleur spécifique a une dépendance linéaire en fonction de la température et la susceptibilité est constante. Ces propriétés sont communes aux liquides de Fermi à deux et à trois dimensions.

Par contre, des valeurs de l'ordre de 40 peuvent être atteintes pour le facteur de renforcement $\chi(0)/\chi_0(0)$ dans ces systèmes bidimensionnels (ce que nous allons montrer par la suite), alors qu'on ne dépasse pas 24 dans l'³He massif. L'³He adsorbé sur du graphite représente donc un système modèle pour l'étude des Fermions fortement corrélés.

Avant de présenter les résultats de nos mesures sur les liquides de Fermi à deux dimensions, nous rappelons quelques aspects de la théorie phénoménologique de Landau. Ensuite nous décrivons deux théories microscopiques qui donnent des prédictions différentes concernant les liquides de Fermi corrélés: le modèle de paramagnons et celui des Fermions presque localisés.

Ensuite nous présentons nos résultats sur le liquide de Fermi de la deuxième couche. Il s'agit d'une part des mesures effectuées sur un système d'³He pur, et d'autre part, des mesures pour un système similaire où la première couche d'³He est remplacée par une couche d'⁴He. Une comparaison avec des résultats du liquide de Fermi de la première couche [42] sera faite. Finalement les prédictions des modèles théoriques seront comparées aux résultats expérimentaux.

6.1 Gaz de Fermi bidimensionnel

Avant d'aborder la théorie de Landau nous rappelons quelques propriétés d'un gaz de Fermi bidimensionnel (2D) sans interactions.

Chaleur spécifique

A très basse température ($T \ll T_F$), où T_F est la température de Fermi, le gaz est dégénéré et on obtient une dépendance linéaire de la capacité calorifique en fonction de la température:

$$C_V^0 = \gamma T = \frac{\pi^2}{3} N k_B \frac{T}{T_F} \quad (6.1)$$

avec

$$T_F = \frac{\pi \hbar^2}{k_B m_3} \frac{N}{A} \quad (6.2)$$

où N est le nombre d'atomes, A la surface du substrat et m_3 la masse d'un atome d'³He. Avec les valeurs des constantes physiques on obtient:

$$T_F [\text{K}] = 50.80 \rho [\text{atomes}/\text{\AA}^2] \quad (6.3)$$

où ρ est la densité surfacique du film d'³He adsorbé. Pour une densité typique de 0.03\AA^{-2} , on obtient une température de Fermi d'environ 1.5 K. Il faut noter que (en substituant l'équation (6.2.) dans l'équation (6.1.)) la chaleur spécifique ne dépend que de la surface du substrat A et, contrairement au cas tridimensionnel (3D) elle ne dépend pas du nombre

d'atomes N . A haute température (régime où le gaz est fortement *nondégénéré* on retrouve la valeur classique

$$C_V^0 = Nk_B \quad (6.4)$$

Pour le régime intermédiaire, la chaleur spécifique peut être calculée par des développements du viriel et on obtient que la chaleur spécifique décroît de façon monotone avec la température.

Susceptibilité

A basse température ($T \ll T_F$) la susceptibilité atteint une valeur limite (*susceptibilité de Pauli*) du fait de la statistique fermionique.

$$\chi^0 = \frac{C}{T_F} = \frac{\mu^2 m_3 A}{\pi \hbar^2} \quad (6.5)$$

où μ est le moment magnétique d'un atome d' ^3He . Dans la limite classique ($T \gg T_F$) on retrouve une susceptibilité qui suit une loi de Curie (spins libres):

$$\chi^0 = \frac{N\mu^2}{k_B T} \quad (6.6)$$

Dans le cas d'un gaz à 2D, la susceptibilité est décrite par l'expression

$$\chi^0 = \frac{C}{T_F} (1 - e^{-T_F/T}) \quad (6.7)$$

6.1.1 Théorie de Landau

Une théorie phénoménologique concernant les liquides de Fermi a été développée par Landau [97, 98]. Dans cette théorie les excitations élémentaires du système sont décrites dans un formalisme de quasiparticules, et le liquide avec des interactions fortes est considéré comme un système de quasiparticules ayant la même fonction de distribution que le système sans interaction. Ces quasiparticules sont caractérisées par une masse effective et une interaction effective. La grandeur de l'interaction comparée à l'énergie cinétique est donnée par les paramètres de Landau F_l^s et F_l^a ($l = 0 \dots \infty$) où les indices s et a correspondent à la partie symétrique et antisymétrique de la paramétrisation de l'interaction. En pratique, les paramètres F_0^s , F_1^s et F_0^a suffisent pour décrire le comportement des quantités mesurables.

Les expressions obtenues pour la chaleur spécifique C_V et la susceptibilité χ sont:

$$C_V = \frac{m^*}{m} C_V^0 \quad (6.8)$$

$$\chi = \frac{m^*/m}{1 + F_0^a} \chi^0 \quad (6.9)$$

où $m^*/m = 1 + \frac{1}{2}F_0^s$ (le préfacteur est $\frac{1}{2}$ à 2D [99]), C_V^0 et χ^0 sont les quantités respectives d'un système de Fermi sans interaction.

Les propriétés physiques de l'³He à basse température sont alors qualitativement similaires à celles d'un gaz de Fermi, malgré les fortes interactions. Une mesure de la chaleur spécifique donne directement la masse effective des quasiparticules. On remarque que C_V ne dépend pas des interactions entre les quasiparticules. Pour la susceptibilité on observe au contraire un renforcement dû à l'interaction d'échange F_0^a .

Le coefficient F_0^a peut être déterminé en utilisant des valeurs expérimentales de la chaleur spécifique (la valeur de m^*) et de la susceptibilité. Si l'on veut calculer les paramètres de Landau il faut formuler une théorie microscopique de l'interaction entre les particules [105] et [106]. Une revue récente des théories microscopiques est donnée dans la référence [102].

Susceptibilité d'un gaz de Fermi avec interactions

La dépendance en température de la susceptibilité peut être décrite par une expression phénoménologique proposée par Dyugaev [96]:

$$\chi = \frac{C}{\sqrt{T^2 + T_{F^{**}}^2}} \quad (6.10)$$

où C est la constante de Curie et $T_{F^{**}}$ est la température de Fermi effective (température de Fermi d'un gaz de Fermi avec des interactions) ¹ définie par la susceptibilité à $T = 0$: $\chi(0) = C/T_{F^{**}}$.

Une quantité physique importante concernant les liquides de Fermi est le facteur de renforcement de la susceptibilité. Il est donné par l'expression

$$\frac{\chi(0)}{\chi_0(0)} = \frac{T_F}{T_{F^{**}}} \quad (6.11)$$

où $\chi(0)$ est la susceptibilité du système à température nulle et $\chi_0(0)$ est la susceptibilité d'un gaz de Fermi idéal à la même densité.

Dans la suite nous discutons deux modèles qui fournissent des prédictions explicites et qui peuvent donc être comparés aux mesures expérimentales. Il s'agit du modèle des paramagnons et du modèle des Fermions presque localisés.

¹Une autre expression empirique: $\chi = \frac{C}{T_{F^{**}}} (1 - e^{-T_{F^{**}}/T})$ est souvent utilisée, mais nous avons observé que l'équation (6.8) décrit mieux la dépendance en température. Cette expression est celle du gaz idéal, mais $T_{F^{**}}$ est ici un paramètre ajustable.

6.1.2 Modèle des paramagnons

La théorie des paramagnons est une théorie microscopique où seulement les interactions entre les spins ont été considérées et où tous les paramètres de Landau pour $l > 1$ ont été négligés.

Ce modèle est basé sur le modèle de Stoner [107] où la répulsion entre les fermions est caractérisée par une répulsion de sphères dures à courte distance [107]. L'Hamiltonien dans ce cas est donné par [108]:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{cinétique}} + \mathcal{H}_{\text{interaction}} \quad (6.12)$$

où $\mathcal{H}_{\text{interaction}}$ correspond à une interaction du type "cœur dur" $I\delta(\vec{x}-\vec{x}')$ entre les Fermions.

Dans ce modèle, la partie attractive de l'interaction van der Waals a été négligée. La solution de cet Hamiltonien a été obtenue par un calcul de RPA (Approximation de la phase aléatoire) [108, 109, 110]. Cette solution mène au modèle des paramagnons, d'après lequel le renforcement de la susceptibilité (renforcement de Stoner) est dû aux fluctuations amorties des spins à basse fréquence (paramagnons). Le facteur de renforcement est donné par:

$$\frac{\chi(0)}{\chi_0(0)} = \frac{1}{1-\bar{I}} \quad ; \quad \bar{I} < 1, \text{ avec } \bar{I} = IN \quad (6.13)$$

où \bar{I} est l'énergie d'interaction normalisée, et N est la densité d'états à la surface de Fermi. Pour $\bar{I} \rightarrow 1$ la susceptibilité diverge, ce qui indique une transition vers un état ferromagnétique. On parle donc souvent d'un système *presque ferromagnétique*.

Pour la masse effective réduite on obtient l'expression (à 2D) en fonction du renforcement de la susceptibilité pour le cas d'une interaction forte I qui est donné par [112]:

$$\frac{m^*}{m} = 1 + \frac{9}{2} \left(1 - \frac{\chi_0(0)}{\chi(0)} \right) \ln \left(1 + \frac{1 - \chi_0(0)/\chi(0)}{12 \chi_0(0)/\chi(0)} \right) \quad (6.14)$$

On remarque que cette expression ne contient que des quantités accessibles aux mesures. On peut donc la comparer directement aux résultats expérimentaux. Cependant il faut noter qu'elle n'est valable que pour une très forte interaction entre les spins. En effet, seuls les termes les plus divergents en $(1-\bar{I})^{-1}$ ont été considérés dans le calcul.

6.1.3 Modèle des Fermions presque localisés

Un deuxième modèle qui fait des prédictions concernant les paramètres de Landau est le modèle des *Fermions presque localisés*. La principale différence entre ce modèle et celui des paramagnons est l'introduction d'un réseau fictif. L'énergie cinétique est ainsi due au sauts d'un site à l'autre tandis que l'interaction n'agit que sur le même site.

Ce modèle, qui est connu sous le nom du modèle de Hubbard [114], a été introduit pour décrire les propriétés d'un système électronique où l'idée d'un réseau est naturelle. Pour l'³He normal, qui est un liquide, l'idée d'un réseau semble artificielle. Il n'est donc pas évident *a priori* que ce modèle donne une description raisonnable de ce système.

Une approche variationnelle a été utilisée par Gutzwiller [115] afin de traiter ce problème. Dans le cas d'une bande demi remplie [116], on obtient une transition dans un état localisé (transition de Mott) avec un état fondamental antiferromagnétique.

Une comparaison avec les théories des liquides de Fermi [117, 118] montre que selon ce modèle, l'³He liquide devrait être considéré comme un système *presque localisé* plutôt que *presque ferromagnétique*. Un développement de ce résultat se trouve dans l'article de revue de Vollhardt [119]. Les résultats principaux sont donnés ci-dessous.

La masse effective est donné par:

$$\frac{m^*}{m} = \frac{1}{1 - I^2} \quad (6.15)$$

où I est le potentiel normalisé sur le site ($I = U/U_c$, où U_c est l'interaction critique). Le paramètre de Landau F_0^a est donné par:

$$F_0^a = -p \left[1 - \frac{1}{(1 + I)^2} \right] \quad (6.16)$$

où p est une quantité qui dépend surtout de la densité d'états et qui est de l'ordre de 1 pour une bande symétrique [119]. En combinant ces deux équations afin d'éliminer I et en prenant $p = 1$ on obtient l'expression:

$$1 + F_0^a = \frac{1}{\left(1 + \sqrt{1 - m/m^*}\right)^2} \quad (6.17)$$

Dans ce modèle une divergence de la susceptibilité apparaît à $U = U_c$ où la masse effective diverge, tandis que dans le modèle des paramagnons cette divergence est due aux interactions entre les spins (divergence du paramètre F_0^a). Une comparaison des résultats avec les deux théories sera détaillée dans la section suivante.

6.2 Mesures expérimentales

Dans cette section nous présentons des mesures sur les propriétés du liquide de Fermi de la deuxième couche d' ^3He adsorbé sur du Grafoil. Une première série des mesures a été réalisée pour un système d' ^3He pur ($^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$). Un des avantages des films d' ^3He pur est la bonne connaissance de leur structure grâce aux mesures de diffraction de neutrons. En outre, les mesures de chaleur spécifique, qui donnent une information sur la masse effective, n'existent que pour les films d' ^3He purs. Afin de distinguer les modèles théoriques décrits précédemment, la susceptibilité et la chaleur spécifique doivent être mesurées sur le même système. La figure 6.1 montre les données brutes de nos mesures de RMN sur ce système.

Une deuxième série des mesures a été effectuée sur un système où la première couche d' ^3He a été remplacée par une couche d' ^4He ($^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$). Ceci est montré dans la figure 6.2. Ces mesures ont été effectuées sur le réfrigérateur à désaimantation nucléaire. L'avantage de ce système par rapport au système d' ^3He pur est la suppression du signal magnétique de la première couche solide.

La figure 6.1 montre le produit de l'aimantation et de la température MT pour différents taux de couverture² mesuré sur le système d' ^3He pur. Pour $\rho \leq 0.179 \text{ \AA}^{-2}$, le film d' ^3He est liquide en deuxième couche. Nous rappelons que dans ce cas la première couche est solide et agit comme un nouveau substrat pour l'adsorption de la deuxième couche. Le potentiel d'adsorption est plus homogène que celui du graphite nu. A basse température ($T < T_F$), la susceptibilité du liquide est relativement constante et petite. Pour ($T > T_F$) la susceptibilité suit une la loi de Curie et elle est comparable en amplitude à la contribution du solide en première couche.

Ce comportement est clairement observé dans la figure 6.1. La contribution de la première couche (une ligne horizontale dans ce graphique) est déterminée par la mesure de l'aimantation à basses températures. Néanmoins, on observe une faible augmentation de l'aimantation en fonction de la densité dans ce régime. Cette augmentation est due à la compression de la première couche, ce qui est en bon accord avec les mesures de neutrons [4]. Pour le taux de couverture 0.181 \AA^{-2} , l'aimantation à basse température augmente considérablement. Ce fait est attribué à la solidification de la deuxième couche (voir 4.2.2).

L'augmentation du produit MT en fonction de la température est due à la contribution du liquide. Cette quantité augmente avec le taux de couverture. De plus, on remarque un décalage des courbes vers les basses températures. Ceci indique une diminution de la température de Fermi effective T_F^{**} jusqu'à des valeurs inférieures à 100 mK. La température de Fermi d'un gaz de Fermi idéal pour ces taux de couverture est de l'ordre de 3 K. Ces liquides de Fermi sont donc extrêmement corrélés.

²Un résumé de tous les taux de couverture mesurés au cours de cette thèse est donné dans l'annexe A

La dépendance en température est très bien décrite par la théorie phénoménologique de Dyugaev [96]. Les ajustements illustrés dans la figure 6.1 sont basés sur l'équation (6.10). Cette expression définit une température de Fermi effective T_F^{**} . Il faut noter qu'elle décrit également la susceptibilité de l'³He massif d'une manière excellente. L'expression pour le gaz de Fermi modifié dévie substantiellement de nos données expérimentales, surtout à hautes températures ($T > T_F^{**}$) et à hautes densités.

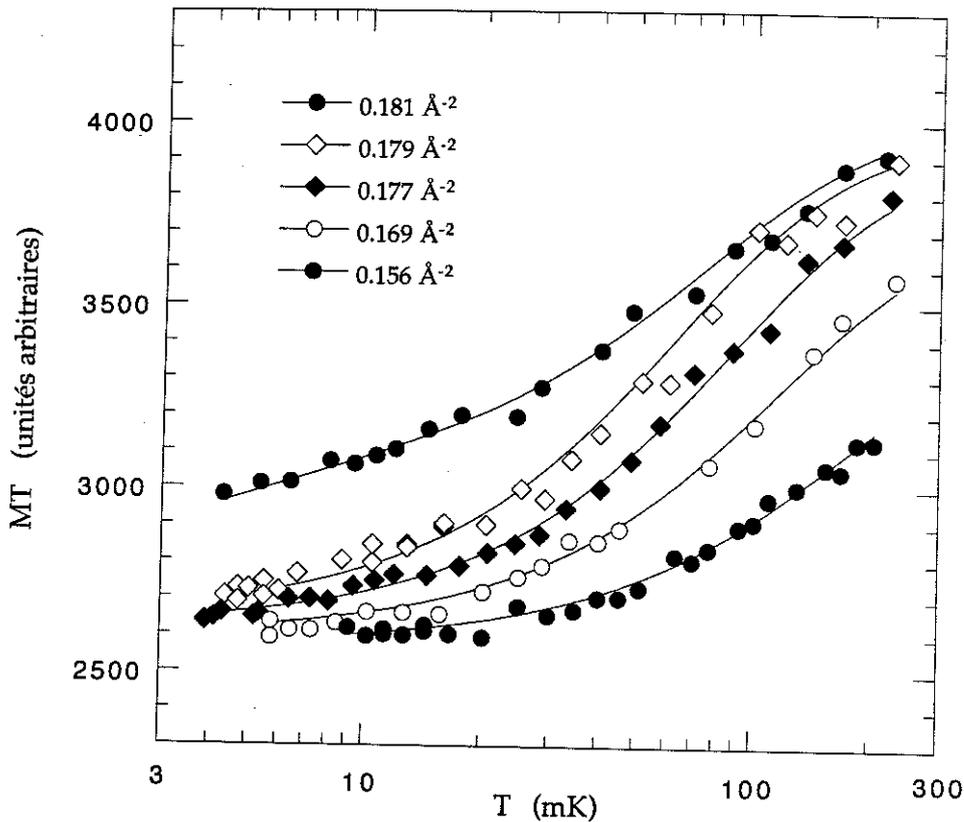


Figure 6.1: Produit de l'aimantation totale et de la température en fonction de la température. Les ajustements sont basés sur la théorie des liquides de Fermi de Dyugaev [96] (voir texte).

La densité du liquide est un paramètre important pour l'analyse des données: le renforcement de la susceptibilité est obtenu avec le rapport entre la température de Fermi effective T_F^{**} et la température de Fermi d'un gaz idéal de Fermi, qui dépend elle-même de la densité.

Nos mesures de RMN aux températures les plus basses donnent une mesure directe du nombre d'atomes N_1 dans la première couche. Le nombre d'atomes dans la deuxième couche est ensuite donné par $N_2 = N_{tot} - N_1$, où N_{tot} est le nombre total d'atomes introduits dans la cellule. Afin de déterminer la densité de la deuxième couche, il faut tenir compte du fait que la surface effective augmente légèrement avec la densité (voir 3.3.4). Une simple division du nombre d'atomes de la deuxième couche par la surface du substrat (qui a été déterminée

par la phase commensurable R_{1a}) ne donne pas la vraie densité. La vraie densité³ de la deuxième couche ρ_2 est donc donnée par $\rho_2 = \rho_1 N_2/N_1$, où ρ_1 est la densité de la première couche mesuré par de neutrons à une densité où la deuxième couche est liquide. Avec cette procédure nous obtenons des valeurs de ρ_2 avec une précision d'environ 2%.

La figure 6.2 montre le produit MT mesuré pour le système $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$. Dans ce cas, l'aimantation est entièrement déterminée par le liquide en deuxième couche. Les ajustements tracés sont basés sur l'équation (6.10). On remarque que la précision des données est supérieure à celle des résultats sur l' ^3He pur montrés dans la figure 6.1. En effet pour ces nouvelles mesures nous avons utilisé un préamplificateur à froid (voir section 2.3.2) qui nous donne une très bonne stabilité.

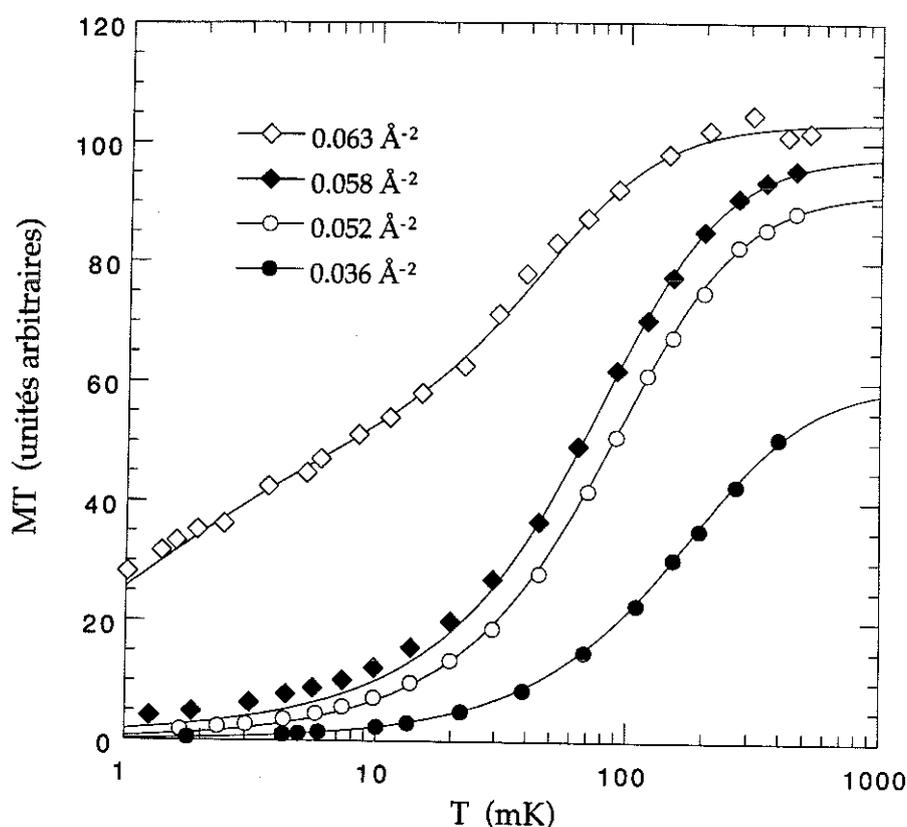


Figure 6.2: Produit de l'aimantation et de la température en fonction de la température d'un film d' ^3He liquide en deuxième couche adsorbé sur une couche d' ^4He . Les ajustements sont basés sur la théorie des liquides de Fermi de Dyugaev (voir texte).

La détermination de la densité du liquide est plus difficile pour ce système. Si la quantité d' ^4He n'est pas assez grande pour remplir complètement une couche, des atomes d' ^3He seront localisés dans la première couche. Dans ce cas le nombre d'atomes d' ^3He sous forme li-

³La vraie densité est celle déterminée par des neutrons où la distance interatomique est mesurée directement.

quide est plus petit que le nombre d'atomes d'³He introduit. Cependant, le nombre d'atomes d'³He qui se situent dans la première couche peut être déterminé par le comportement de l'aimantation à très basse température. Si la quantité des atomes d'⁴He est trop grande, des atomes d'⁴He seront présents en deuxième couche, et la densité réelle de l'³He liquide est sous-estimée. Pour déterminer la quantité d'⁴He optimale nous commençons par former une couche presque complète. Puis nous ajoutons petit à petit de l'⁴He jusqu'à ce que la contribution paramagnétique des atomes d'³He adsorbés en première couche disparaisse. Avec cette méthode nous trouvons alors une densité $\rho^{4He} = 0.1224 \text{ \AA}^{-2}$ pour la densité de la première couche d'⁴He. En utilisant la densité de la première couche d'³He déterminée par nos mesures présentées dans le chapitre 4 $\rho^{3He} = 0.1160 \text{ \AA}^{-2}$, nous trouvons qu'une monocouche d'⁴He est environ 5% plus dense qu'une monocouche d'³He. Ceci est en très bon accord avec les mesures de neutrons qui donnent un rapport entre ρ^{4He} et ρ^{3He} de 1.053 [45]. La vraie densité du liquide est ensuite déterminée par la méthode décrite précédemment.

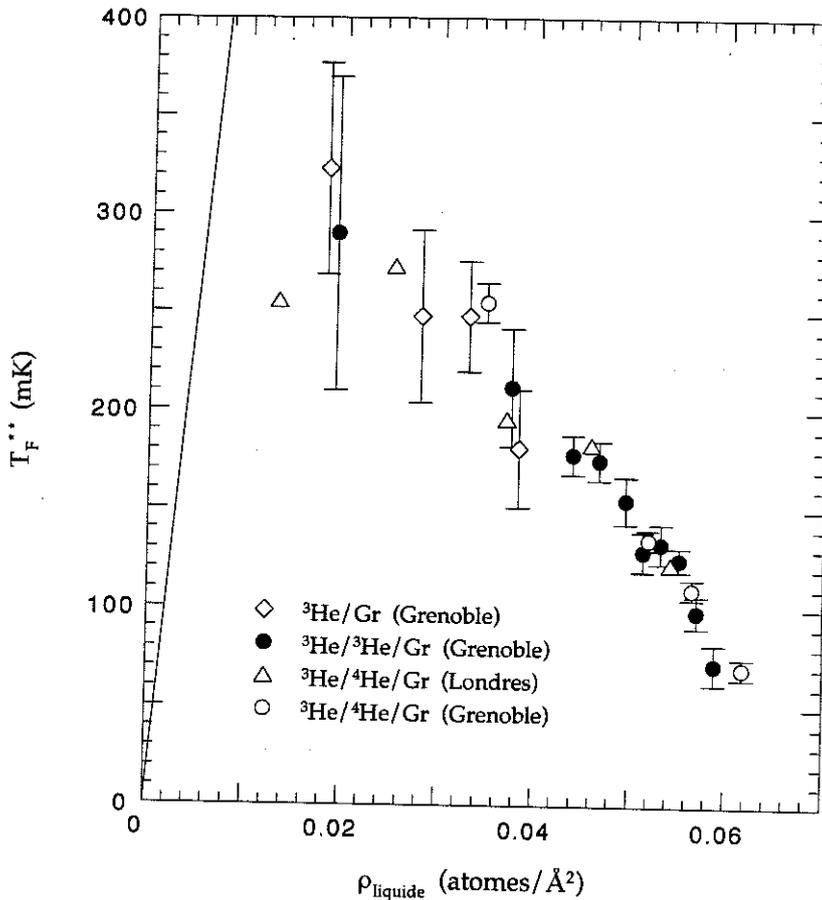


Figure 6.3: Température de Fermi effective T_F^{**} en fonction de la densité du liquide pour trois systèmes différents. (\diamond): (³He/Gr), données de Morhard et al. [42]; (\bullet): (³He/³He/Gr), nos données; (\triangle): (³He/⁴He/Gr), données de Lusher et al. [104]; (\circ): (³He/⁴He/Gr), nos données. La droite en trait plein correspond au comportement d'un gaz de Fermi idéal.

La dépendance de la température de Fermi T_F^{**} en fonction de la densité du liquide en deuxième couche est illustrée dans la figure 6.3. La température de Fermi effective diminue en fonction de la densité dans une gamme de densités entre 0.02 et 0.06 \AA^{-2} . Il est important de noter que la valeur de T_F^{**} est pratiquement identique pour les trois systèmes différents ($^3\text{He}/\text{Gr}$, $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$, $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$). Ceci implique que la profondeur du puits du potentiel d'adsorption influence peu les propriétés magnétiques des films d' ^3He liquide, ce qui n'est pas le cas pour les phases solides, où l'on observe que les constantes d'échange dépendent fortement du potentiel d'adsorption [48, 3]. Pour un film d' ^3He liquide, nous observons qu'un seul paramètre T_F^{**} caractérise les propriétés magnétiques.

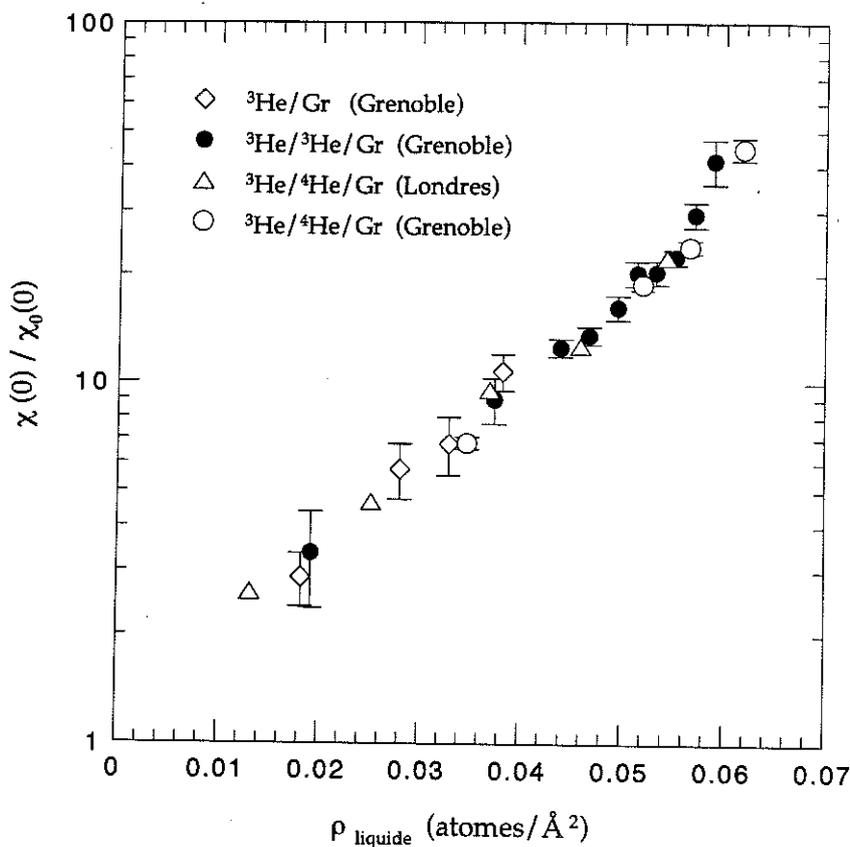


Figure 6.4: Renforcement de la susceptibilité en fonction de la densité du liquide pour trois systèmes différents. (\diamond): ($^3\text{He}/\text{Gr}$), données de Morhard et al. [42]; (\bullet): ($^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$), nos données; (\triangle): ($^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$), données de Lusher et al. [104]; (\circ): ($^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$), nos données.

La température de Fermi diminue rapidement pour des densités comprises entre 0.050 et 0.060 \AA^{-2} . La température de Fermi effective la plus petite est observée pour une densité de 0.179 \AA^{-2} . Dans ce cas nous obtenons une valeur de $T_F^{**} = 72$ mK. A plus haute densité ($\rho > 0.06 \text{\AA}^{-2}$) on observe la solidification de la deuxième couche. Ceci a été traité en détail dans la section 2.2 du chapitre 4. Nous voulons seulement faire ici une remarque concernant la solidification.

En effet, on peut se demander si la forte susceptibilité du liquide au voisinage de la solidification ne serait pas due à la croissance thermique du solide. On peut s'attendre à l'existence d'une courbe de fusion de type Pomeranchuk, comme dans le cas d'³He à 3D pour $T < 300$ mK, ce qui conduit à une diminution de la quantité de solide lorsqu'on abaisse la température d'un système où solide et liquide coexistent. Pour les densités inférieures à 0.179 \AA^{-2} , on est assez loin de la solidification et ce type de solidification peut être exclu. La présence d'un solide est clairement observée pour la densité $\rho = 0.181 \text{ \AA}^{-2}$. La température de Fermi effective du liquide pour cette densité est en accord avec celle obtenue avant le début de la solidification. Ceci est le résultat attendu pour une coexistence liquide-solide (voir 4.2.2). Pour la densité $\rho = 0.179 \text{ \AA}^{-2}$, très proche de la solidification, nous n'observons aucune contribution d'un solide à basse température. Bien que nous ne puissions pas exclure la possibilité qu'à cette même densité du solide se soit formé à haute température, nos mesures sur l'³He liquide adsorbé sur une couche d'⁴He confirment la valeur de $T_F^{**} = 70$ mK, comme il est montré dans la figure 6.3. La précision pour ces données est supérieure à celle des données concernant l'³He pur et la contribution de la première couche est supprimée, ce qui permet d'obtenir de bien meilleurs résultats.

La figure 6.4 montre le renforcement de la susceptibilité en fonction de la densité pour les différents systèmes. Le renforcement de la susceptibilité suit une dépendance pratiquement exponentielle en fonction de la densité du film d'³He. Il varie sur une large gamme (entre 3 et 10 pour le liquide en première couche et entre 2.5 et 45 pour la deuxième couche). Cette variation est beaucoup plus importante que pour l'³He liquide massif, où le renforcement de susceptibilité ne varie que de 9.18 à 23.7.

Le paramètre de Landau F_0^a peut être obtenu à partir du renforcement de la susceptibilité que nous avons déterminé et de la masse effective mesurée par Greywall [5] pour le système d'³He pur à partir de la chaleur spécifique. Pour comparer la masse effective et le renforcement de la susceptibilité à la même densité nous avons appliqué une correction de 4% aux densités de Greywall (voir chapitre 3). Nous avons ensuite utilisé la méthode décrite précédemment pour obtenir la vraie densité du liquide.

La figure 6.5 montre la masse effective réduite $\frac{m^*}{m}$ en fonction de la densité. Les cercles ouverts correspondent aux données originales de la référence [5]. Les cercles pleins correspondent à la masse effective en fonction de la vraie densité du liquide. Le losange correspond à une valeur de $\frac{m^*}{m}$ extraite des données de Greywall pour une densité de $\rho_{tot} = 0.177 \text{ \AA}^{-2}$ (0.170 \AA^{-2} en unités de Greywall). Pour cette densité, Greywall n'a pas publié de valeur pour la masse effective réduite.

On observe que la masse effective augmente très rapidement à partir d'une densité de 0.05 \AA^{-2} . Les masses effectives les plus grandes sont observées à proximité de la solidification ($\rho_{liquide} = 0.059 \text{ \AA}^{-2}$), avec une valeur d'environ 7. Ceci doit être comparé à une valeur de 5.85 observée pour l'³He liquide massif à une pression de 34 bar.

Pour le système $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$ il n'existe pas de mesures de chaleur spécifique. Cependant, nous avons vu précédemment que ce système a un comportement très similaire à celui du système d' ^3He pur. Pour la détermination du facteur de Landau F_0^a nous utilisons donc les masses effectives réduites du système d' ^3He pur.

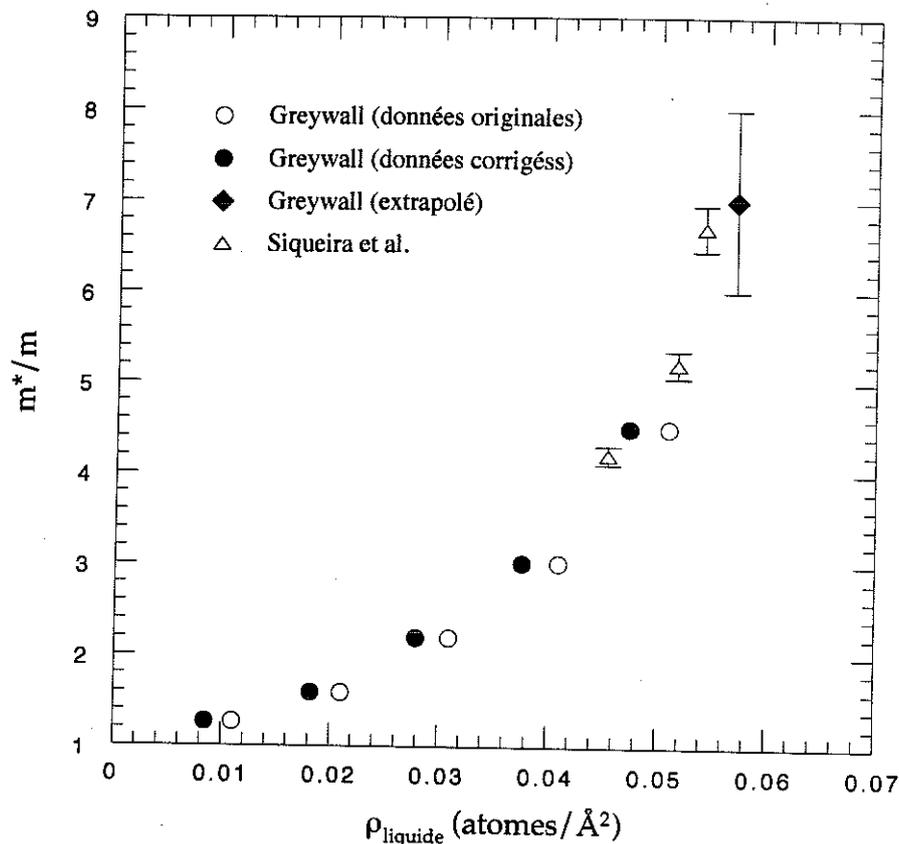


Figure 6.5: Masse effective réduite en fonction de la densité du liquide. (○): données originales de Greywall; Fig. 12 de la référence [5]; (●): données de Greywall corrigées en densité (voir texte); (◆): valeur extraite de données de Greywall; (△): données de Siqueira *et al.* [51].

La figure 6.6(a) montre la masse effective réduite en fonction du renforcement de la susceptibilité pour les trois systèmes différents. On remarque que dans ce graphe les trois systèmes ont le même comportement. Il faut noter que les deux points pour lesquels nous avons obtenu un facteur de renforcement d'environ 40 ne sont pas représentés du fait que nous ne disposons pas de données concernant la masse effective.

Nos mesures sur le système $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ montrent clairement que le modèle de Fermions presque localisés décrit mieux le comportement observé expérimentalement dans le cas des systèmes à densité élevée. Ceci est confirmé par nos mesures sur le système $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$. Pour l' ^3He massif le comportement observé dans une faible plage de paramètres semble également mieux suivre le modèle presque localisé.

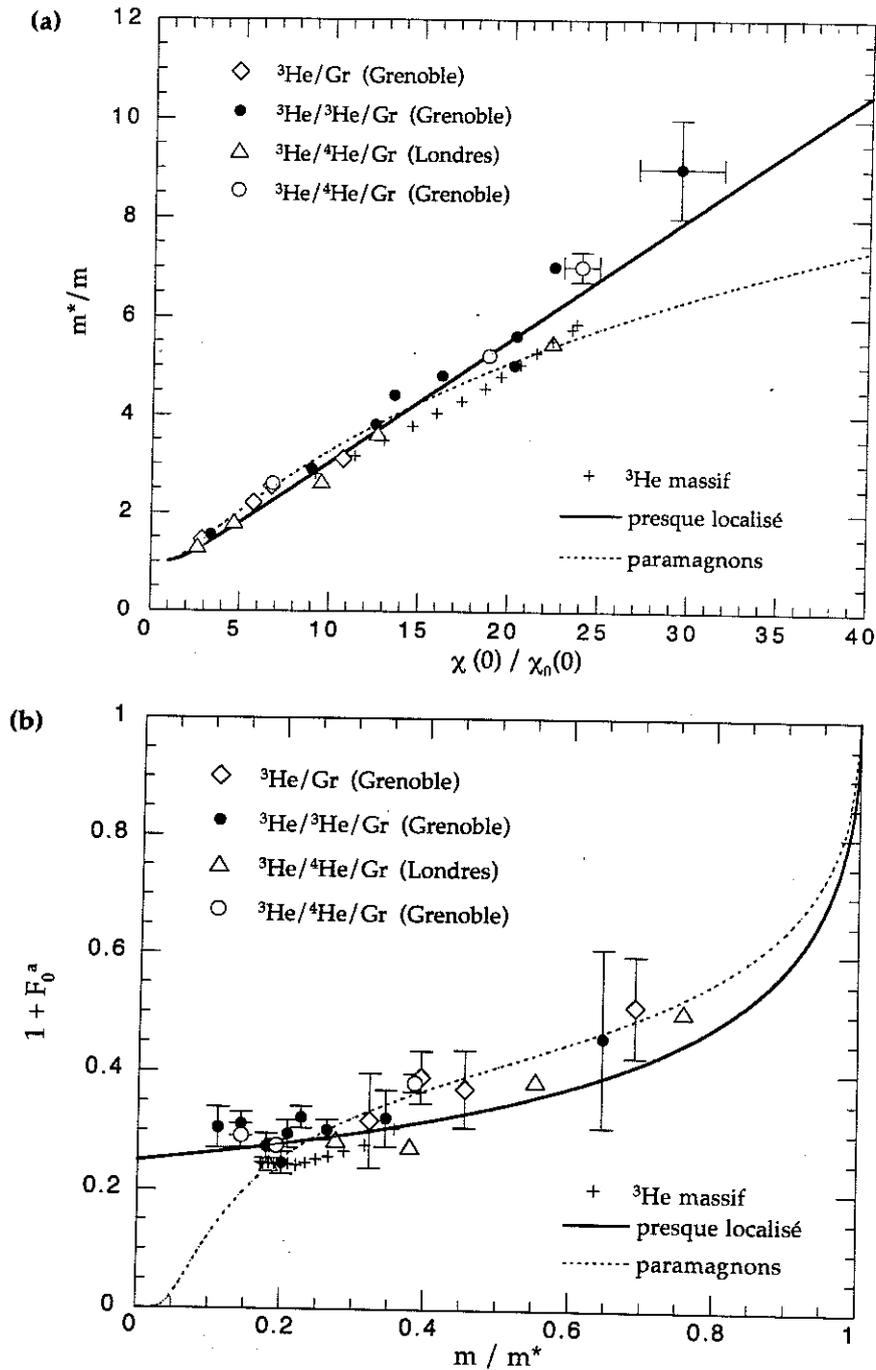


Figure 6.6 (a): Masse effective réduite en fonction du renforcement de la susceptibilité. (b) Paramètre de Landau F_0^a en fonction de m/m^* . (\diamond): $^3\text{He}/\text{Gr}$, données de Morhard *et al.* [42]; (\bullet): $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$, nos données; (\triangle): $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$, données de Lusher *et al.* [104]; (\circ): $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$, nos données; (+): ^3He massif [122]. Le trait plein correspond au modèle de Fermions presque localisés [119] et le trait pointillé correspond au modèle des paramagnons [112]. Les barres d'erreur pour la masse effective dans la figure (a) correspondent à une extrapolation des valeurs des masses effectives (voir figure 6.5).

La figure 6.6(b) montre les mêmes données expérimentales d'une manière différente. En effet, nous représentons le paramètre de Landau en fonction de l'inverse de la masse réduite. Pour une faible interaction les modèles donnent des prédictions qualitativement similaires. Cependant, il faut noter que ces modèles ne sont valables que pour une interaction forte ($\frac{m^*}{m} > 3$).

Finalement, nous présentons dans la figure 6.7 les données obtenues pour différentes densités normalisées de sorte que la comparaison avec des théories où $\chi T = f(T/T_F^{**})$ soit aisée.

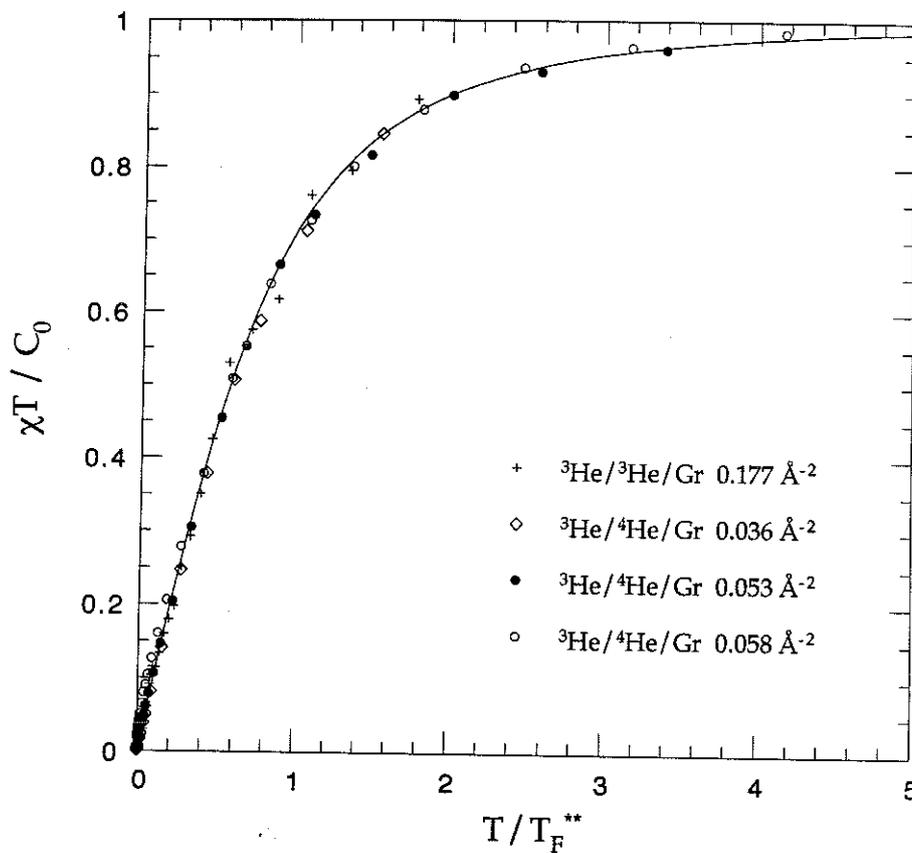


Figure 6.7: Produit de la susceptibilité et de la température en fonction de T/T_F^{**} pour plusieurs densités. Le trait plein correspond à l'expression de Dyugaev.

6.2.1 Comportement à très basse température

Dans cette section nous discutons du comportement du liquide à très basse température ($T < 2$ mK). Il s'agit des premières mesures sur l'³He liquide adsorbé réalisées à ultra-basse température. La motivation de ces mesures était la recherche de l'éventuelle superfluidité d'un film atomique d'³He liquide.

Les mesures de RMN à très basse température sur l'³He liquide à deux dimensions sont extrêmement difficiles. En effet, l'aimantation d'un liquide de Fermi reste constante pour ($T \ll T_F$) alors que nous devons considérablement réduire la puissance injectée dans le circuit de résonance afin d'éviter un réchauffement par radiofréquence. Ainsi pour un liquide faiblement corrélé les signaux sont de l'ordre du nV. Le développement de notre spectromètre à froid a permis de réaliser ces mesures.

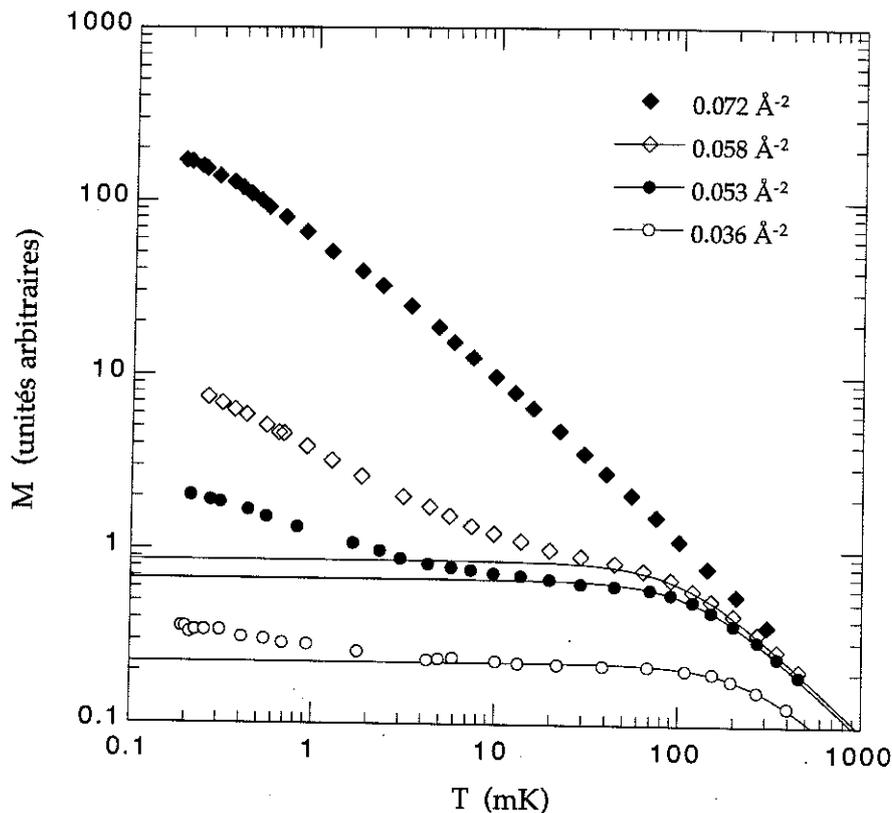


Figure 6.8: Aimantation en fonction de la température d'un film d'³He adsorbé sur une couche d'⁴He. Les densités 0.036 , 0.053 et 0.058 \AA^{-2} correspondent à un film liquide. La densité 0.072 \AA^{-2} correspond à un film solide. Les ajustements sont les mêmes que ceux montrés dans la figure 6.2.

La figure 6.8 montre l'aimantation d'un film d'³He adsorbé sur une couche ⁴He en fonction de la température. Dans ce cas l'aimantation n'est due qu'à l'³He de la deuxième couche. Les trois taux de couverture les plus bas correspondent à des films liquides. Pour la densité

0.072 \AA^{-2} , le film d' ^3He est solide. Les ajustements sont réalisés en utilisant l'expression (6.10).

En dessous d'une température d'environ 5 mK on observe une remontée de l'aimantation assez surprenante. Dans un liquide de Fermi on s'attend à ce que l'aimantation reste constante à très basse température. En fait, à faible densité et à $T = 0.2 \text{ mK}$ elle est déjà deux fois plus élevée que la valeur attendue. En augmentant la densité, cette nouvelle contribution à la susceptibilité devient de plus en plus importante.

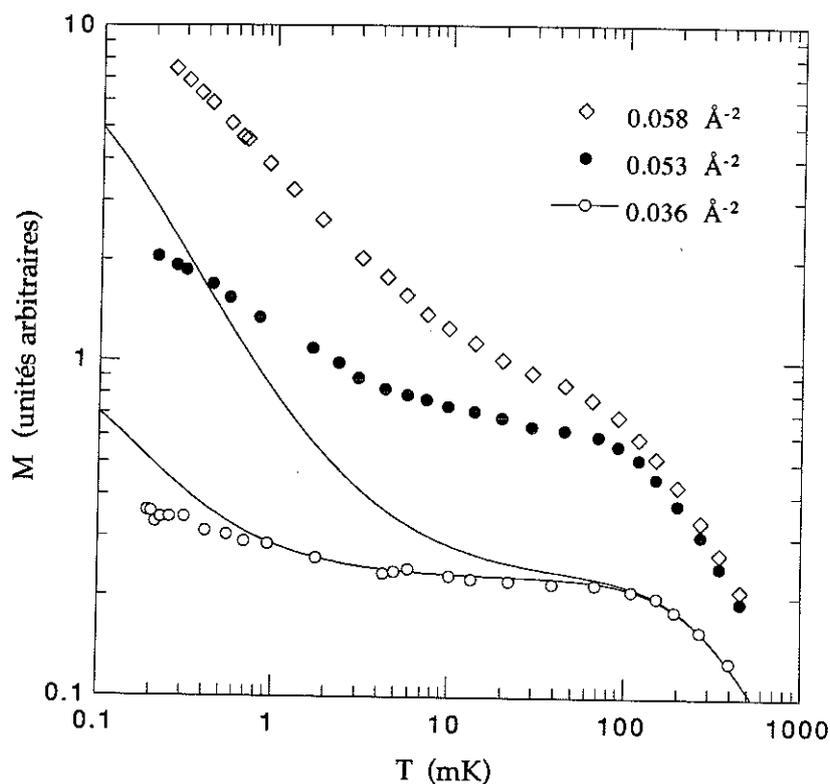


Figure 6.9: Aimantation en fonction de la température d'un film d' ^3He liquide adsorbé sur une couche d' ^4He . Les deux traits pleins montrent le signal pour le liquide si l'on suppose l'existence d'une contributions paramagnétique qui représenterait respectivement 0.1 % et 1 % du film liquide.

Nous pouvons imaginer plusieurs causes à ce phénomène. Une possibilité serait que le nombre d'atomes d' ^4He ne soit pas suffisant pour former une couche complète. Des atomes d' ^3He iraient donc en première couche. On pourrait également imaginer qu'une petite fraction des atomes d' ^3He se localise dans des sites de forte adsorption de la deuxième couche. Ceci serait similaire à l'effet qui est observé en première couche, où 2 à 4 % des atomes de la première couche sont effectivement localisés dans des défauts du substrat (voir chapitre 3 et 4). Ces deux effets devraient conduire à une contribution paramagnétique proportionnelle, dans un cas à la quantité d'atomes d' ^3He qui se trouvent en première couche, dans l'autre cas à la quantité d'atomes localisés dans les sites de forte adsorption de la deuxième couche. Nous pouvons exclure ce type d'effet. Les traits pleins tracés dans la figure 6.9 correspondent

à une contribution paramagnétique de 0.1 et 1% du film d'³He pour un taux de couverture de 0.036 \AA^{-2} . Il est clair que la remontée de l'aimantation ne peut pas être attribuée à cet effet. Par ailleurs, nous n'observons aucun décalage en fréquence pour les raies de RMN aux plus basses températures, ce qui permet d'exclure la présence d'une quantité même faible de spins fortement polarisés.

Il est intéressant de noter que Greywall a observé une anomalie (changement de pente) dans la chaleur spécifique à une température de 3.2 mK [124]. A basse densité ($\rho < 0.030 \text{ \AA}^{-2}$), le changement est assez net, tandis qu'à haute densité, cette "transition" est très arrondie (voir figure 6.11).

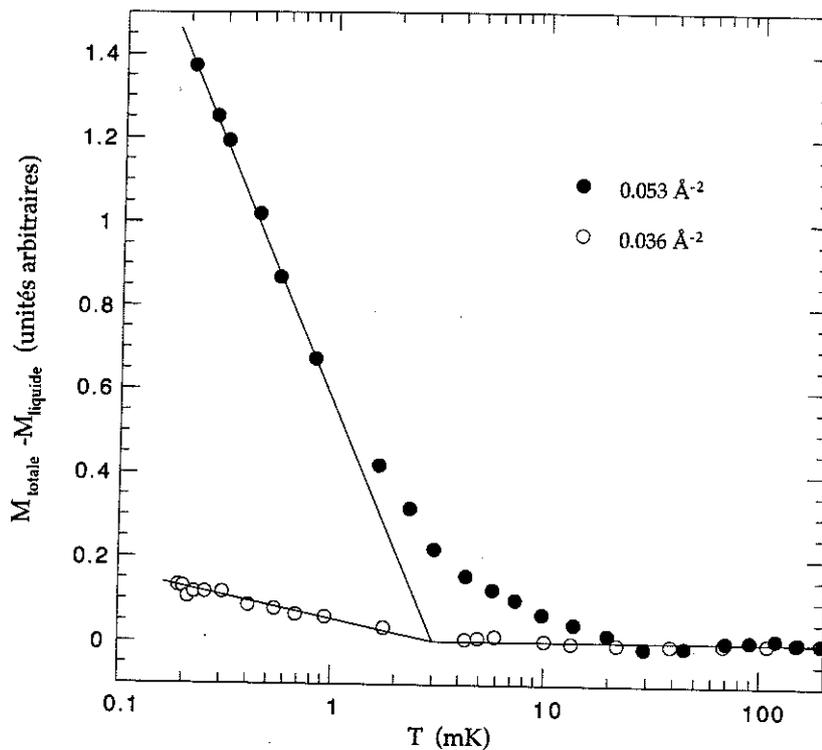


Figure 6.10: Aimantation en fonction de la température. Dans ce cas nous avons soustrait l'aimantation du liquide (voir texte).

La figure 6.10, représente l'aimantation mesurée à laquelle on soustrait l'aimantation que l'on attend pour un liquide de Fermi. Si on extrapole l'aimantation à basse et à haute température (comme Greywall l'a fait pour la chaleur spécifique), on observe également un changement de la dépendance en température à une température d'environ 3 mK. Pour une densité de 0.036 \AA^{-2} , le changement est assez net, tandis que pour un taux de couverture de 0.053 \AA^{-2} le changement est moins marqué. Il semble donc que ces deux observations soient liées au même phénomène.

Parmi les hypothèses avancées par Greywall pour expliquer ce phénomène, certaines mettaient en jeu une éventuelle superfluidité du film liquide (transition de Kosterlitz-Thouless). Cette superfluidité pourrait, d'après Chubukov et Sokol [128], être de type p, avec une température de transition estimée à quelques millikelvins. La forte augmentation de l'aimantation que nous observons à basse température correspond à un effet qualitativement différent de celui qui est observé dans le cas du superfluide massif. D'autre part, la température caractéristique semble ne pas dépendre de la densité du liquide. Pour ces raisons, il semble que l'hypothèse d'une transition superfluide soit peu probable.

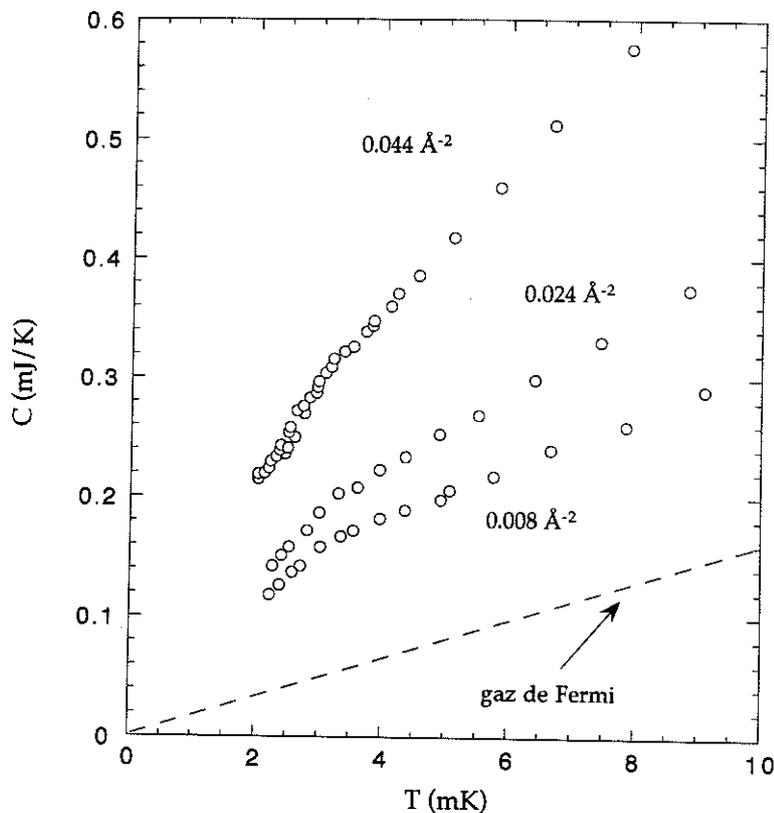


Figure 6.11: Chaleur spécifique d'un film d' ^3He liquide en deuxième couche mesurée par Greywall [124].

Une autre possibilité qui expliquerait cette augmentation de la susceptibilité pourrait être liée à un effet de désordre conduisant à une localisation faible. Cet effet donne lieu à une augmentation de la susceptibilité à basse température [125]. Il n'est pas surprenant que des effets de localisation faible apparaissent dans des films d' ^3He adsorbé. En effet, le libre parcours moyen est déterminé par la taille des plaquettes, environ 100 \AA , pour des températures inférieures à 100 mK . On se trouve donc dans la situation considérée habituellement pour les alliages métalliques, avec une valeur de $k_F l$ de l'ordre de 30. Pour un système électronique, l'augmentation de la susceptibilité est liée à la charge et au spin de l'électron.

Dans le cas d'hélium l'effet de charge n'est pas présent et l'on peut donc étudier l'effet du spin séparément. Pour le cas de deux dimensions l'augmentation de l'aimantation prédite varie plus lentement qu'une contribution en $1/T$ [126]. L'amplitude de cet effet par rapport à la susceptibilité de Pauli augmente avec la densité, ce qui s'explique dans le cadre de ce modèle par l'augmentation de la masse effective. La variation en température et l'amplitude de cette déviation prédites par la théorie de la localisation faible sont en accord qualitatif avec nos données.

6.3 Conclusion

Nous avons montré que l'³He adsorbé est un système modèle pour l'étude des Fermions corrélés. Pour ce système l'interaction peut être variée au moyen de la densité d'une manière continue et dans une large gamme.

L'étude des différents systèmes a révélé que le potentiel d'adsorption n'influence pas les propriétés magnétiques du liquide. La dépendance en température est très bien décrite par la théorie des liquides de Fermi de Dyugaev [96], avec un seul paramètre ajustable T_F^{**} . Dans ce contexte il serait également intéressant d'étudier le liquide en troisième couche où le potentiel d'adsorption est extrêmement faible.

Dans le cas de l'³He adsorbé les facteurs de renforcement que la susceptibilité peut atteindre sont deux fois plus élevés que pour l'³He liquide massif. Nos mesures dans cette gamme d'interaction permettent de montrer que l'³He adsorbé sur du graphite à des densités élevées peut être décrit par un modèle de Fermions localisés.

Il serait également intéressant d'étudier le liquide à très faible densité afin d'obtenir des informations sur l'évolution d'un gaz de Fermi idéal vers un liquide de Fermi corrélé. Aucune mesure expérimentale n'existe actuellement dans ce régime. Cette étude est en cours actuellement.

A basse température, nous observons une augmentation de l'aimantation assez surprenante. Une localisation faible semble décrire raisonnablement nos observations. Si c'est le cas, ce système ouvre des nouvelles possibilités du point de vue d'une localisation faible où la partie dépendante du spin peut être étudiée indépendamment de la contribution orbitale. Ce système mérite donc une étude détaillée de nos observations.

Finalement, nous n'avons pas observé de transition superfluide pour des températures supérieures à $200 \mu\text{K}$.

Chapitre 7

Création des vortex après une transition de phase rapide dans l' ^3He superfluide

Certaines théories cosmologiques [130, 129] prédisent que des défauts topologiques ont probablement joué un rôle important dans l'évolution de notre univers après le "Big-Bang". La formation des cordes cosmiques pendant une transition de phase accompagnées d'une brisure de symétrie est analogue à la création de vortex dans l'hélium liquide après une transition rapide de l'état normal vers l'état superfluide. Une première expérience réalisée par Hendry *et al.* [131] a mis en évidence la création de vortex dans l' ^4He liquide après une transition vers l'état superfluide, apportant une confirmation qualitative à l'hypothèse de Kibble [130] suivant laquelle des défauts topologiques sont créés lors d'une telle transition.

L'expérience présentée ici nous a permis de tester de manière quantitative ce processus en utilisant la réaction nucléaire exothermique entre un neutron et un atome d' ^3He , à une température d'environ $100\ \mu\text{K}$.

7.1 Mesures expérimentales

Cette expérience est la première qui ait été réalisée sur notre réfrigérateur à désaimantation nucléaire. La technique utilisée pour le refroidissement de l' ^3He superfluide a été développée à l'université de Lancaster et a été mise au point avec l'aide de S.N. Fisher.

Ici nous discutons en détail la partie expérimentale de cette expérience. En ce qui concerne l'analogie entre l' ^3He superfluide et la cosmologie, nous ferons référence à notre article apparu dans *Nature* qui est attaché à la fin de ce chapitre et aussi à l'article de Zurek

[133].

L'expérience a été réalisée dans la phase B de l' ^3He superfluide à une température inférieure à $0.2 T_c$. A des températures aussi basses, la densité des quasiparticules est extrêmement faible et leur libre parcours moyen est seulement limité par les parois de la cellule expérimentale.

Une thermométrie très sensible est obtenue dans le régime balistique par l'utilisation de résonateurs à fils vibrants très fins. L'amortissement du fil vibrant est déterminé par des collisions avec les quasiparticules, renforcé de l'ordre de 10^3 par des réflexions d'Andreev du contrecourant du superfluide [135]. La largeur en fréquence de la résonance Δf dans la phase B à basse température est donnée par [136]:

$$\Delta f = \Delta f_i + \gamma' \frac{8dp_F^4}{m\hbar^3} \exp(-\Delta/k_B T) \quad (7.1)$$

où Δf_i est la largeur intrinsèque du fil, m est la masse par unité de longueur du fil vibrant et Δ est le gap du superfluide. La constante γ' est de l'ordre de 0.5 [136, 137]. Pour un fil de NbTi de $5 \mu\text{m}$, la contribution intrinsèque Δf_i commence à dominer l'amortissement du fil à des températures de l'ordre de $0.11 T_c$.

La capacité calorifique du superfluide est également dominée par la contribution des quasiparticules. Pour la gamme de température concernant l'expérience ($0.1 T_c < T < 0.2 T_c$), la capacité calorifique C et l'enthalpie U sont données par

$$C = k_B \sqrt{2\pi} g(E_F) (\Delta/k_B T)^{\frac{3}{2}} \Delta \exp(-\Delta/k_B T) \left(1 + \frac{21}{16} \frac{k_B T}{\Delta}\right) \quad (7.2)$$

$$U = \sqrt{2\pi} g(E_F) (k_B T/\Delta)^{\frac{1}{2}} \Delta^2 \exp(-\Delta/k_B T) \left(1 + \frac{13}{16} \frac{k_B T}{\Delta}\right) \quad (7.3)$$

où $g(E_F)$ est la densité d'états à la surface de Fermi dans l'état normal. Pour une température de $0.15 T_c$ on obtient une valeur de $10^{-7} \frac{\text{J}}{\text{Kcm}^3}$, qui décroît exponentiellement en abaissant la température. La combinaison d'un thermomètre extrêmement sensible et une capacité calorifique très petite donne la possibilité d'utiliser ce système comme un bolomètre très sensible.

Ceci a été réalisé pour la première fois à l'université de Lancaster [138] où une sensibilité en énergie de l'ordre de 1 keV (10^{-16}J) a été atteinte. Le bolomètre utilisé pour nos expériences est montré sur la figure 7.1.

Le bolomètre se compose d'une boîte en cuivre ayant un petit orifice. A l'intérieur se situent deux fil vibrants (NbTi, 4.5 et $13 \mu\text{m}$). L'un de deux est utilisé comme chauffage ($13 \mu\text{m}$), et l'autre comme thermomètre. Le bolomètre est ensuite rempli avec de l' ^3He et refroidi à une température de l'ordre de $100 \mu\text{K}$.

Le principe de ce bolomètre est assez simple. En déposant de l'énergie (d'une source quelconque) dans celui-ci on crée des quasiparticules qui se thermalisent très rapidement à l'aide des collisions avec les parois du bolomètre. Ceci conduit à une augmentation de la température qui est mesurée par le fil vibrant. Si l'on applique de l'énergie de manière instantanée, on observe une augmentation de la température et ensuite un refroidissement du bolomètre dû au fait que les quasiparticules sortent par l'orifice du bolomètre. Le temps de refroidissement τ du bolomètre est déterminé par la géométrie du bolomètre et la vitesse moyenne de quasiparticules v_g :

$$\tau \sim 4V/Av_g \quad (7.4)$$

où V est le volume du bolomètre et A est la surface effective de l'orifice. La vitesse moyenne des quasiparticules est de l'ordre de $v_F/4$ pour les températures utilisées ici. La constante de temps τ mesurée est de l'ordre de 60 s.

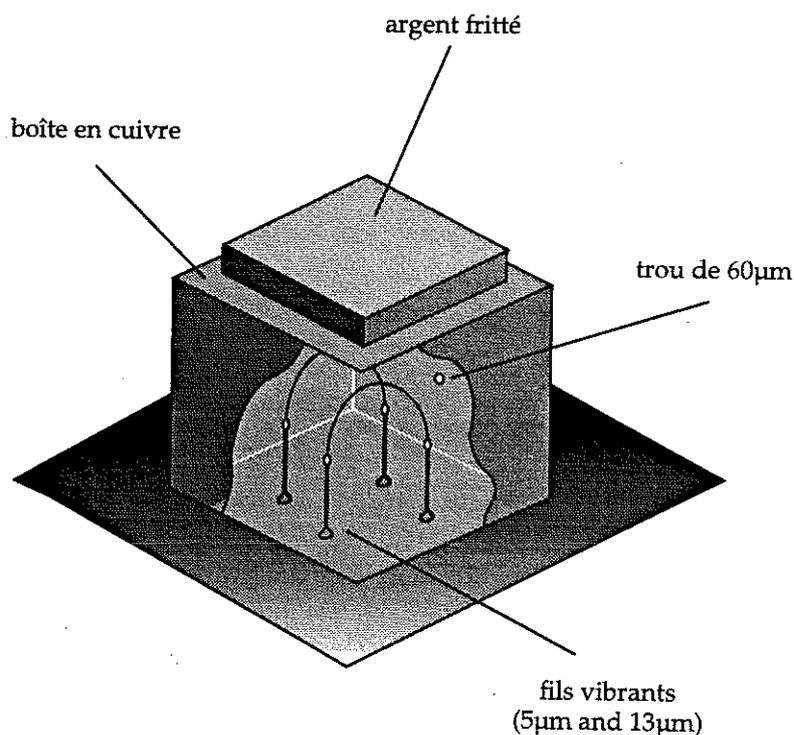


Figure 7.1: Bolomètre d' ^3He superfluide. Il se compose de 2 fils vibrants (NbTi) situés dans une boîte en cuivre. L'un des deux fils est utilisé comme thermomètre ($5\ \mu\text{m}$), et l'autre comme chauffage ($13\ \mu\text{m}$).

Le dispositif expérimental pour cette expérience est celui décrit dans la section 2.1.3 (voir aussi la figure 2.5). Des fils vibrants à l'extérieur du bolomètre ont été utilisés pour la mesure de la température pendant le prérefroidissement (fil de Ta d'un diamètre de $0.25\ \text{mm}$) et après la désaimantation (fil de NbTi de 4.5 et $13\ \mu\text{m}$). La température minimale mesurée à un champ final de $70\ \text{mT}$ était d'environ $100\ \mu\text{K}$. Ceci est en fait une limite supérieure, car

à cette température la largeur intrinsèque de la résonance du fil vibrant est dominante. La température la plus basse atteinte dans le bolomètre était de l'ordre de $0.15 T_c$ ($140 \mu\text{K}$ à 0 bar).

Après une désaimantation, la température a été mesurée de manière continue à l'intérieur du bolomètre avec le thermomètre à fil vibrant. On applique un courant alternatif avec une amplitude suffisamment petite afin d'éviter un échauffement du système. La tension V_0 générée par le fil vibrant (proportionnelle à sa vitesse) est d'abord amplifiée par un transformateur à froid et ensuite par un amplificateur à chaud. Puis le signal est mesuré par une détection synchrone.

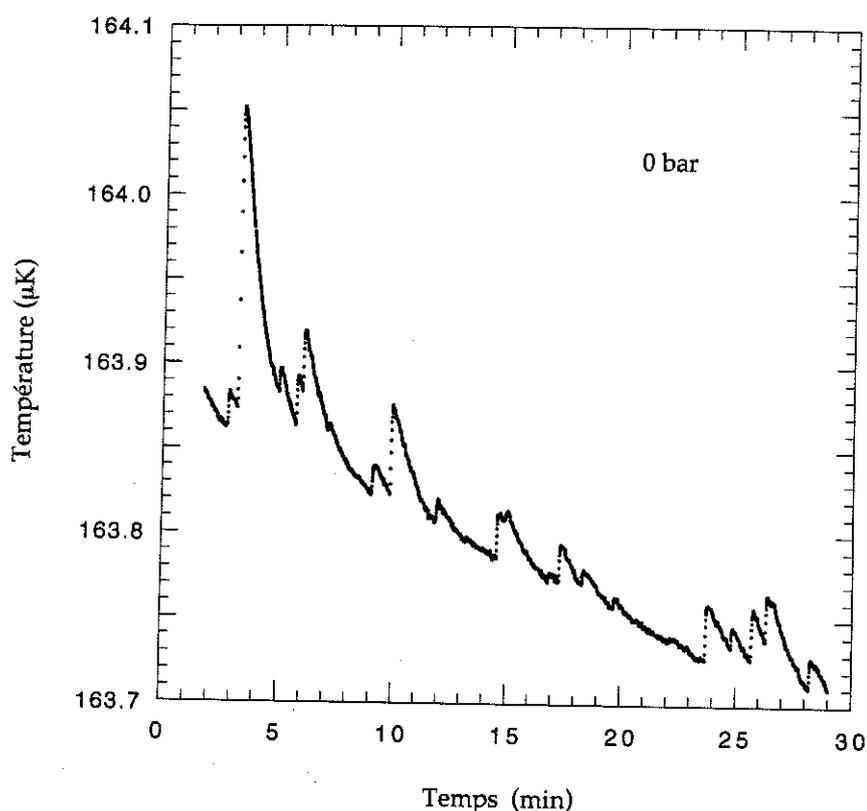


Figure 7.2: Température mesurée par un fil vibrant en fonction du temps pour une pression $p = 0$ bar. Les événements observés sont dus au rayonnement cosmique.

La figure 7.2 montre un spectre typique où nous représentons la température mesurée par le fil vibrant en fonction du temps. On observe clairement plusieurs événements qui sont caractérisés par une augmentation très rapide de la température et ensuite par un refroidissement très lent avec la constante de temps τ du bolomètre. Ces événements sont dus au rayonnement cosmique (muons et gammas). Des tels événements ont été étudiés récemment à l'université de Lancaster.

L'étalonnage en énergie du bolomètre est effectué de la façon suivante: une quantité d'énergie connue est déposée dans le bolomètre pendant une période courte par rapport à la constante de temps τ . Ceci est réalisé en appliquant un courant alternatif I dans le fil de chauffage (fil vibrant de $13 \mu\text{m}$) à sa fréquence de résonance pendant un temps de l'ordre de 2 secondes. L'énergie déposée est $E = \int IV dt$ où V est la tension (en phase avec le courant) générée par le fil vibrant. La réponse du thermomètre à fil vibrant (fil vibrant de $4.5 \mu\text{m}$) est enregistrée pendant se processus. Cet étalonnage est ensuite répété plusieurs fois.

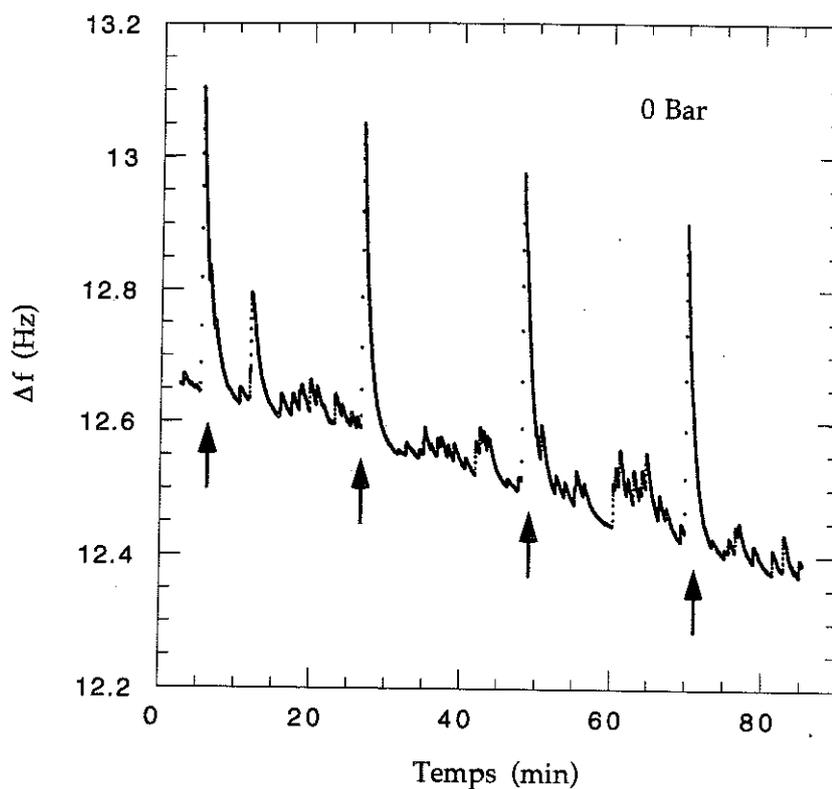


Figure 7.3: Amortissement du fil vibrant en fonction du temps pendant une séquence de quatre pulses d'étalonnage de 1340 keV (indiqués par des flèches). Plusieurs événements dus au rayonnement cosmique sont également observés.

La figure 7.3 montre un tel étalonnage. On observe clairement la réponse du thermomètre à fil vibrant à des pulses de chaleur appliqués avec le chauffage. On observe également des événements plus petits dus au rayonnement thermique.

La réponse du thermomètre à un pulse d'énergie E est bien décrite par la formule:

$$\Delta f = H (1 - \exp(-\tau_r)) \exp(-\tau) \quad (7.5)$$

où τ_r est le temps de croissance et H est la "hauteur d'événement" à $\tau_r = 0$. Cependant, nous obtenons un meilleur ajustement en simulant la réponse du thermomètre en tenant

compte de la longueur de pulse d'étalonnage et en utilisant les constantes de temps de la détection synchrone et du fil vibrant. La routine d'ajustement est effectuée par un ordinateur qui cherche chaque événement et ajuste ensuite la hauteur H . Cet ajustement, montré sur la figure 7.4 pour un pulse d'étalonnage de 740 keV, est de très bonne qualité. En fait, plusieurs événements dus au rayonnement cosmique ont été également ajustés par le programme.

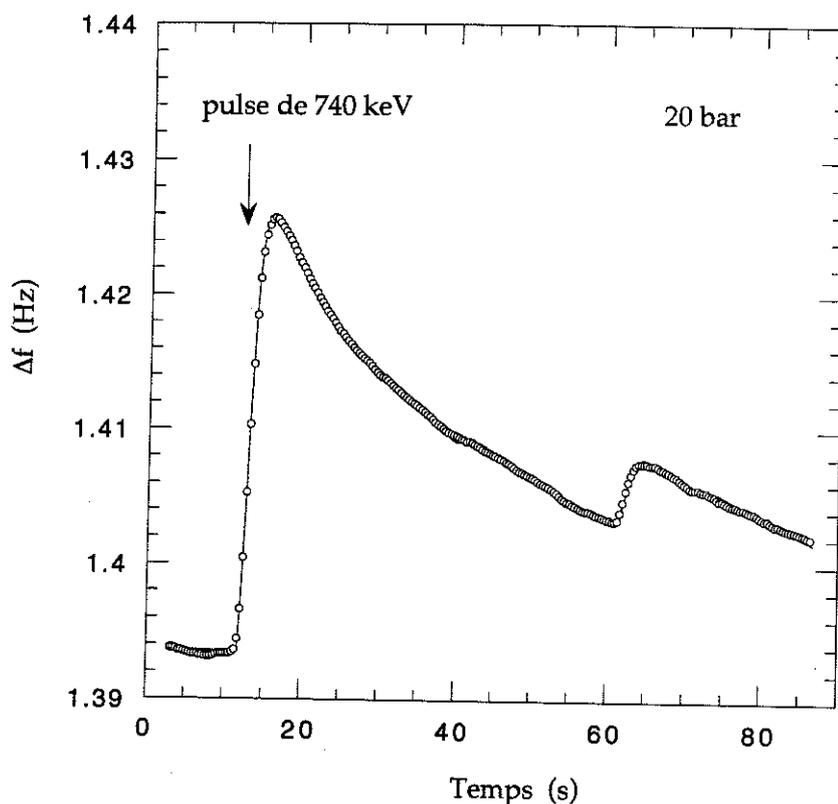


Figure 7.4: Ajustement d'un pulse d'étalonnage d'une énergie de 740 keV à une pression de 20 bar.

Les résultats des différents étalonnages effectués sont montrés sur la figure 7.5. On observe que la hauteur d'événement varie linéairement en fonction de l'énergie du pulse appliqué. Ceci est une conséquence du fait que l'amortissement du fil ainsi que l'enthalpie de l' ^3He varient presque linéairement en fonction de la densité des quasiparticules. Cet étalonnage nous permet de déterminer l'énergie déposé par une source quelconque.

Le dépôt d'énergie peut être obtenu par l'irradiation de l' ^3He superfluide avec des neutrons thermiques à l'aide d'une source de neutrons (AmBe). Le neutron interagit avec le noyau d' ^3He par la réaction nucléaire: $n + ^3\text{He} \rightarrow ^3\text{H} + p + 764 \text{ keV}$. L'énergie libérée par ce processus peut être mesurée par le thermomètre à fil vibrant.

La figure 7.6 montre le nombre d'événements en fonction de l'énergie pour différentes pressions. Ce spectre a été obtenu en ajustant tous les événements enregistrés pendant une

période d'environ 7 heures. On observe un maximum qui est attribué à l'interaction nucléaire entre les neutrons et les atomes d' ^3He .

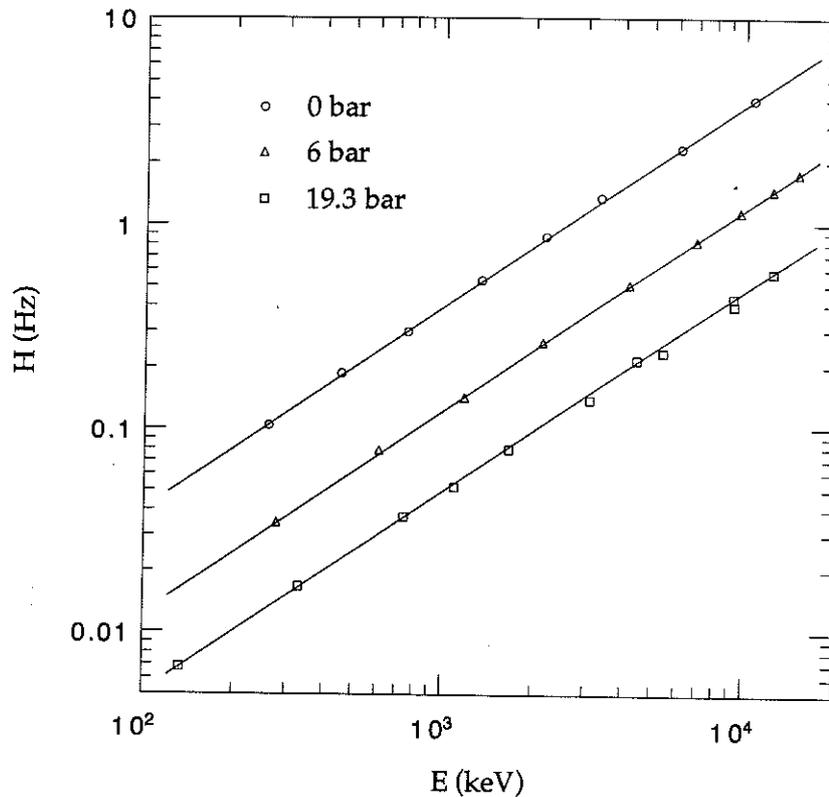


Figure 7.5: Hauteur d'événement H du thermomètre à fil vibrant en fonction de l'énergie des pulses d'étalonnage pour différentes pressions.

On observe clairement que le pic apparaît à une énergie (hauteur d'événement) substantiellement plus petite que la valeur de 764 keV. Par conséquent, l'énergie déposée n'est pas entièrement convertie dans des excitations thermiques (quasiparticules). Cette différence d'énergie peut être attribuée à deux effets. Premièrement, de l'énergie peut être évacuée par des photons ultraviolets: cet effet a été mesuré pour l' ^4He liquide et on observe qu'environ 6-8 % de l'énergie totale déposée est évacuée par ce processus. Une deuxième possibilité est qu'une partie de l'énergie soit stockée par des défauts (vortex) dans le superfluide. En effet, une expérience complémentaire réalisée à Helsinki montre que des vortex sont formés après une réaction nucléaire entre un neutron et un atome d' ^3He .

En soustrayant les pertes d'énergie par des photons ultraviolets, nous obtenons encore une différence en énergie de respectivement 60, 70, et 125 keV à des pressions de 0, 6 et 19.4 bar par rapport à la valeur initial de 764 keV. Cette énergie est donc retenue par des vortex.

Le processus de création des vortex peut être imaginé de la façon suivante: l'énergie déposée par la réaction nucléaire $n + {}^3\text{He} \rightarrow {}^3\text{H} + p$ est initialement partagée entre le proton et le tritium. Puis elle est convertie en un nuage de quasiparticules et d'ions d' ${}^3\text{He}$ qui fournissent suffisamment de chaleur pour chauffer un petit volume au-dessus de la transition superfluide. Ce volume d' ${}^3\text{He}$ liquide normal refroidit ensuite très rapidement, atteignant la température de la transition superfluide. Des régions superfluides sont alors nucléées de manière indépendante avec un paramètre d'ordre différent. Quand ces régions superfluides se joignent un changement de 2π du paramètre d'ordre est observé (voir la figure 1 dans l'article joint à ce chapitre).

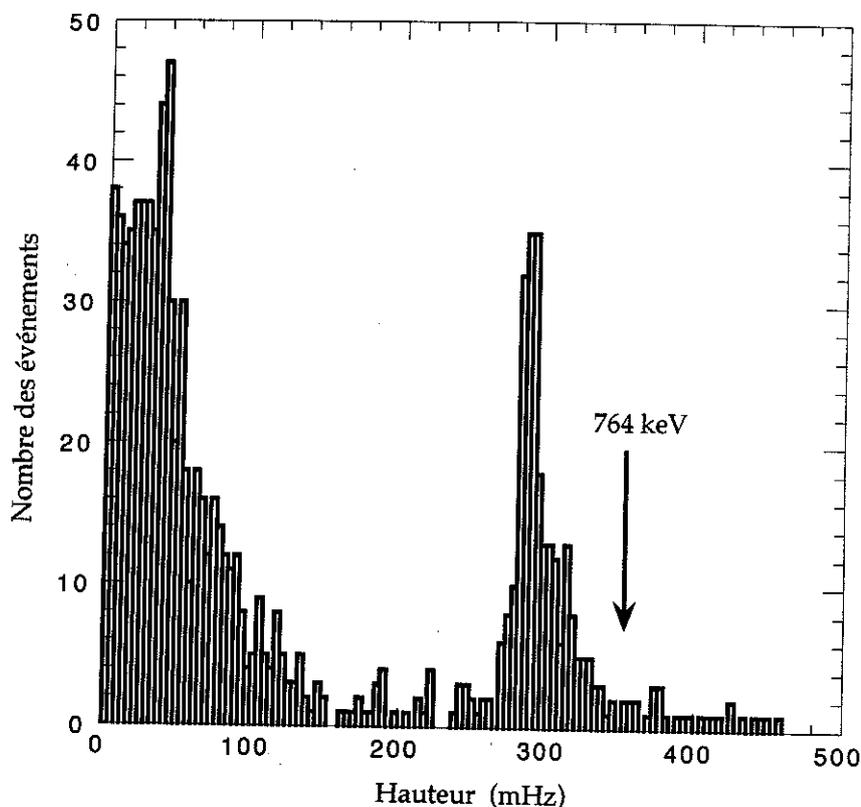


Figure 7.6: Nombre d'événements en fonction de l'énergie (hauteur d'événement) obtenus pour une irradiation de ${}^3\text{He}$ avec une source de neutrons (AmBe) pour $p = 0$ bar.

En utilisant un modèle simple d'un processus de diffusion nous pouvons estimer une valeur pour la séparation entre les vortex β . Nous obtenons pour trois pressions différentes des valeurs de β/ξ_0 de l'ordre de 8, où ξ_0 est la longueur de corrélation. D'après le modèle de Zurek, ces valeurs varient entre 4 et 7 pour les différentes pressions, ce qui est en très bon accord avec nos mesures.

7.2 Conclusion

Ces résultats confirment qu'une transition de phase rapide vers l' ^3He superfluide crée une densité de vortex en accord avec le modèle de Zurek du mécanisme de Kibble. L' ^3He superfluide constitue donc un modèle expérimental pour l'étude des défauts topologiques créés après une transition de phase rapide.

LETTERS TO NATURE

Laboratory simulation of cosmic string formation in the early Universe using superfluid ^3He

C. Bäuerle*, Yu. M. Bunkov*, S. N. Fisher*, H. Godfrin* & G. R. Pickett†

* Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, Centre National de la Recherche Scientifique, BP 166, 38042 Grenoble Cedex 9, France
† School of Physics and Chemistry, Lancaster University, Lancaster LA1 4YB, UK

TOPOLOGICAL defects in the geometry of space-time (such as cosmic strings) may have played an important role in the evolution of the early Universe, by supplying initial density fluctuations which seeded the clusters of galaxies that we see today¹. The formation of cosmic strings during a symmetry-breaking phase transition shortly after the Big Bang is analogous to vortex creation in liquid helium following a rapid transition into the superfluid state; the underlying physics of this cosmological defect-forming process (known as the Kibble mechanism¹) should therefore be accessible to experimental study. Superfluid vortices have been observed in ^4He following rapid quenching to the superfluid state², lending qualitative support to Kibble's contention that topological defects are generated by such phase transitions. Here we quantify this process by using an exothermic neutron-induced nuclear reaction to heat small volumes of superfluid ^3He above the superfluid transition temperature, and then measuring the deficit in energy released as these regions of normal liquid pass back into the superfluid state. By ascribing this deficit to the formation of a tangle of vortices, we are able to infer the resulting vortex density; we find that this agrees very well with the predictions of Zurek's modification³ of the original Kibble mechanism¹.

In comparison with superfluid ^4He and liquid crystals, superfluid ^3He provides the ideal system for modelling the formation and evolution of topological defects remaining from the cascade of symmetry-breaking phase transitions which the Universe is believed to have undergone shortly after the Big Bang. In superfluid ^4He only gauge symmetry is broken, and in liquid crystals only orbital rotation symmetry is broken. However, owing to the spin and orbital angular momentum properties, ^3He shows a superposition of broken spin rotation, broken orbital rotation and broken gauge symmetries ($\text{SO}3^s \times \text{SO}3^l \times \text{U}(1)$) which provide a much closer approximation to the superposition of broken rotational and gauge symmetries used to describe the Universe. In fact the analogies between the structure of the Universe and of superfluid ^3He go further. Not only is the symmetry of the coherent quantum state of the superfluid analogous to the quantum vacuum of the Universe, but the excitations and collective modes of the superfluid have analogies with the fundamental particles bosons and fermions (ref. 4). Finally, various types of linear defects (vortices), point defects (monopoles) and textures may be generated in superfluid ^3He , in analogy with the various types of defects proposed for the structure of Universe.

The Kibble mechanism for vortex creation during phase transitions¹ is illustrated schematically for our experiment in Fig. 1. After a sudden local heating, the ^3He recools through the transition to the superfluid state. During this process, separate superfluid regions are independently nucleated with random orientations of the order parameter in each domain. As the domains grow and make contact with their neighbours, the resulting superfluid cannot be uniform. The subsequent order-parameter 'glass' forces a distribution of topological defects leading to a tangle of quantized vortex lines.

The size of the initial domains depends strongly on the rapidity with which the transition is traversed. According to Zurek³ the distance between the ensuing vortices β is given approximately by $\beta = \xi_0(\tau_Q/\tau_0)^{1/4}$, where ξ_0 is the coherence length at zero temperature, τ_0 , the coherence length divided by the Fermi velocity, (ξ_0/v_F) , is the characteristic time of the superfluid, and τ_Q is the characteristic time for cooling through the phase transition.

Superfluid ^3He has the further advantage as the working substance in that it allows a very precise localized crossing of the phase transition to be generated by nuclear reaction⁵, which avoids the more violent global processes used for earlier experiments on ^4He and liquid crystals^{2,6}. The ^3He nucleus has a very high cross-section for neutrons via the process: $n + ^3\text{He} \rightarrow ^3\text{H} + p$. This process also liberates a precise energy of 764 keV which is initially shared by the product proton and tritium nucleus. The mean free path of the products in the liquid is limited to around $30\ \mu\text{m}$ as the kinetic energy is rapidly thermalized with the creation of a cloud of quasiparticle excitations and excited ^3He atoms providing enough heat to warm a small volume of the liquid to above the superfluid transition. The volume of normal liquid ^3He then rapidly recools on a timescale of $1\ \mu\text{s}$ or less.

In a companion experiment⁷ Ruutu *et al.* have shown directly that vortices are indeed created in superfluid ^3He by this process. They observe unambiguous vortex nucleation triggered by neutron irradiation in a rotating experiment at higher temperatures. In the present experiment we measure how much of the energy released is retained in the liquid in the form of a vortex tangle. As we know the energy of a vortex per unit length, we can go further and make a quantitative calculation of the vortex density remaining which we can compare with Zurek's prediction.

The present measurements are made close to the lower limit to

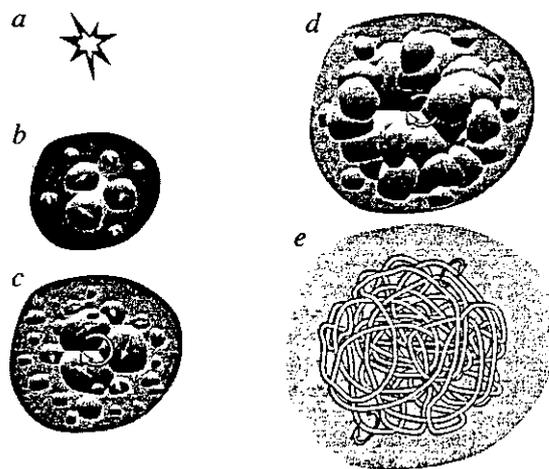


FIG. 1 Schematic view of the creation of a tangle of linear singularities by the nucleation of independent ordered regions as a system passes through a phase transition. In the superfluid ^3He context; at a, a neutron has struck a ^3He nucleus initiating the process $n + ^3\text{He} \rightarrow ^3\text{H} + p$, liberating 764 keV of energy and creating a small region of very high temperature in the liquid. At a later time b the hot region has expanded and cooled to near the transition temperature. Small regions of superfluid are independently nucleated each having a different value of the order parameter, as shown by the small arrows. At c the three central ordered regions now touch. Although the order parameter may bend to accommodate the boundaries, a full 2π change around the triple contact point remains. This is a vortex. At d, many more regions have been nucleated and overlap, and along the grain boundaries a whole tangle of vortex lines is created. Finally, at e the hot bubble has cooled entirely through the transition and only the tangle of vortices remains.

LETTERS TO NATURE

which superfluid ^3He can be cooled (around $0.1 T_c$, where T_c is the superfluid transition temperature). At such temperatures the few remaining thermal quasiparticles form an extremely dilute non-interacting gas. It is the mutual friction provided by the quasiparticles which mediates the evolution and gradual disappearance of vortices. Therefore, under our conditions, after a neutron event, the local high density of quasiparticles falls very rapidly to the vanishingly small background density. Thus the vortices are only exposed to appreciable mutual friction for a very short time and we estimate that almost all the initial vortex density should survive.

The experiment is made at temperatures down to $160 \mu\text{K}$ in the Grenoble nuclear refrigerator. The detector is a Lancaster-style quasiparticle detector⁸, in the form of a 0.15 cm^3 copper-walled enclosure containing superfluid ^3He , connected via a $60\text{-}\mu\text{m}$ hole to a larger volume of superfluid at a temperature below $100 \mu\text{K}$. Energy deposited within the enclosure warms the superfluid by the creation of quasiparticle excitations. The resulting temperature rise is detected by a sensitive vibrating-wire resonator. The temperature of the enclosure then recovers as quasiparticles escape through the small hole over a time determined by the geometry. A particle scattering event inside the detector is observed on the temperature record as a sharp temperature rise followed by a slow recovery over about 60 s.

The energy sensitivity of the detector is calibrated with a second vibrating-wire resonator which serves as a heater (which, when intensely oscillated, creates quasiparticle-quasihole pairs in the superfluid). We can simulate a scattering event by exciting the 'heater' resonator to introduce a measured quantity of energy during a time which is short compared to the detector recovery time, allowing a rather accurate energy calibration of the detector.

An external AmBe (americium-beryllium) neutron source irradiates the cell with a very low flux of neutrons. The temperature trace is recorded, and the events analysed and presented as a spectrum of counts versus energy. The whole procedure is repeated at three different pressures for the superfluid (because the superfluid properties, such as gap and coherence length, are pressure-dependent). We observe a clear peak in the energy spectra associated with the $n + ^3\text{He} \rightarrow p + ^3\text{H} + 764 \text{ keV}$ reaction, as shown in Fig. 2. Significantly, however, the peak occurs at an energy substantially below the canonical 764 keV. Clearly not all the energy deposited in the detector by the reaction appears as thermal excitations.

Apart from appearing as thermal excitations, the deposited energy can take two other paths. First, the energy can appear as ultraviolet photons. It is well known that collision events in liquid ^4He result in scintillation. The ^4He ions produced after the collision form dimers which decay by a cascade of processes ultimately leading to the emission of ultraviolet photons to which helium is transparent. These photons are absorbed in the surrounding walls and their energy is prevented from returning to the liquid helium by the large thermal boundary resistance. The ultraviolet photon process⁹ accounts for 6–8% of the total energy deposition in ^4He and is not likely to be at all sensitive to which isotope is involved. The second path involves the creation of defects in the superfluid, of which only vortices can acquire a significant energy.

As we can be certain that the ultraviolet losses are very insensitive to pressure, we can subtract the ultraviolet component from the measured energy missing from the initial 764 keV. We find that the remaining energy still unaccounted for is 60, 70 and 125 keV at the three pressures measured, 0, 6 and 19.4 bar, respectively. We believe that this remaining energy deficit has been retained in the liquid by the creation of vortices.

To calculate the initial separation of the vortices, β , we need to know, first, the volume of liquid V heated above the transition, second, the energy per unit length of the vortex, and third, for comparison with Zurek's predictions, we also need an estimate of the time for cooling through the transition, τ_Q . The energy per unit length of a vortex is approximately $(\rho/4\pi)(h/2m_3)^2 \ln(\beta/\xi_0)$ which

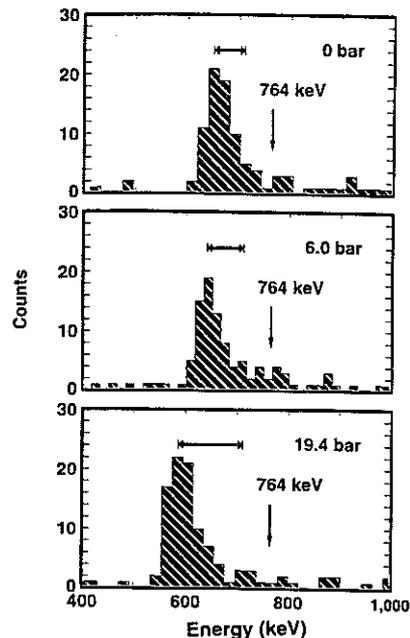


FIG. 2 The energy spectra in counts versus energy deposited into the quasiparticle system of superfluid ^3He under neutron irradiation at three pressures of the liquid. The peak from the neutron-capture process $n + ^3\text{He} \rightarrow ^3\text{H} + p$ is clearly visible. This reaction is exothermic, liberating 764 keV of energy. Approximately 7% of this energy is released as ultraviolet photons which are lost from the helium. However, as shown in the figure by the double-headed arrow, a significant fraction of energy is 'missing', a quantity which increases with pressure. It is this energy, which does not produce thermal excitations, that we assume remains in the liquid in the form of a vortex tangle.

is about 0.5 keV mm^{-1} at 0 bar. The quantities V and τ_Q are sensitive to the details of the process whereby the kinetic energy of the released proton and tritium nucleus is converted to excitations of the fluid. This process is very poorly understood. However, we can make estimates with the following very simple model: the energy E is assumed to be deposited at a point in the fluid, which subsequently cools by thermal diffusion with the diffusion constant D taken to be equal to that of the ^3He liquid at the superfluid transition temperature T_c . These assumptions yield a spherical volume of normal fluid with radius $R \approx 0.4(E/CT_c)^{1/3}$, where C is the liquid heat capacity just above T_c and $E = 710 \text{ keV}$ is the deposited energy after subtraction of the ultraviolet losses. The characteristic cooling time is then given by $\tau_Q \approx R^2/4D$. This yields normal volumes with radii of 25, 16 and $11 \mu\text{m}$ and cooling times of 0.23, 0.46 and $1.1 \mu\text{s}$ for the measured 0, 6 and 19.4 bar pressures, respectively.

The coherence length in superfluid ^3He for the three pressures considered here is 770, 390 and 210 \AA . Our measured value of the ratio β/ξ_0 , (the separation of the vortices in coherence-length units) is thus found to have a pressure independent value of about 8. We can compare this ratio with the appropriate value of the equivalent parameter $(\tau_Q/\tau_0)^{1/4}$ in the Zurek model. Using the simple model of diffusion cooling for the hot volume considered above, we find a value of this parameter varying from 4 to 7 over the pressure range investigated.

Given the simplicity of the assumptions and approximations used, the agreement between our measured values of β/ξ_0 and the corresponding Zurek parameter, $(\tau_Q/\tau_0)^{1/4}$, is surprisingly close. Because the whole process of the conversion of the initial reaction energy into thermal energy is at present poorly understood, it is very difficult to make an accurate estimate of the errors involved

LETTERS TO NATURE

in the simple model we have used for the cooling process. Furthermore, the prediction $\beta/\xi_0 = (\tau_Q/\tau_0)^{1/4}$ from the Zurek model is only qualitative.

This close agreement, however, does confirm that a fast cooling through the superfluid transition indeed creates a residual density of vortices as foreseen in Zurek's model of the Kibble mechanism. That the observed vortices are further spaced than the theory suggests may simply be a reflection of the approximations made both in deducing the value from the data and estimating the equivalent number from Zurek's expression. Why the observed separation, β/ξ_0 , is apparently independent of pressure is not clear at present. Finally, if indeed analogous topological objects have once existed or even survive in the Universe, then we have taken the first tentative steps with superfluid ^3He towards the quantitative modelling of their formation. \square

Received 15 January; accepted by 4 June 1996.

1. Kibble, T. W. B. *J. Phys. A* **9**, 1387–1398 (1976).
2. Hendry, P. C., Lawson, N. S., Lee, R. A. M., McClintock, P. V. E. & Williams, C. H. D. *Nature* **368**, 315–317 (1994).
3. Zurek, W. H. *Nature* **317**, 505–508 (1985).
4. Volovik, G. E. *Exotic Properties of Superfluid ^3He* (World Scientific, Singapore, 1992).
5. Bradley, D. I. et al. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1887–1891 (1995).
6. Chuang, I., Dumer, R., Turok, N. & Yurke, B. *Science* **251**, 1336–1342 (1991).
7. Ruutu, V. M. H. et al. *Nature* **352**, 334–336 (1986).
8. Fisher, S. N., Guénault, A. M., Kennedy, C. J. & Pickett, G. R. *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1073–1076 (1992).
9. Adams, J. S. et al. *Phys. Lett. B* **341**, 431–434 (1995).

ACKNOWLEDGEMENTS. We thank G. Volovik for discussions, and J.-L. Bret, J. Chaussy and L. Puech for their assistance with the electronics and computer programming. This work was supported in part by EtavDRET.

CORRESPONDENCE should be addressed to Y.M.B. (e-mail: bunkov@labs.polycnrs-gre.fr).

Chapitre 8

Conclusions et perspectives

Au cours de ce travail de thèse nous avons construit un cryostat à désaimantation nucléaire. Celui-ci nous a permis de refroidir 2 moles d' ^3He superfluide à une température inférieure à $100\ \mu\text{K}$, ce qui représente la meilleure performance au niveau mondial.

Nous avons développé des thermomètres permettant la mesure de la température sur une très large gamme avec une précision de l'ordre du pour cent. En particulier nous avons montré que l' ^3He adsorbé sur du graphite constitue un excellent thermomètre adapté à une gamme de température entre 0.1 et 100 mK. L'utilisation à fort champ (quelques centaines de mT) de ce thermomètre permet une mesure absolue de la température.

Un dispositif expérimental permettant la mesure par RMN de l'aimantation de l' ^3He adsorbé sur du graphite dans une gamme de température entre 0.2 mK et 1 K a été mis au point .

Plusieurs cellules expérimentales pour l'étude de l' ^3He adsorbé sur du graphite ont été construites. La conception des cellules antérieures a été considérablement améliorée. Ceci nous a permis d'étudier des films d' ^3He adsorbé jusqu'à des températures de l'ordre de $200\ \mu\text{K}$.

Nous avons développé un spectromètre à RMN continue en utilisant un préamplificateur à basse température (4.2 K). Ce système de mesure est extrêmement performant: le bruit en tension est de l'ordre de $2\ \text{nV}/\sqrt{\text{Hz}}$ et le bruit en courant est inférieur à $6\ \text{fA}/\sqrt{\text{Hz}}$, ce qui représente une amélioration en signal sur bruit de l'ordre de 10 par rapport à notre ancien spectromètre, qui était déjà très performant. Ce système nous permet également de supprimer le problème d'instabilité dû à la ligne coaxiale entre le préamplificateur à chaud et la cellule de RMN que l'on rencontre habituellement avec les systèmes classiques.

Nous avons effectué plusieurs expériences afin d'établir une échelle de couverture commensurable. Nos mesures montrent que les différentes méthodes pour la détermination d'une échelle de taux de couverture commensurable sont en très bon accord (incertitude en densité inférieure à 1%). Ce fait suggère que les densités déterminées par Greywall doivent être corrigées de 4%. D'autre part, les mesures neutroniques nous permettent de tenir compte de l'augmentation de la surface effective du substrat en fonction du taux de couverture. Ces résultats permettent une analyse détaillée et quantitative de l'ensemble des mesures réalisées jusqu'à présent sur les systèmes d' ^3He adsorbé sur du graphite.

Des mesures systématiques ont été réalisées pour la deuxième couche d' ^3He adsorbé sur du graphite. Elles représentent l'étude la plus détaillée dans cette région du diagramme de phases effectuée jusqu'à présent. Nos mesures de haute précision avec une très fine grille de taux de couverture déterminent le diagramme de phases avec beaucoup de précision.

Nous avons pu montrer que la région de coexistence liquide-solide en deuxième couche est caractérisée par une dépendance linéaire de la quantité du solide (ou du liquide) en fonction de la densité totale du film et par l'invariance des propriétés magnétiques du liquide et du solide. Nos mesures montrent que la phase $4/7^{\text{ème}}$ est stable dans une certaine plage de densités. Par contre, nos résultats infirment l'hypothèse de l'existence d'une phase $2/3$, avancée par Greywall.

Nous présentons pour la première fois des résultats pour le solide antiferromagnétique dans un régime où la température est inférieure à l'énergie d'échange. Nos mesures montrent que l'aimantation ne peut pas être décrite par une série HTAF pour des températures au-dessous de 2 mK. Des calculs de Monte Carlo Quantique pour la deuxième couche sont attendus afin de décider si un tel comportement peut être décrit par le modèle d'échange multiple.

Grâce à la précision et la fine grille de nos mesures nous pouvons écarter les deux modèles proposés pour expliquer l'évolution du magnétisme des films d' ^3He adsorbé, lorsque l'aimantation bascule très rapidement d'un comportement antiferromagnétique vers un comportement ferromagnétique. Des calculs des fréquences d'échange en fonction de la densité devraient être effectués dans le cadre du modèle d'échange multiple afin de vérifier, si l'évolution des propriétés magnétiques des films d' ^3He peut être expliquée par un échange dans la deuxième couche, où si l'échange indirect *via* le liquide a une influence importante sur le magnétisme de la deuxième couche.

Nous avons effectué des mesures de l'aimantation du solide ferromagnétique en fonction du champ magnétique à une densité correspondant à l'anomalie ferromagnétique. L'utilisation d'un nouveau substrat de graphite exfolié (Papyex) nous a permis d'étudier l'influence des effets de taille sur l'aimantation. Nos résultats sont bien décrits par la théorie des ondes de spin de Kopietz *et al.*. Ces mesures constituent une première exploration du régime où le

gap du spectre des ondes de spin est dominé par le champ magnétique.

Grâce à notre spectromètre à RMN extrêmement performant nous avons effectué les premières mesures des propriétés magnétiques d'un film d' ^3He liquide à ultra basse température ($T < 1 \text{ mK}$). Nous observons des liquides de Fermi bidimensionnels extrêmement corrélés. Des facteurs de renforcement de 45 sont obtenus, soit 2 fois plus grands que pour l' ^3He liquide massif. Nous montrons pour la première fois que l' ^3He liquide à deux dimensions à des densités élevées est décrit semi-quantitativement par le modèle des Fermions presque localisés. Il serait souhaitable de disposer de modèles théoriques fournissant des prédictions quantitatives pour les propriétés thermodynamiques dans une grande plage de densités.

Une propriété unique de l' ^3He liquide adsorbé sur du graphite est le fait que l'évolution du domaine sans interaction vers le domaine avec des interactions fortes peut être explorée expérimentalement. Aucune mesure expérimentale n'existe jusqu'à présent dans ce régime, ce qui est dû à la difficulté expérimentale. Le développement de notre spectromètre de RMN nous donne la possibilité d'étudier le liquide dans ce régime de transition.

L'exploration des propriétés magnétiques des films liquides à ultra basses températures nous a permis de mettre en évidence l'existence d'une augmentation de la susceptibilité par rapport à la susceptibilité de Pauli. Cet effet pourrait correspondre à la localisation faible d'Anderson induite par le potentiel aléatoire dû au substrat. Un accord qualitatif est obtenu avec le modèle de Altshuler *et al.* [126].

Finalement, nous avons réalisé une expérience sur l' ^3He superfluide massif qui permet de tester expérimentalement la théorie de Kibble sur la création des cordes cosmiques lors de transitions de phase rapides. Nous avons observé que l'énergie déposée par une réaction nucléaire $n + ^3\text{He}$ n'est pas convertie entièrement en quasiparticules. La mesure du déficit en énergie peut être expliquée par la création de défauts topologiques (vortex) pendant une transition rapide entre l' ^3He normal et l' ^3He superfluide. En utilisant un modèle simple pour le processus refroidissement, nous obtenons des valeurs pour la densité des vortex qui sont en bon accord avec les prédictions de Zurek pour la création de cordes cosmiques par le mécanisme de Kibble. Ces mesures ont permis de tester pour la première fois de manière quantitative le mécanisme proposé théoriquement pour la création de cordes cosmiques dans l'univers primordial.

Annexe A

Taux de couverture

A.1 Expériences sur les films $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$

Les taux de couverture pour les expériences réalisées sur les films d' ^3He adsorbé sur une couche d' ^4He sont résumés ci-dessous. La cellule C₅ a été utilisée pour cette expérience. La phase commensurable correspond à un volume de 3.1605 cm³STP.

#	^4He (cm ³ STP)	ρ_{Grenoble} (\AA^{-2})	^3He (cm ³ STP)	ρ_{Grenoble} (\AA^{-2})
1			4.310	0.0868
2			4.693	0.0945
3	0.2905	0.0059	6.569	0.1323
4	0.1574	0.0032	0.8758	0.0201
5	6.129	0.1234	1.771	0.0357
6	6.224	0.1254	2.614	0.0526
7	6.169	0.1243	2.881	0.0580
8	6.224	0.1254	3.138	0.0632
9	6.224	0.1254	3.556	0.0716

A.2 Expériences sur les films d' ^3He pur

Ici sont résumés les taux de couverture qui ont été mesurés pour l'étude des films d' ^3He pur. Le cellule C₁ a été utilisée pour cette expérience. La phase commensurable correspond à un volume de 11.17 cm³STP.

#	V_{ads} (ccSTP)	$\rho_{Grenoble}$ (\AA^{-2})	$\rho_{Greywall}$ (\AA^{-2})
1	16.313	0.09295	0.0892
2	16.326	0.09302	0.0893
3	23.960	0.1365	0.1310
4	26.170	0.1491	0.1431
5	27.406	0.1562	0.1499
6	28.626	0.1631	0.1565
7	29.149	0.1661	0.1594
8	29.671	0.1691	0.1623
9	30.022	0.1711	0.1642
10	30.373	0.1731	0.1661
11	30.728	0.1751	0.1680
12	31.085	0.1771	0.1700
13	31.434	0.1791	0.1719
14	31.084	0.1771	0.1700
15	31.782	0.1811	0.1738
16	32.131	0.1831	0.1757
17	32.481	0.1851	0.1776
18	32.830	0.1871	0.1795
19	33.354	0.1901	0.1824
10	33.877	0.1930	0.1853
11	34.227	0.1950	0.1872
12	34.402	0.1960	0.1881
13	34.751	0.1980	0.1900
14	35.624	0.2030	0.1948
15	36.845	0.2099	0.2015
16	38.237	0.2179	0.2091
17	39.633	0.2258	0.2167
18	40.508	0.2308	0.2215
19	40.858	0.2328	0.2234
20	41.207	0.2348	0.2253
21	41.556	0.2368	0.2272
22	42.079	0.2398	0.2301
23	42.602	0.2428	0.2330
24	43.126	0.2457	0.2358
25	43.649	0.2487	0.2387
26	44.172	0.2517	0.2416
27	44.696	0.2547	0.2444
28	45.393	0.2587	0.2482
29	46.265	0.2636	0.2530
30	47.136	0.2686	0.2578
31	48.531	0.2765	0.2654
32	49.927	0.2845	0.2730

Annexe B

Développement en série hautes températures (HTSE)

Dans la suite nous donnons les coefficients pour les séries exactes de développement hautes températures pour un modèle d'Heisenberg d'un spin $\frac{1}{2}$. Les coefficients sont basés sur la définition de l'hamiltonien utilisé par Baker *et al.* [76]:

$$H = -2Jk_B \sum_{i>j} S_i \cdot S_j \quad (\text{B.1})$$

où J est la constante d'échange et S_i (σ) est la matrice de spin. La somme sur le réseau triangulaire ne s'effectue qu'entre les sites $\langle i, j \rangle$ voisins.

La susceptibilité à champ nul est ensuite donnée par:

$$\chi(0) = \frac{g\mu_B^2}{k_B T} \left[1 + (-1)^n \sum_{n=1}^{\infty} \frac{a_n}{2^n n!} X^n \right] \quad (\text{B.2})$$

où $X = \frac{J}{k_B T}$.

La chaleur spécifique est donnée par:

$$\frac{C}{k_B} = (-1)^n \sum_{n=2}^{\infty} \frac{e_n}{2^n (n-2)!} X^n \quad (\text{B.3})$$

Les coefficients a_n et e_n pour les réseaux triangulaire et kagomé sont donnés dans le tableau ci-dessous. Ces coefficients ont été extraits des références [77, 79, 78]. Il faut noter que dans les références [79, 78] la définition du hamiltonien est différente.

a) Susceptibilité:

n	Triangulaire	Kagomé
1	6	4
2	48	16
3	408	24
4	3600	-64
5	42336	6464
6	781828	96828
7	13646016	-1772032
8	90893568	-47689216
9	-1798204416	1192794624
10	70794720760	45562433520
11	7538546212000	-1163410977000
12	63813109780000	-64754006670000
13	12977417910000000	1584300022000000

b) Chaleur Spécifique:

n	Triangulaire	Kagomé
1	-6	-6
2	48	0
3	-408	612
4	3600	0
5	-42336	-171120
6	781828	-185472
7	-13646016	91494816
8	90893568	318615552
9	1798204416	-79825699580
10	70794720760	-593676103600
11	-7538546212000	25751285580000
12	63813109780000	1363312440000000
13	12977417910000000	-183658350700000000

Annexe C

Images de STM du graphite exfolié

Dans la suite nous montrons quelques images de STM (Microscopie à effet tunnel) du graphite exfolié (Papyex # 49507003). Ces images ont été réalisées à l'Université de Tsukuba.

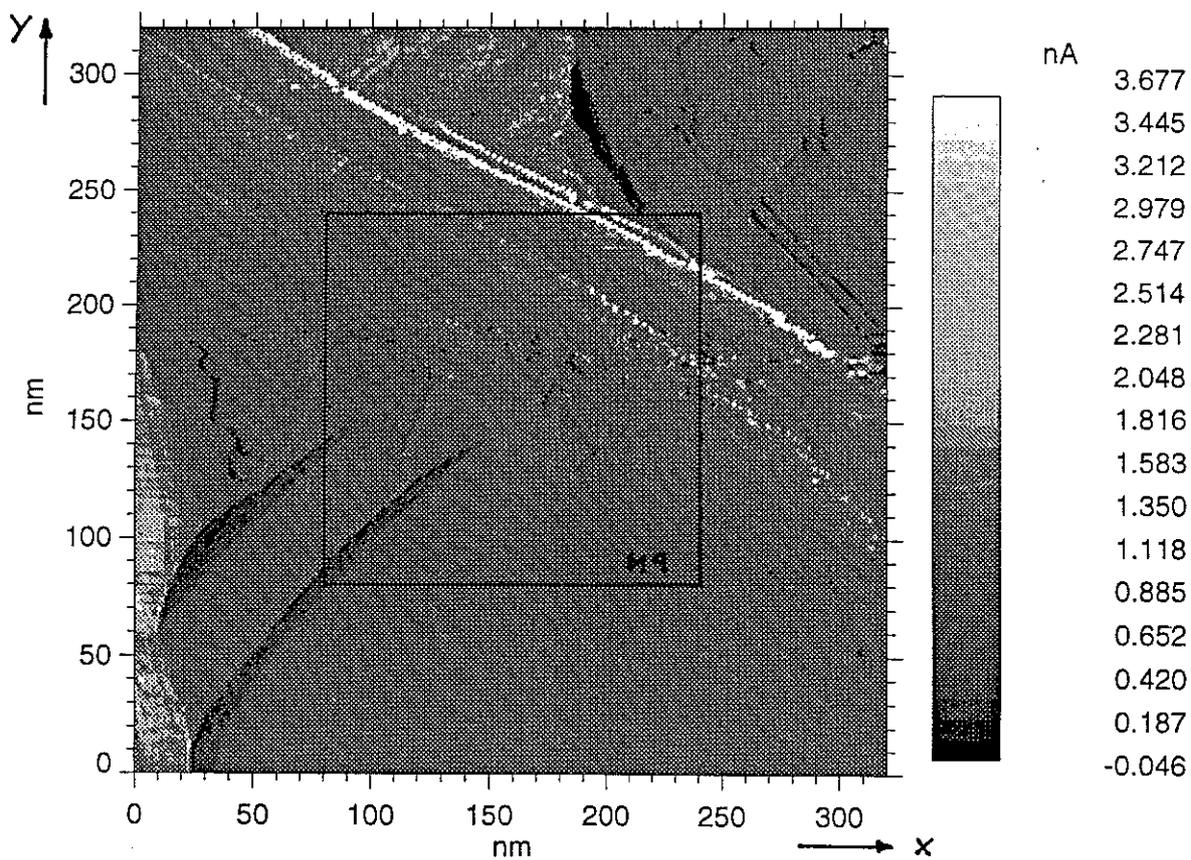
Les images présentées dans cette annexe montrent une région typique du substrat Papyex pour différents agrandissements. Les images notées I représentent la surface du substrat. Les images notées Z donnent une information sur le relief; le graphe correspond au relief le long du trait blanc.

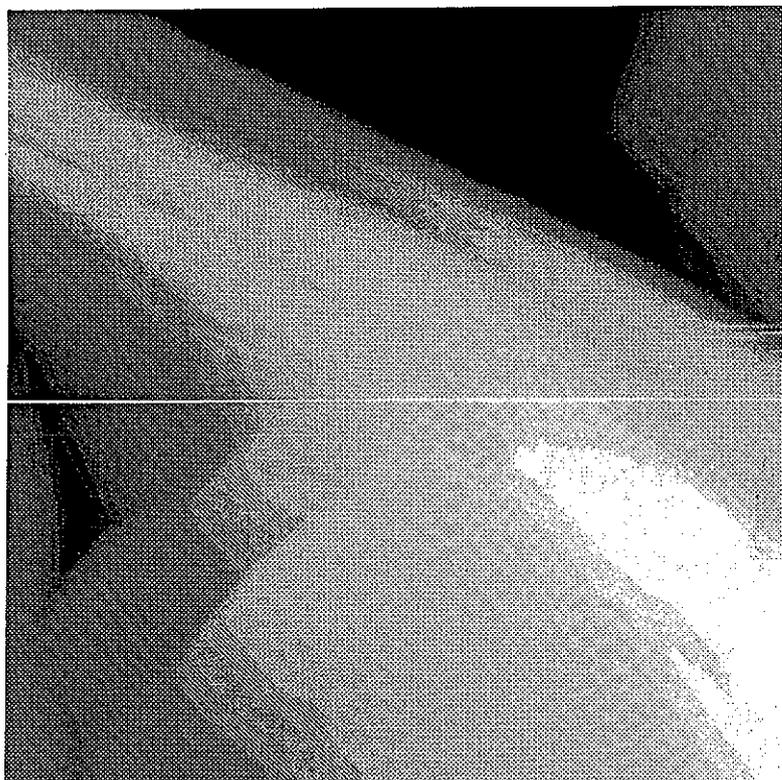
On observe des régions très homogènes sur plusieurs centaines d'Ångström, en accord avec nos mesures (voir chapitre 5). On observe également plusieurs défauts du substrat.

Afin d'obtenir des informations sur la distribution des tailles des plaquettes et leur orientation, des mesures doivent être effectuées pour différentes régions pour avoir une statistique suffisante. Ces mesures sont actuellement en cours à l'université de Tsukuba.

m10_ori

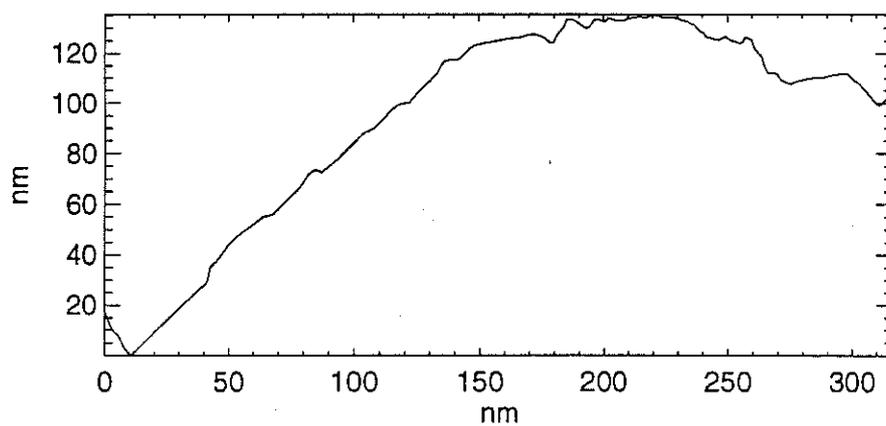
Forward:		Field X:	320.00 nm
Channel 1:	Z	Field Y:	320.00 nm
Backward:		Increment X:	1.28 nm
Channel 1:	I	Increment Y:	1.28 nm
		Points:	250
		Lines:	250
		Angle:	0.00
		User:	fk
		Date:	03.08.96 16:53
		Gap Voltage:	0.01 V
		Feedback Set:	1.00 nA
		Loop Gain:	10.00
		Scan Speed:	400.000 nm/s





m10_ori
Z

RT-STM at RT
Papyex



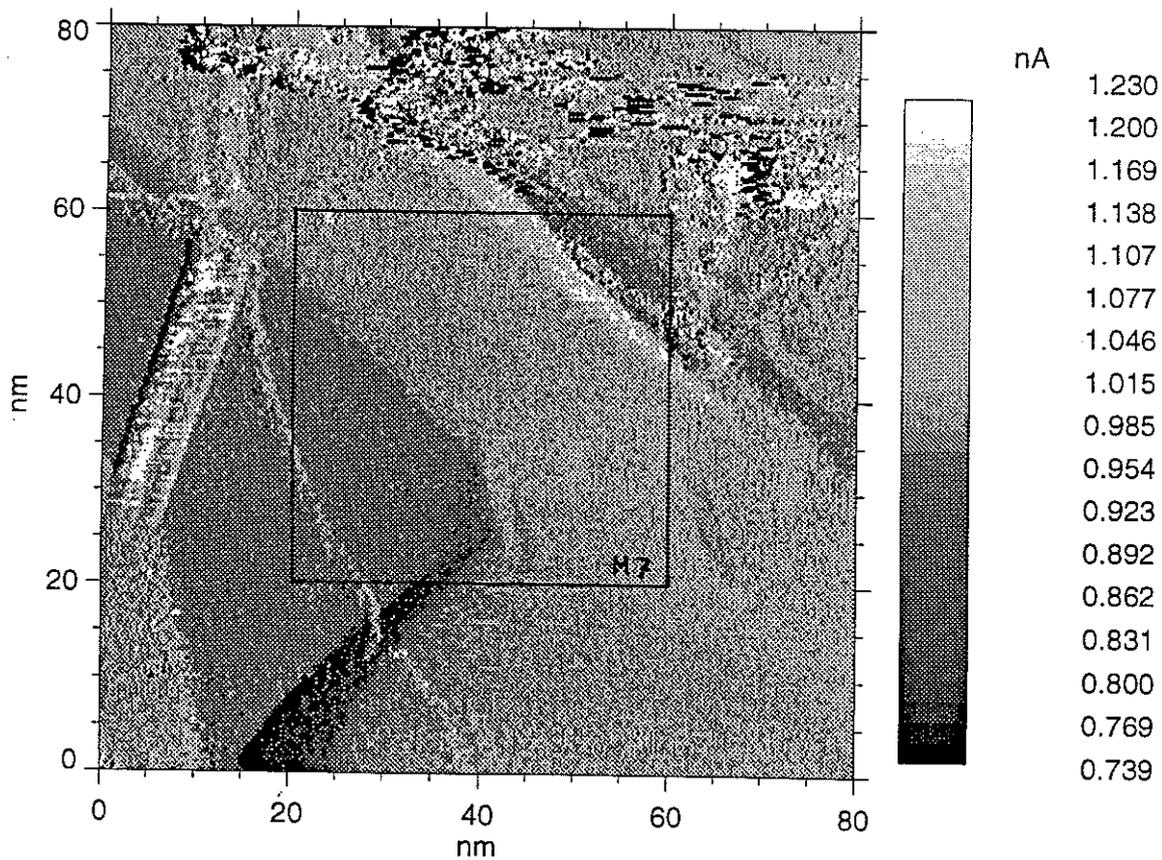
Length:
316.16 nm
Height:
83.695 nm
Angle:
0.00

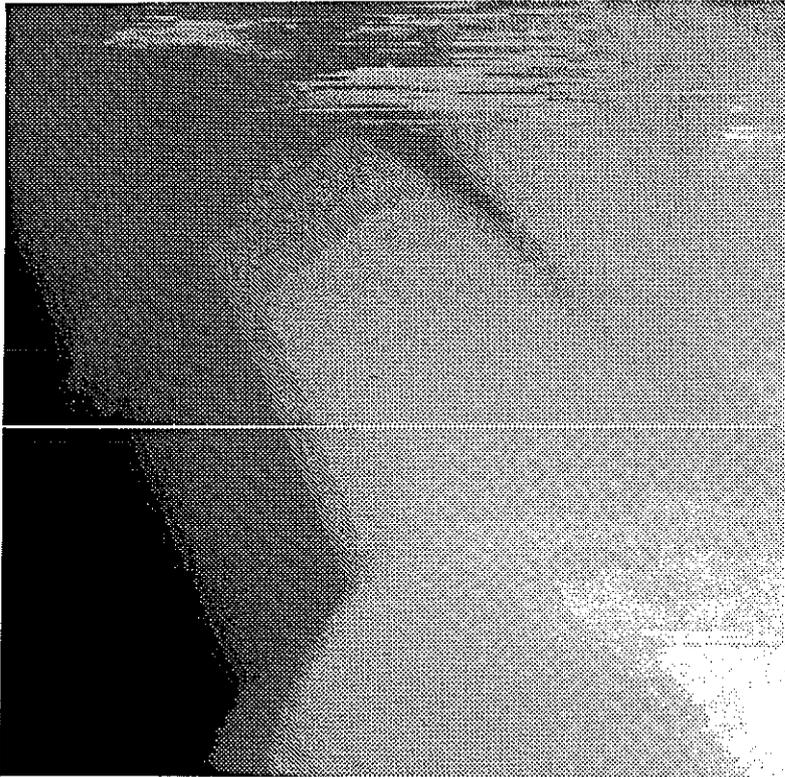
m8_ori

I

Forward:
Channel 1: Z
Backward:
Channel 1: I

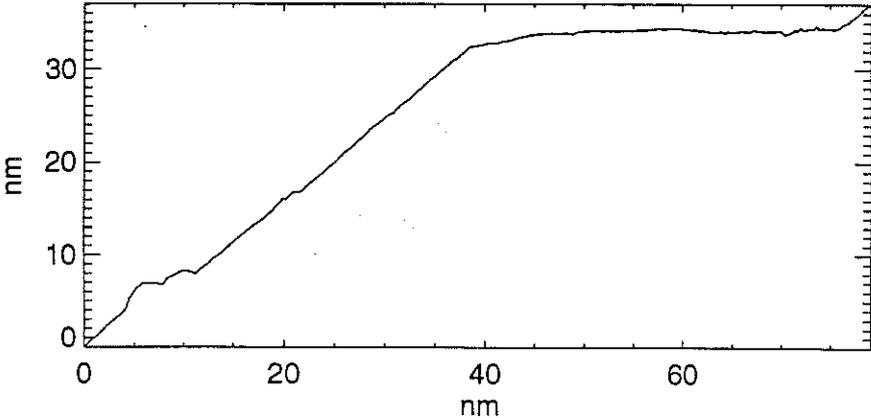
Field X: 80.00 nm
Field Y: 80.00 nm
Increment X: 0.32 nm
Increment Y: 0.32 nm
Points: 250
Lines: 250
Angle: 0.00
User: fk
Date: 03.08.96 16:41
Gap Voltage: 0.01 V
Feedback Set: 1.00 nA
Loop Gain: 10.00
Scan Speed: 200.000 nm/s





m8_ori
Z

RT-STM at RT
Papyex

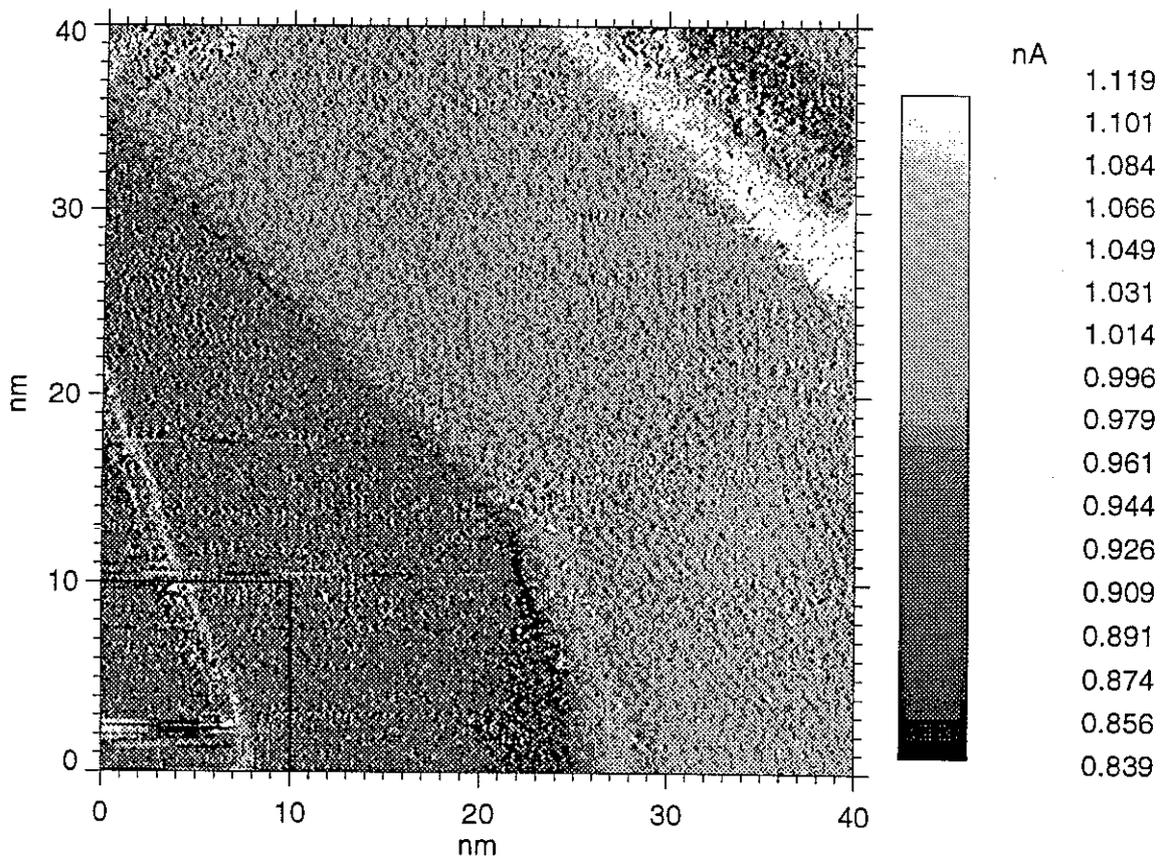


Length:
79.04 nm
Height:
37.012 nm
Angle:
0.00

m7_ori

Forward: Channel 1: Z
Backward: Channel 1: I

Field X: 40.00 nm
Field Y: 40.00 nm
Increment X: 0.16 nm
Increment Y: 0.16 nm
Points: 250
Lines: 250
Angle: 0.00
User: fk
Date: 03.08.96 16:37
Gap Voltage: 0.01 V
Feedback Set: 1.00 nA
Loop Gain: 10.00
Scan Speed: 200.000 nm/s

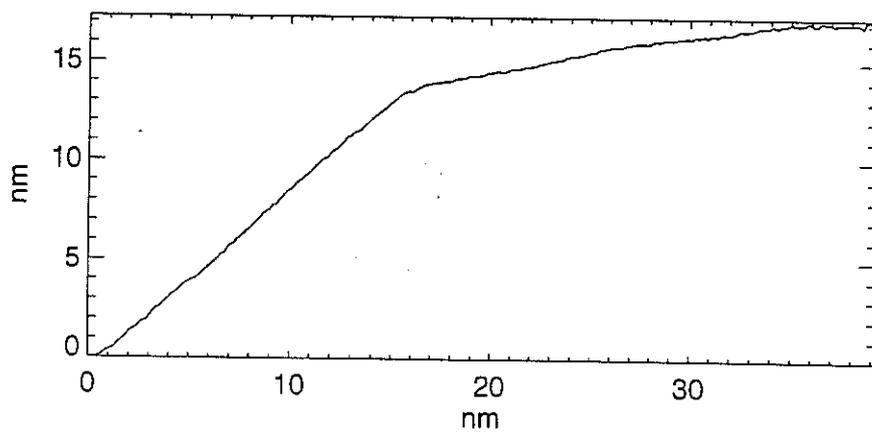




m7_ori

Z

RT-STM at RT
Papyex



Length:

39.20 nm

Height:

17.144 nm

Angle:

0.00

Bibliographie

- [1] L.J. de Jongh in *Physics and Chemistry of Materials with Low-Dimensional Structures, Magnetic Properties of Layered Transition Metal Compounds*, edited by L.J. de Jongh, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands (1990).
- [2] M. Bretz, J. G. Dash, D. C. Hickernell, E. O. McLean, and O. E. Vilches, *Phys. Rev. A* **8**, 1589 (1973).
- [3] H. Franco, Ph. D. Thesis, Université Joseph Fourier, Grenoble, France, 1985 (unpublished); H. Franco, R. E. Rapp, and H. Godfrin, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1161 (1986).
- [4] H. J. Lauter, H. Godfrin, V. L. P. Frank, and H.P. Schildberg, *Physica B* **165 & 166**, 597 (1990).
- [5] D. S. Greywall, *Phys. Rev. B.* **41**, 1842 (1990).
- [6] J. Saunders, C.P. Lusher and B.P. Cowan, in *Excitations in Two-Dimensional and Three-Dimensional Quantum Fluids* edited by A.F.G. Wyatt and H. Lauter, (Plenum Press, New York, 1991).
- [7] P. Schiffer, M. T. O'Keefe, D. D. Osheroff, and H. Fukuyama, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1403 (1993); *J. of Low Temp. Phys.* **94**, 489 (1994).
- [8] M. Siqueira, J. Nyéki, C. P. Lusher, B. P. Cowan, and J. Saunders, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1884 (1996).
- [9] Masashi Morishita, Kazutaka Ishida, Kazushi Ywata, and H. Fukuyama, in *Proceedings of the 21st International Conference on Low Temperature Physics, Czechoslovak Journal of Physics* Vol. **46**-Suppl., Part S1, 409 (1996).
- [10] H. Godfrin and R. E. Rapp, *Advances in Physics*, **44** 113-186 (1995).
- [11] H. Godfrin and H. J. Lauter, in *Progress in Low Temp. Phys.*, Vol. **14**, 213-320, edited by W.P. Halperin, (Elsevier Science, North Holland, Amsterdam, 1995).
- [12] C. Bäuerle, J. Bossy, Yu. M. Bunkov, S.N. Fisher, Chr. Gianèse, and H. Godfrin, in *Proceedings of the 21st International Conference on Low Temperature Physics, Czechoslovak Journal of Physics* Vol. **46**-Suppl., Part S1, 2791 (1996).

- [13] D.J. Cousins, S.N. Fisher, A.M. Guénault, G.R. Pickett, E.N. Smith, and R.P. Turner, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2583 (1994).
- [14] D.J. Cousins, A.M. Guénault, G.R. Pickett, P. Thibault, R.P. Turner, E.N. Smith, C. Bäuerle, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, H. Godfrin, *J. of Low Temp. Phys.* **101**, 259 (1995).
- [15] DC10 silver powder, Comptoir Lyon Alemand Louyot, 45 rue de Paris, BP 141, 93130 Noisy le Sec, France.
- [16] Yu. M. Bunkov, unpublished.
- [17] D. S. Greywall and P. A. Bush, *Rev. Sci. Instrum.* **3**, 471 (1989).
- [18] O. V. Lounasmaa, *Experimental Principles and Methods below 1 K*, Academic Press London and New York, 1974.
- [19] F. Pobell, *Matter and Methods at Low Temperatures*, Springer Verlag, Berlin, 1992.
- [20] Comptoir Lyon-Alemand Louyot.
- [21] R. C. Richardson, E. N. Smith, *Experimental Techniques in Condensed Matter Physics at Low Temperatures*, (Addison-Wesley Publishing Company, Inc., 1988).
- [22] P. Esquinazi, *J. Low. Temp. Phys.* **85**, 139 (1991).
- [23] S.N. Fisher, Ph.D. Thesis, University of Lancaster, 1991.
- [24] K.-D. Morhard, Thèse, Université J. Fourier, CRTBT-CNRS, (1995).
- [25] C. Bäuerle, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, 1995.
- [26] K.-D. Morhard, J. Bossy, Ch. Bäuerle, J.P. Faure, and H. Godfrin, *Appl. Magn. Reson.* **8**, 401-414 (1995).
- [27] P. Horowitz and W. Hill, *The Art of Electronics*, (Cambridge University Press, New York, 1989).
- [28] M. B. Das, *Proceedings of the Symposium on Low Temperature Electronics and High Temperature Superconductors*, Electrochemical Society, New Jersey, USA Vol. **88-9**, 464 (1988).
- [29] D. V. Camin et al., *Cryogenics* **29**, 857 (1989).
- [30] D. V. Camin, private communication.
- [31] H. Godfrin, R. R. Ruel, and D. D. Osheroff, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 305 (1988); *J. de Phys. (Paris)*, Colloq. **49**, C8-2045 (1988).

- [32] J. G. Dash, *Films on Solid Surfaces*, Academic Press, New York, 1975.
- [33] M.H.W. Chan, A.D. Migone, K.D. Miner and Z.R. Li, *Phys. Rev. B* **30**, 2681, (1990).
- [34] Grafoil est un produit de Union Carbide.
- [35] Papyex est un produit de Le Carbone Lorraine.
- [36] J. K. Kjems, L. Passell, H. Taub, J. Dash, and A. D. Novaco, *Phys. Rev. B* **13**, 1446 (1976);
- [37] H. P. Schildberg, and H. J. Lauter, *Surf. Science* **208**, 507 (1989).
- [38] M. Bretz, J. G. Dash, D. C. Hickernell, E. O. McLean, and O. E. Vilches, *Phys. Rev. A* **9**, 2814(E) (1974).
- [39] S.V. Hering, S.W. Van Sciver and O.E. Vilches, *J. of Low Temp. Phys.* **25**, 793 (1976).
- [40] S.W. Van Sciver, *Phys. Rev. B* **18**, 277 (1978).
- [41] S.W. Van Sciver and O.E. Vilches, *Phys. Rev. B* **18**, 285 (1978).
- [42] K.-D. Morhard, J. Bossy, and H. Godfrin, *Phys. Rev B* **51**, 446 (1995).
- [43] H. J. Lauter, H. Godfrin, and P. Leiderer, *J of Low Temp. Phys.* **87**, 425 (1992).
- [44] Greywall, private conversation.
- [45] P. Schildberg, Ph.D Thesis, Universität zu Kiel, (1988).
- [46] A detailed discussion of physical adsorption can be found in: W. A. Steele, *The Interaction of Gases with Solid Surfaces*, Pergamon Press, New York 1974; A. Zangwill, *Physics at Surfaces*, Cambridge University Press, Cambridge, U.K. 1988; W. Kohn, *Interaction of Atoms and Molecules with Solid Surfaces*, edited by V. Bortolani, N. H. March, and M. P Tosi, Plenum Publ. Co. New York, 1990.
- [47] see for example: S. Brunauer, L. E. Copeland, and D. L. Kantro, *The Solid Gas Interface*, edited by E. A. Flood (Marcel Dekker, New York, 1967), Vol. I., Chap. 3.
- [48] R. E. Rapp, and H. Godfrin, *Phys. Rev B* **47**, 12004 (1993).
- [49] H.M. Bozler, D.M. Bates, and A.L. Thomson *Phys Rev. B* **27**, 6992 (1983).
- [50] H. Fukuyama, private communication.
- [51] M. Siqueira, Ph.D. Thesis, Royal Holloway University of London, 1995.
- [52] V. Elser, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2405 (1989).
- [53] M. Roger and J.M. Delrieu, *Jap. Journal of Appl. Phys.* **26** Suppl.-3, 267 (1987).

- [54] F.F. Abraham, J.Q. Broughton, P.W. Leung, and V. Elser, *Europhys. Lett.* **12**, 107 (1990).
- [55] M. Siqueira, C.P. Lusher, B.P. Cowan, and J. Saunders, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1407 (1993).
- [56] C. P. Lusher, J. Saunders, and B. P. Cowan, *Europhys. Lett.* **14**, 809 (1991).
- [57] N.D. Mermin and H. Wagner, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1133 (1966).
- [58] P. Azaria, B. Delamotte, and D. Mouhanna *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1762 (1992).
- [59] P.W. Anderson, *Matter. Res. Bull* **8**, 153 (1973).
- [60] B. Bernu, C. Lhuillier, and L. Pierre, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2590 (1992).
- [61] R.P. Singh and D.A. Huse, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1766 (1992).
- [62] M. Roger, J.H. Hetherington, and J.M. Delrieu, *Rev. Mod. Phys.* **55**, 1 (1983).
- [63] D.J. Thouless, *Proc. Phys. Soc.* **86**, 893 (1965).
- [64] J.M. Delrieu, M. Roger, and J. Hetherington, *J. of Low. Temp. Phys.* **40**, 71 (1980).
- [65] M. Roger, *Phys. Rev. B* **30**, 6432 (1984).
- [66] M. Roger, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 297 (1990).
- [67] B. Bernu, D. Ceperley, and C. Lhuillier, *J. Low Temp. Phys.* **89**, 589 (1992).
- [68] D.M. Ceperley and G. Jacucci, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 1648 (1987).
- [69] V. Elser and C. Zeng, *Phys. Rev. B* **48**, 13647 (1993).
- [70] J.B. Sokoloff and A. Widom, *International Conference on Quantum Crystals*, Fort Collins, Colorado State University (1977), unpublished.
- [71] M. Héritier and P. Lederer, *J. Phys., Paris* **39**, C6-130 (1977); M. Héritier, *J. Phys., Paris* **40**, L-451 (1979); M. Héritier and P. Lederer, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1068 (1979).
- [72] W. J. Mullin and A. Landesman, *J. of Low Temp. Phys.* **38**, 571 (1980).
- [73] H. Jichu and Y. Kuroda, *Prog. Theo. Phys.* **67**, 715 (1982); H. Jichu and Y. Kuroda, *Prog. Theo. Phys.* **69**, 1358 (1983).?
- [74] S. Tasaki, *Prog. Theo. Phys.* **79**, 1311 (1988); errata, *Prog. Theo. Phys.* **80**, 922 (1988); S. Tasaki *Prog. Theo. Phys.* **81**, 946,(1989); S. Tasaki *Prog. Theo. Phys.* **82**, 1032 (1989).
- [75] R.A. Guyer *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1919 (1990); *Physica B* **165-166**, 701 (1990).

- [76] G. S. Rushbrooke, G. A. Baker, and P. J. Wood, in *Phase Transitions and Critical Phenomena*, Vol. 3, edited by C. Domb and M. S. Green (Academic Press, London, New York, 1974).
- [77] J. Oitmaa and E. Bornilla, *Phys. Rev. B* **53**, 14228 (1996).
- [78] N. Elstner, R. Singh, and A.P. Young, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1629 (1993).
- [79] N. Elstner and A.P. Young, *Phys. Rev. B* **50**, 6871 (1994).
- [80] A.V. Chubukov, T. Senthil, and S. Sachdev, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2089 (1994).
- [81] H. Fukuyama, Masashi Morishita, Kazutaka Ishida, Kazushi Ywata, unpublished.
- [82] M. Siqueira, J. Nyéki, B. Cowan, and J. Saunders, *J. of Low Temp. Phys.* **101**, 713, (1995).
- [83] B. Bernu, private communication.
- [84] H.J. Lauter, H.P. Schildberg, H. Godfrin, H. Wiechert, and R. Haensel, *Can. J. Phys.* **65**, 1435 (1987).
- [85] M. Siqueira, private communication.
- [86] H. Godfrin, K.-D. Morhard, R.E. Rapp, and Y.M. Bunkov, *Physica B* **194-196**, 675 (1994).
- [87] H. Godfrin, R. E. Rapp, K.-D. Morhard, J. Bossy, and Ch. Bäuerle, *Phys. Rev B* **49**, 12377 (1994).
- [88] M.D. Miller and L.H. Nosanow, *J. Low Temp. Phys.* **32**, 145 (1978).
- [89] B. Brami, F. Joly, and C. Lhuillier, *J. Low. Temp. Phys.* **94**, 63 (1994).
- [90] B.E. Clements, E. Krotscheck, and H.J. Lauter, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1287 (1993).
- [91] Marcio Siqueira, Martin Dann, Jan Nyéki, Brian Cowan and John Saunders, in *Proceedings of the 21st International Conference on Low Temperature Physics, Czechoslovak Journal of Physics* Vol. **46**-Suppl., Part S1, 407 (1996).
- [92] P. Kopietz, P. Scharf, M. S. Skaf, and S. Chakravarty, *Europhys. Lett.* **9**, 465 (1989).
- [93] C. Bäuerle, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, H. Godfrin; G.Eska, S.Götz, J. Leib, and Th. Wagner, *J. of Low Temp. Phys.* **101**, 457 (1995).
- [94] H. Godfrin, R. E. Rapp, and H. J. Lauter, *Physica B* **169**, 117 (1991).
- [95] M. Siqueira, J. Nyéki, C. P. Lusher, B. P. Cowan, and J. Saunders, *Phys. Rev. B* **50**, 13069 (1994).

- [96] A.M. Dyugaev, *Sov. Sci. Rev. A Phys.* **14**, 1 (1990).
- [97] L.D. Landau, *Sov. Phys. JETP* **3**, 920 (1956).
- [98] L.D. Landau, *Sov. Phys. JETP* **5**, 101 (1957).
- [99] X. Neto and X. Fredkin, *Phys. Rev. B* **49**, 16 (1994).
- [100] J. Wilks, *Liquid and Solid Helium*, (Claredon, Oxford, 1967).
- [101] D. Pines and P. Nozières, *The Theory of Quantum Liquids* Vol. I (Benjamin, New York, 1966).
- [102] D. Vollhardt and P. Wölfle, *The Superfluid Phases of ^3He* (Taylor and Francis, London, 1990).
- [103] J. Saunier, C.P. Lusher, and B.P. Cowan, in *Excitations in Two-Dimensional and Three-Dimensional Quantum Fluids*, edited by A.G.F. Wyatt and H. Lauter, (Plenum, New York, 1991).
- [104] C.P. Lusher, B.P. Cowan, and J. Saunders, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2497 (1991).
- [105] P. Nozières, *Theory of Interacting Fermi Systems* (Benjamin, New York, 1964).
- [106] E.R. Tuttle and F. Mohling *Annals of Physics* **38**, 510 (1966).
- [107] C. Herring in *Magnetism*, edited by G.T. Rado and H. Suhl Vol. 2b (Academic Press, Inc., New York, 1963).
- [108] S. Doniach and S. Engelsberg, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 750 (1966).
- [109] N.F. Berk et J.R. Schrieffer, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 433 (1966).
- [110] M.T. Béal-Monod, Shang Keng Ma, and D.R. Fredkin, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 929 (1968).
- [111] Shang Keng Ma, M.T. Béal-Monod, and D.R. Fredkin, *Phys. Rev.* **174**, 227 (1968).
- [112] M.T. Béal-Monod and A. Theumann in *proceedings of the International Conference on Ordering in Two Dimensions*, edited by S.K. Sinha (North Holland, Amsterdam, 1980).
- [113] M.T. Béal-Monod, *Phys. Rev. B* **28**, 368 (1983).
- [114] J. C. Hubbard, *Proc. R. Soc. London*, Vol. A **276**, 238 (1963).
- [115] M.C. Gutzwiller, *Phys. Rev Lett.* **10**, 159 (1963).
- [116] W.F. Brikman and T.M. Rice, *Phys. Rev. B* **2**, 4302, (1970).

- [117] P. W. Anderson and W.F. Brinkman, "Theory of anisotropic superfluidity in He", in *The Helium Liquids*, edited by J.G.M. Armitage and I.E. Farqhar, (Academic Press, New York, 1975).
- [118] P. W. Anderson and W.F. Brinkman, *The Physics of Liquid and Solid Helium, Part II*, edited by K.H. Bennemann and J.B. Ketterson, (Wiley, New York, 1978).
- [119] D. Vollhardt, *Rev. Mod. Phys.* **56**, 99 (1984).
- [120] K.-D. Morhard, C. Bäuerle, J. Bossy, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, and H. Godfrin, *J. of Low Temp. Phys.* **101**, 161 (1995).
- [121] K.-D. Morhard, C. Bäuerle, J. Bossy, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, and H. Godfrin, *Phys. Rev. B* **53**, 2658 (1996).
- [122] D.S. Greywall, *Phys. Rev. B* **27**, 2747 (1983).
- [123] B. Castaing, *J. Phys. Lett.* **41**, L 333 (1980).
- [124] D.S. Greywall and P.A. Busch, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 64 (1990).
- [125] B.L. Altshuler and A.G. Aronov in *Electron-Electron Interactions in Disordered Systems, Modern Problems in Condensed Matter Physics*, Vol. **10** 1-137, edited by V.M. Agranovich and A.A. Maradudin, (Elsevier, North Holland, Amsterdam, 1985).
- [126] B.L. Al'tshuler, A.G. Aronov, and A.Yu. Zyuzin, *Sov. Phys. JETP* **57**, 889 (1983).
- [127] P.A. Sheldon and R.B. Hallock, in *Proceedings of the 21st International Conference on Low Temperature Physics, Czechoslovak Journal of Physics* Vol. **46**-Suppl., Part S1, 425 (1996).
- [128] A.V. Chubukov and A. Sokol, *Phys. Rev. B.* **49**, 678 (1994).
- [129] Ya.B. Zeldovich, I.Yu. Kobzarev, L.B. Okun, *JETP* **40**, 1 (1974).
- [130] T.W.B. Kibble, *J. Phys. A* **9**, 1387-1398 (1976).
- [131] P.C. Hendry, N.S. Lawson, R.A.M. Lee, P.V.E McClintock, and C.H.D. Williams, *Nature* **368**, 315 (1994).
- [132] W.H. Zurek, *Nature* **317**, 505 (1985).
- [133] W.H. Zurek, *Los Alamos preprint LA-UR-95-2269 (1995)*; *Phys. Rep.* (in the press); *Acta physica polonica B* **24**, 1301-1311 (1993).
- [134] V.M.H. Ruutu, V.B. Eltsov, A.J. Gill, T.W.B Kibble, M. Krusius, Yu.G. Makhlin, B. Plaças, G.E. Volovik, and Xu Wen, *Nature* **382**, 334 (1996).

- [135] S. N. Fisher, A. M. Guénault, C. J. Kennedy, and G. R. Pickett,
Phys. Rev. Lett. **63**, 2566 (1989).
- [136] S. N. Fisher, A. M. Guénault, C. J. Kennedy, and G. R. Pickett,
Phys. Rev. Lett. **69**, 1073 (1992).
- [137] M. P. Enrico, S. N. Fisher and R. J. Watts-Tobin, *J. Low Temp. Phys.* **98**, 81 (1995).
- [138] I.D. Bradley, Yu.M. Bunkov, D.J. Cousins, M.P. Enrico, S.N. Fisher, M.R. Follows,
A.M. Guénault, W.M. Hayes, G.R. Pickett, and T. Sloan, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1887-
1891 (1995).
- [139] C.Bäuerle, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, H. Godfrin and G. Pickett,
Nature **382**, 332 (1996).

Liste des Publications

- [1] H. Godfrin, R. E. Rapp, K.-D. Morhard, J. Bossy, and Ch. Bäuerle:
Condensation of ^3He in 2 1/2 Dimensions and Indirect Exchange in Adsorbed Films,
Phys. Rev. B **49**, 12377 (1994).

- [2] K.-D. Morhard, J. Bossy, Ch. Bäuerle, J.P. Faure, and H. Godfrin:
NMR of Adsorbed ^3He : Surface Physics at Millikelvin Temperatures,
J. Appl. Magn. Reson. **8**, 401-414 (1995).

- [3] K.-D. Morhard, C. Bäuerle, J. Bossy, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, and H. Godfrin:
2D Liquid ^3He near Solidification: a Highly Correlated Fermi Liquid,
J. of Low Temp. Phys. **101**, 161 (1995).

- [4] D.J. Cousins, A.M. Guénault, G.R. Pickett, P. Thibault, R.P. Turner, E.N. Smith, C. Bäuerle, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, H. Godfrin:
A Geometry Dependent Thermal Resistance between a Saturated Dilute ^3He - ^4He Solution and Sintered Silver Powder,
J. of Low Temp. Phys. **101**, 259 (1995).

- [5] C. Bäuerle, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, H. Godfrin, G.Eska, S.Götz, J. Leib and Th. Wagner:
Field Dependence of the Magnetization of Adsorbed ^3He Films at Ultra Low Temperatures,
J. of Low Temp. Phys. **101**, 457 (1995).

- [6] K.-D. Morhard, C. Bäuerle, J. Bossy, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, and H. Godfrin:
Two-Dimensional Fermi Liquid in the Highly Correlated Regime: The Second Layer of ^3He Adsorbed on Graphite,
Phys. Rev. B **53**, 2658 (1996).

- [7] C. Bäuerle, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, H. Godfrin, and G.R. Pickett:
Simulation of String Creation during the "Big Bang" in Superfluid ^3He at 100 μK ,
Nature. **382**, 332, 1996.
- [8] C. Bäuerle, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, and H. Godfrin:
Magnetic Field dependence of the nuclear magnetization of ^3He films adsorbed on
graphite in the ferromagnetic regime,
dans *Proceedings of the XXI International Conference on Low Temperature
Physicsc, Czechoslovak Journal of Physics* **46** - Suppl. 1, 403, 1996.
- [9] C. Bäuerle, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, and H. Godfrin:
 ^3He /Graphite Commensurate Bilayer Films in the Antiferromagnetic Regime,
dans *Proceedings of the XXI International Conference on Low Temperature
Physicsc, Czechoslovak Journal of Physics* **46** - Suppl. 1, 5, 1996.
- [10] C. Bäuerle, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, H. Godfrin, and G.R. Pickett:
Simulated Cosmic Strings in a "Big Bang" in Superfluid ^3He at 100 μK ,
dans *Proceedings of the XXI International Conference on Low Temperature
Physicsc, Czechoslovak Journal of Physics* **46** - Suppl. 1, 401, 1996.
- [11] C. Bäuerle, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, and H. Godfrin:
Systematic Study of ^3He Adsorbed on Graphite by NMR Techniques ,
dans *Proceedings of the XXI International Conference on Low Temperature
Physicsc, Czechoslovak Journal of Physics* **46** - Suppl. 1, 399, 1996.
- [12] C. Bäuerle, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, and H. Godfrin:
The New Grenoble 100 μK Refrigerator,
dans *Proceedings of the XXI International Conference on Low Temperature
Physicsc, Czechoslovak Journal of Physics* **46** - Suppl. 1, 2791, 1996.
- [13] C. Bäuerle, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, H. Godfrin, et G.R. Pickett:
L'Univers simulé dans une éprouvette,
La Recherche **291**, 1996.
- [14-16] C. Bäuerle, Yu.M. Bunkov, S.N. Fisher, and H. Godfrin:
en préparation pour *Phys. Rev. B*

