

THESE

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Joseph Fourier
Grenoble I

Discipline : Physique

présentée et soutenue publiquement
par :

Eddy COLLIN

le 29 Janvier 2002

Effets du désordre sur l' ^3He
à ultra-basses températures

Composition du jury :

T. Dombre (Président)
M. Roger (Rapporteur)
E. Varoquaux (Rapporteur)
Yu. M. Bunkov (Co-directeur)
H. Godfrin (Directeur)

Thèse préparée au Centre de Recherches sur les Très Basses Températures
CNRS - GRENOBLE

REMERCIEMENTS

Une thèse en physique des basses températures est un travail long et difficile, qui ne peut aboutir sans le concours de nombreuses personnes. Sans aucune classification, je tiens à remercier ici pêle-mêle tous ceux qui ont contribué à mes recherches, et/ou qui m'ont soutenu durant ces trois dures années de labeur.

Que l'Etat Français, qui m'a payé (même petitement) pendant mon travail de thèse, trouve ici l'expression de toute ma gratitude. Je remercie B. Hébral, qui m'a accueilli au CRTBT, et qui toujours affiche gaieté et bonne humeur. Mon directeur, H. Godfrin, pour m'avoir guidé dans ce dur travail, et pour sa précision dans nos discussions sur les thèmes les plus divers de la physique. Un grand merci à Yu. M. Bunkov pour son aide et son incroyable imagination en physique, et son goût pour l' ^3He .

L'entraide entre membres de la même institution est primordiale pour le bon fonctionnement de l'ensemble de la machine dévolue à la recherche scientifique. P. Averbuch qui m'a expliqué les subtilités d'Abragam, G. Vermeulen et P. E. Wolf qui m'ont orienté lors de discussions sur les ondes de spin, et T. Fournier grâce à qui j'ai pu réaliser mes échantillons de fils vibrants en silicium, que tous ces collègues trouvent ici mon plus sincère merci.

Merci à tous les intervenants étrangers avec qui j'ai été amené à travailler, M. Krusius et son énergie débordante, V. Dmitriev et Yu. Mukharskii pour leur aide dans nos expériences de RMN pulsée, D. Santos et F. Mayet pour nos riches discussions lors de ma collaboration au projet MacHe3.

Je tiens à saluer les collègues thésards avec lesquels j'ai été amené à travailler, A.-S. Chen et S. Triqueneaux pour leur aide lors de mes débuts dans un domaine qui m'était totalement inconnu.

Pour D. Cousins qui m'a initié à la technique des fils vibrants, C. Bäuerle qui m'a guidé tout au long de mon apprentissage sur DN1, et R. Harakaly qui de nombreuses fois a fait preuve d'une gentillesse sans égale pour m'épauler, merci.

Je tiens à remercier toute l'équipe technique du laboratoire, mécanique, électronique et liquéfaction, C. Gianèse, J.-L. Bret et B. Gautier, sans qui ces expériences n'auraient certainement pas pu être possibles. Merci à l'ensemble du secrétariat pour son lourd travail de gestion. Je remercie mes anciens professeurs de m'avoir donné le goût de la physique, et tous ceux qui ont travaillé sans compter les heures pour forger l'édifice scientifique que l'on connaît aujourd'hui. Merci à tous les thésards qui ont pris la peine d'écrire un manuscrit didactique et utile à leurs successeurs.

Pour les graphiques des cycles d'échange qu'il m'a communiqués, je remercie G. Misguich.

Pour les approximants de Padé qu'il m'a cordialement fait parvenir, je tiens à faire part à M. Roger de mon admiration pour son travail théorique.

Pour les rapporteurs à qui il incombait la lourde tâche de relire ce manuscrit, je témoigne toute ma reconnaissance.

Je tiens à saluer tous les amis qui m'ont fait supporter des moments parfois difficiles, à toi particulièrement Cyril pour m'avoir accueilli à Grenoble lors de la fin de ma thèse. Un immense merci à Thomas le Roi de L^AT_EX, pour l'aide inestimable qu'il m'a fournie pour la mise en page. Je témoigne toute ma gratitude à mes parents G. Fürst et D. Collin pour m'avoir permis de poursuivre mes études jusqu'au plus haut niveau. A ma femme Blandine, qui a enduré autant que moi les moments les plus durs, les mots me manquent pour lui témoigner ma reconnaissance.

Enfin, un merci cordial aux créateurs du jeu Baldur's Gate, du jeu Heroes of M & M, et aux chocolats côte d'Or et Nestlé, qui m'ont en quelque sorte supporté tout au long de ma thèse,

E. Collin

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS	i
1 INTRODUCTION GÉNÉRALE	1
I Méthodes expérimentales	5
2 CRYOSTAT	7
2.1 Dilution $^3\text{He}/^4\text{He}$	7
2.2 Désaimantation nucléaire adiabatique	8
3 CELLULES EXPÉRIMENTALES	13
3.1 Cellule C_5 ^3He -2D	13
3.2 Cellule aérogel	14
4 RÉSONANCE MAGNÉTIQUE NUCLÉAIRE	19
4.1 Quelques bases	19
4.2 Calibrations du dispositif expérimental	25
4.3 Forme de raie RMN de l' ^3He -2D solide	27
5 THERMOMÉTRIE	33
5.1 Résistance de carbone	34
5.2 RMN du platine	35
5.3 RMN de l' ^3He -2D en première couche	37
5.4 Fils vibrants	38
5.5 Fils vibrants en silicium	50
6 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	55
II ^3He Bidimensionnel	
^3He-2D	57
7 INTRODUCTION	59
7.1 Hélium à deux dimensions	59
7.2 Le graphite comme substrat	62
7.3 Potentiel d'adsorption	64
7.4 Echange multiple	68
7.5 Echange indirect	74
7.6 Hamiltonien de l' ^3He -2D solide	77
7.7 Echelle de couverture	81
7.8 Diagramme de phases	85
7.8.1 Première couche	88
7.8.2 Deuxième couche	91
7.8.3 Multicouches, mélanges $^3\text{He}/^4\text{He}$ et superfluidité à 2D	94

8	RÉSULTATS	97
8.1	^3He -2D solide en deuxième couche	97
8.2	Mélanges $^3\text{He}/^4\text{He}$	104
8.2.1	Motivations	104
8.2.2	Expérience	105
8.3	" Liquide de spins " dans l' ^3He -2D solide	115
8.3.1	Analyse " de Heisenberg "	122
8.3.2	Analyse en échange multiple	125
8.4	" Nanoclusters " ferromagnétiques dans l' ^3He -2D solide	132
8.4.1	Interprétations ; coexistence de phases	138
8.4.2	Analyse en taille finie	145
8.5	Absence de superfluidité Fermionique à 2D au-dessus de $120\mu\text{K}$	153
9	CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	161
III	^3He confiné dans l'aérogel	165
10	INTRODUCTION	167
10.1	Hélium massif et confinement	167
10.1.1	Liquide de Fermi	169
10.1.2	^3He superfluide	173
10.2	Aérogels de silice	184
10.2.1	Synthèse d'un aérogel de silice	185
10.2.2	Structure d'un aérogel de silice	186
11	RÉSULTATS	191
11.1	^3He dans l'aérogel	191
11.2	Phase liquide de Fermi	200
11.2.1	Promotion dans les couches solides adsorbées	202
11.2.2	Echange rapide solide-liquide	207
11.2.3	Diffusion de spin dans l'aérogel	218
11.3	Transitions et phase intermédiaire	226
11.3.1	Raie principale	228
11.3.2	Pics satellites	234
11.3.2.1	Au-dessous de 22 bar	235
11.3.2.2	Au-dessus de 22 bar	243
11.3.2.3	Discussion	251
11.4	Phase superfluide	256
11.4.1	Particularités de la transition	261
11.4.2	Champs de résonance et texture	263
11.4.3	Particularités de la phase superfluide	266
12	CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	279
A	QUELQUES CONSTANTES PHYSIQUES	283
B	LISTE DES TRAVAUX	284
	BIBLIOGRAPHIE	287

LISTE DES FIGURES ET TABLEAUX

FIGURES

2.1	Cryostat à désaimantation nucléaire DN1	9
2.2	Température mesurée lors de la désaimantation	11
3.1	Cellule C_5 pour l' ^3He -2D	15
3.2	Cellule aérogel de l'échantillon E4	17
4.1	Schéma de principe du spectromètre RMN continue	22
4.2	Raies de résonance typiques mesurées en RMN continue	24
4.3	Décalage et élargissement des raies RMN de l' ^3He -2D	30
4.4	Rétrécissement haute température des raies RMN de l' ^3He -2D	31
5.1	Thermométrie par la résistance de carbone R21	34
5.2	Signal de résonance RMN du platine	36
5.3	Aimantation de la monocouche d' ^3He -2D	37
5.4	Principe de la mesure d'une résonance de fil vibrant	41
5.5	Raie de résonance d'un fil vibrant en tantale	42
5.6	Composantes réactives et dissipatives	47
5.7	Résonance mécanique à vide	48
5.8	Nouvelles calibrations du fil de tantale	49
5.9	Image MEB d'un fil vibrant de silicium	52
5.10	Résonance à 4,2 K d'un fil de silicium	53
7.1	Image STM d'un substrat de graphite	63
7.2	Vue schématique d'un échantillon de graphite	64
7.3	Profil de densité $\rho(z)$	66
7.4	Vue schématique du potentiel d'adsorption	68
7.5	Vue schématique du potentiel à une particule V_i^{puits} idéalisé	70
7.6	Vue schématique du potentiel à une particule V_i^{puits} " réel "	71
7.7	Mécanisme d'échange indirect RKKY	75
7.8	Mécanisme d'échange indirect Héritier	76
7.9	Isothermes d'adsorption pour l'échelle de taux de couverture	84
7.10	Diagramme de phases ^3He pur en première couche	89
7.11	Mesures de diffraction de neutrons	90
7.12	Diagramme de phases ^3He pur en seconde couche	93
8.1	Quelques ordres magnétiques à 2D	103
8.2	Données brutes $M(T)$, expérience ^3He -2D	107
8.3	Ajustement des quantités solide/liquide	109
8.4	Quantité d' ^4He en seconde couche	110
8.5	Echanges de Heisenberg effectifs	112
8.6	Températures de Fermi, ^3He -2D	113
8.7	Aimantations du solide dans le régime antiferromagnétique	116
8.8	Ajustement des quantités antiferromagnétique/localisé	119

8.9	Aimantation de la phase $\frac{4}{7}$	121
8.10	Analyse " de Heisenberg "	123
8.11	Analyse en échange multiple	126
8.12	Comparaison des systèmes d' ^3He bidimensionnel	127
8.13	Comportement basse température de $M(T)$	131
8.14	Raie RMN ultra-basse température en régime ferromagnétique	132
8.15	Résolution de deux contributions magnétiques	133
8.16	Positions des raies de résonances ferromagnétique/quasi-paramagnétique	135
8.17	Paramètres pilotant la hauteur des pics de résonance	137
8.18	Position de la raie de résonance à ultra-basse température	138
8.19	Aimantation ferromagnétique	139
8.20	Ajustement des quantités ferromagnétique/quasi-paramagnétique	142
8.21	Aimantations du solide dans le régime ferromagnétique	146
8.22	Ajustements des aimantations ferromagnétiques	148
8.23	Comparaison des aimantations mesurées par différents groupes	152
8.24	Ferromagnétisme de la troisième couche	155
8.25	Aimantation du tricouche $3\times^3\text{He}/3\times^4\text{He}/\text{Gr}$	157
8.26	Position de la résonance et largeur RMN du tricouche $3\times^3\text{He}/3\times^4\text{He}/\text{Gr}$	158
10.1	Diagramme de phases de l' ^3He massif	168
10.2	Image TEM d'un aérogel	186
10.3	Image par simulation DLCA d'un aérogel	188
11.1	Isothermes d'adsorption sur deux échantillons	192
11.2	Recalage des aimantations mesurées sur E2, E3 et E4	194
11.3	Courbe $T_{C,a}/T_{C,b}$ fonction de ξ_0/L	197
11.4	Données brutes $M(T)$, expérience aérogel	201
11.5	Températures de Fermi, ^3He massif	203
11.6	Quantité d' ^3He adsorbé sur l'aérogel	204
11.7	Températures de Curie-Weiss Θ_W	205
11.8	Paramètres RMN et échange rapide	209
11.9	Position de la raie RMN principale	211
11.10	Largeur de la raie RMN principale	212
11.11	Largeurs RMN du solide 2D et du liquide	213
11.12	Chauffage radiofréquence des spins	216
11.13	Forme de l'écho de spin	219
11.14	Hauteur de l'écho en fonction du délai	221
11.15	Coefficient de diffusion de spin à 0,5 bar	222
11.16	Coefficient de diffusion de spin à 0,5 bar et 29,5 bar	225
11.17	Un exemple de pic satellite	227
11.18	Mesure des transitions par la largeur de raie RMN	228
11.19	Diagramme de phases de l' ^3He confiné dans l'aérogel	229
11.20	" Blocage " de la largeur de raie RMN principale	230
11.21	Décrochements sur la largeur et la position de raie RMN principale	231
11.22	Aimantation de la raie RMN principale	232
11.23	Premier pic satellite	236
11.24	Largeur RMN du pic satellite principal	238
11.25	Aimantation du pic satellite principal	239
11.26	Décalage du pic satellite principal pour différents dopages en ^4He	241

11.27 Comparaison du décalage du pic satellite principal vu sur E2 et E4	242
11.28 Ajustement des fréquences de Leggett Ω_X pour le pic satellite principal . .	243
11.29 Paramètres $F(A_{\mu\nu})$ ajustés sur le pic satellite principal	244
11.30 Deux pics satellites	245
11.31 Seconde " transition " entre pics satellites	245
11.32 Deux types de pics satellites	247
11.33 Aimantation totale des deux satellites	249
11.34 Décalage des deux pics satellites	250
11.35 Aimantation du liquide superfluide	257
11.36 Aimantation du superfluide normée	258
11.37 Ajustement de l'aimantation totale en présence d' ^3He solide	260
11.38 Surrefroidissement de la transition superfluide	262
11.39 Décalage de la raie superfluide et champ magnétique	264
11.40 Décalage de la raie superfluide dans la limite de l'échange rapide	266
11.41 Comparaisons des décalages de raie superfluide sur différents échantillons .	267
11.42 Equivalence entre premier et second moment	269
11.43 Raies de résonance superfluides	271
11.44 Position des trois pics RMN principaux	273
11.45 Fréquence de Leggett calculée suivant l'analyse standard	274
11.46 Rétrécissement apparent de la raie superfluide en champ inhomogène . . .	275
11.47 Instabilités thermiques et/ou magnétiques aux ultra-basses températures .	276

TABLEAUX

3.1 Caractéristiques de la cellule C_5	16
3.2 Caractéristiques de la cellule aérogel E4	18
4.1 Paramètres pour la forme de raie RMN de l' ^3He -2D	29
5.1 Dimensions du fil vibrant en silicium EB2	51
5.2 Paramètres mécaniques des différents matériaux utilisés	54
7.1 Représentation des cycles d'échange	79
7.2 Volumes commensurables de la cellule C_5	85
8.1 Echanges multiples des différentes phases $\frac{4}{7}$	128
8.2 Echanges cycliques normés	129
A.1 Quelques constantes utiles	283

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Au cours de cette thèse, nous avons étudié les propriétés expérimentales magnétiques nucléaires de l' ^3He en présence de désordre. Cette étude s'est faite grâce aux outils technologiques de pointe présents au CRTBT, le réfrigérateur à désaimantation nucléaire DN1 donnant accès aux ultra-basses températures, et les spectromètres RMN de très grande qualité permettant des mesures très précises.

Les effets du désordre sont au cœur de la physique moderne. Nous les retrouvons dans les systèmes électroniques, comme les échelles de spins, les supraconducteurs non conventionnels, mais également à la base de discussions fondamentales concernant par exemple l'importance des défauts topologiques en cosmologie comme en matière condensée. L' ^3He est avant tout un système modèle, le plus pur qui soit accessible à l'expérimentateur, et l'un des mieux connus des théoriciens à partir des premiers principes. Notre étude s'est faite sur différents systèmes, jouant à la fois sur la dimensionnalité et la nature des phases condensées étudiées, nous permettant ainsi d'aborder différents types de problèmes et leurs relations mutuelles.

En premier lieu, nous nous sommes intéressés à l' ^3He adsorbé sur graphite. A deux dimensions, sous certaines conditions il est reconnu qu'il ne peut exister d'ordre à longue distance à température finie. Différents types d'ordre peuvent cependant exister à $T = 0$. L'échange multiple, qui décrit ce système de spins nucléaires, donne lieu à basse densité à un état particulier de la matière magnétique, l'état " liquide de spins ". Ce fondamental n'admet pas de corrélations spin-spin à longue distance, et possède des excitations magnétiques gappées.

A plus forte densité, l' ^3He à deux dimensions exhibe un comportement ferromagnétique. L'ordre complètement polarisé à température nulle, est réduit à température finie par les fluctuations des spins nucléaires, sous la forme d'excitations élémentaires, les ondes de spin. L'étude, dans le régime ferromagnétique, des effets de taille finie sur ce système permet de les mettre en exergue, l'adjonction d' ^4He au système donnant lieu à des " nanoclusters "

aux propriétés magnétiques originales.

Dans sa phase liquide, l' ^3He bidimensionnel est un liquide de Fermi. Comme pour l' ^3He massif, il pourrait subir une transition de type superfluide, vers un état macroscopique cohérent ordonné, à une température a priori réduite par la dimensionnalité.

Et précisément, en second lieu nous nous sommes intéressés aux propriétés de l' ^3He massif, et de sa phase superfluide. L'introduction du désordre s'est faite à l'aide d'un aérogel de silice de très forte porosité. Ce matériau est caractérisé par une structure fractale, et le confinement de l' ^3He en son sein fait apparaître des propriétés toutes particulières, liées à ce désordre contrôlé.

La superfluidité apparaît à une température réduite, et la phase présente entre la transition de l' ^3He massif et de l' ^3He confiné exhibe des propriétés particulières. L'étude des défauts topologiques que l'on pourrait générer lors de ces transitions de phases est à considérer avec intérêt. Cet aspect est directement relié aux expériences " cosmologiques " réalisées sur l' ^3He à ultra-basses températures. De plus, l'absence de superfluidité, même aux températures les plus basses, sous certaines conditions de pression, donne lieu à une transition de phase quantique qu'il est également possible d'analyser.

La phase superfluide stabilisée, similaire sur certains points aux phases superfluides de l' ^3He massif, s'en démarque néanmoins.

L'interaction entre l' ^3He adsorbé en surface de la matrice de silice, et l' ^3He liquide alentours, est l'une des propriétés fondamentales de ce système. Nous avons su à ce titre mettre à profit nos connaissances des systèmes expérimentaux d' ^3He bidimensionnel pour étudier l' ^3He confiné. Entre autres, le dopage en ^4He remplace les couches magnétiques solides et donne accès aux propriétés intrinsèques au liquide.

Ce manuscrit de thèse a été conçu sur le plan suivant, permettant d'approfondir, au cours de chaque partie, l'un des aspects étudiés.

- Dans une première partie, nous présentons brièvement les techniques expérimentales utilisées. Nous précisons les développements novateurs que nous avons été amenés à réaliser. Entre autres, notre participation dans la réalisation de bolomètres en silicium, et notre collaboration au projet MacHe3 sont abordés.
- Dans une seconde partie, nous abordons l' ^3He bidimensionnel. Nous présentons notre caractérisation expérimentale du " liquide de spins ". Nous commentons la réalisation de " nanoclusters ferromagnétiques ", par le fractionnement d'îlots d' ^3He solide au sein d' ^4He solide bidimensionnel. Enfin, nous fixons une nouvelle borne supérieure à la possible température de transition superfluide des films d' ^3He liquide.

- Dans une troisième partie, nous étudions l' ^3He confiné dans l'aérogel. L'étude de la phase liquide de Fermi nous permet de caractériser le comportement du liquide et du solide, et d'obtenir in situ, par RMN en écho de spin, une évaluation de la longueur caractéristique de l'aérogel, qui limite à basse température le libre parcours moyen des excitations. Les caractéristiques expérimentales de la phase "intermédiaire" présente entre les deux températures de transitions sont exposées, ainsi que, pour conclure, nos résultats sur la phase superfluide. Nous attachons une grande importance à la description de nos conditions expérimentales, car nombre de ces résultats sont encore mal compris. Une littérature d'ailleurs contradictoire est consacrée à ce sujet.

Dans cette introduction générale, nous cherchons à donner une vue d'ensemble cohérente de notre travail de thèse. Chaque partie possède son introduction, où nous donnons les bases nécessaires à la compréhension de cette physique particulière, et fournissons, dans des notations homogènes sur l'ensemble du manuscrit, les relations mathématiques pertinentes. Chacune possède également son propre chapitre de conclusion, où nous proposons également quelques voies de continuation. Enfin, le résumé du manuscrit fait la synthèse générale de notre travail expérimental.

Première partie

Méthodes expérimentales

CRYOSTAT

Notre travail expérimental aux ultra-basses températures a été réalisé sur le réfrigérateur à désaimantation nucléaire DN1 du CRTBT. Nous exposons brièvement, pour le néophyte, les grandes lignes de son mode de fonctionnement. Des explications détaillées peuvent être trouvées dans les ouvrages de référence de Pobell [210] et Lounasmaa [211]. Un bain d'environ 200 litres d' ^4He liquide maintient l'intérieur du cryostat à une température de 4,2 Kelvins, la puissance frigorifique étant fixée par son évaporation. Au sein de ce bain se situe le calorimètre. Il s'agit d'une enceinte dans laquelle on réalise un excellent vide d'isolation (typiquement moins de 10^{-6} mbar à froid), au centre de laquelle est suspendue la canne constituant le réfrigérateur proprement dit. Une photographie de cet appareil (sans son vase extérieur contenant l' ^4He liquide) est présentée en fig. 2.1.

Les basses températures sont obtenues par dilution de l' ^3He dans l' ^4He , processus largement utilisé pour obtenir des températures de l'ordre du mK, ou de la dizaine de mK. Ce principe de réfrigération est rapidement rappelé en section 2.1. La condensation du mélange $^3\text{He}/^4\text{He}$ se fait grâce à la boîte à 1 K, situé sur le haut de la canne. Elle est reliée via une impédance au bain d' ^4He liquide. En pompant continûment sur cette boîte via une pompe primaire, on y maintient une pression de 2 mbar, correspondant à une température pour l' ^4He de 1,3 K.

Les ultra-basses températures sont atteintes par désaimantation adiabatique nucléaire du cuivre. Ce principe de réfrigération est rappelé en section 2.2. Il permet, partant des températures obtenues en dilution, de d'ordre de quelques mK, d'atteindre les plus basses températures accessibles au laboratoire pour les échantillons macroscopiques de matière, de l'ordre de $100\ \mu\text{K}$.

2.1 Dilution $^3\text{He}/^4\text{He}$

En-dessous de 200 mK, le mélange $^3\text{He}/^4\text{He}$ est un liquide biphasé. Une phase ^3He pur flotte sur une phase où l' ^3He est dilué dans de l' ^4He , avec une concentration de l'ordre de

6,4%. Cette séparation de phases se produit dans la partie du cryostat que l'on nomme la boîte à mélange. Depuis la phase diluée, du mélange remonte jusqu'à l'évaporateur où par pompage on en extrait l' ^3He . Pour ce faire, sa température est régulée à environ 700 mK, température à laquelle la concentration de l' ^3He au-dessus du liquide est de l'ordre de 97%. Par pression osmotique, le manque d' ^3He au niveau de l'évaporateur fait migrer de l' ^3He depuis la phase diluée de la boîte à mélange jusqu'à lui. Pour compenser ce déséquilibre dans la phase diluée, de l' ^3He passe de la phase ^3He pur dans le mélange. Ce processus, qui donne son nom aux réfrigérateurs qui l'utilisent, leur donne également leur puissance frigorifique : en effet, la dilution de l' ^3He dans le mélange est un procédé endothermique, lié aux propriétés quantiques différentes des deux isotopes de l'Hélium.

Afin de fonctionner en cycle fermé, l' ^3He extrait au niveau de l'évaporateur est réinjecté dans la phase ^3He pur du liquide par le biais d'impédances et d'échangeurs thermiques. Ces échangeurs (développés au laboratoire), qui refroidissent l' ^3He liquide chaud allant à la boîte à mélange alors que se réchauffe le mélange migrant vers l'évaporateur, sont d'une importance capitale pour le bon fonctionnement de l'appareil. Nous renvoyons aux livres de référence (Pobell [210] et Lounasmaa [211]) pour de plus amples détails sur ce procédé.

En régime stationnaire sous champ magnétique nul, DN1 peut atteindre en dilution des températures de l'ordre de 3 mK pour des débits d'environ 200 $\mu\text{mol/s}$ (le pompage est réalisé par une pompe primaire et une pompe roots en série).

2.2 Désaimantation nucléaire adiabatique

La boîte à mélange est connectée à l'étage à désaimantation nucléaire par un interrupteur thermique. Cet interrupteur est un ensemble de feuilles en aluminium enserrées par une bobine supraconductrice en niobium. Aux températures inférieures à 1,7 K, en l'absence de courant dans la bobine, l'interrupteur thermique est supraconducteur ; il ne conduit pas la chaleur, l'étage est isolé du reste du réfrigérateur. A l'inverse, lorsqu'on impose un courant suffisant dans la bobine, le champ magnétique généré sur l'aluminium dépasse son champ critique et il devient normal : il conduit la chaleur, l'étage est alors connecté à la boîte à mélange.

Notre étage à désaimantation nucléaire est laminaire, il est constitué de plaquettes de cuivre soudées par diffusion thermique (technique développée à l'institut Kapitza, par Yu. M. Bunkov). Il représente environ 1 kg de cuivre ultra-pur, connecté à la cellule expérimentale (amovible) par des fils d'argent. Plus de détails expérimentaux concernant DN1 sont disponibles dans la thèse de Bäuerle [201] 1996.

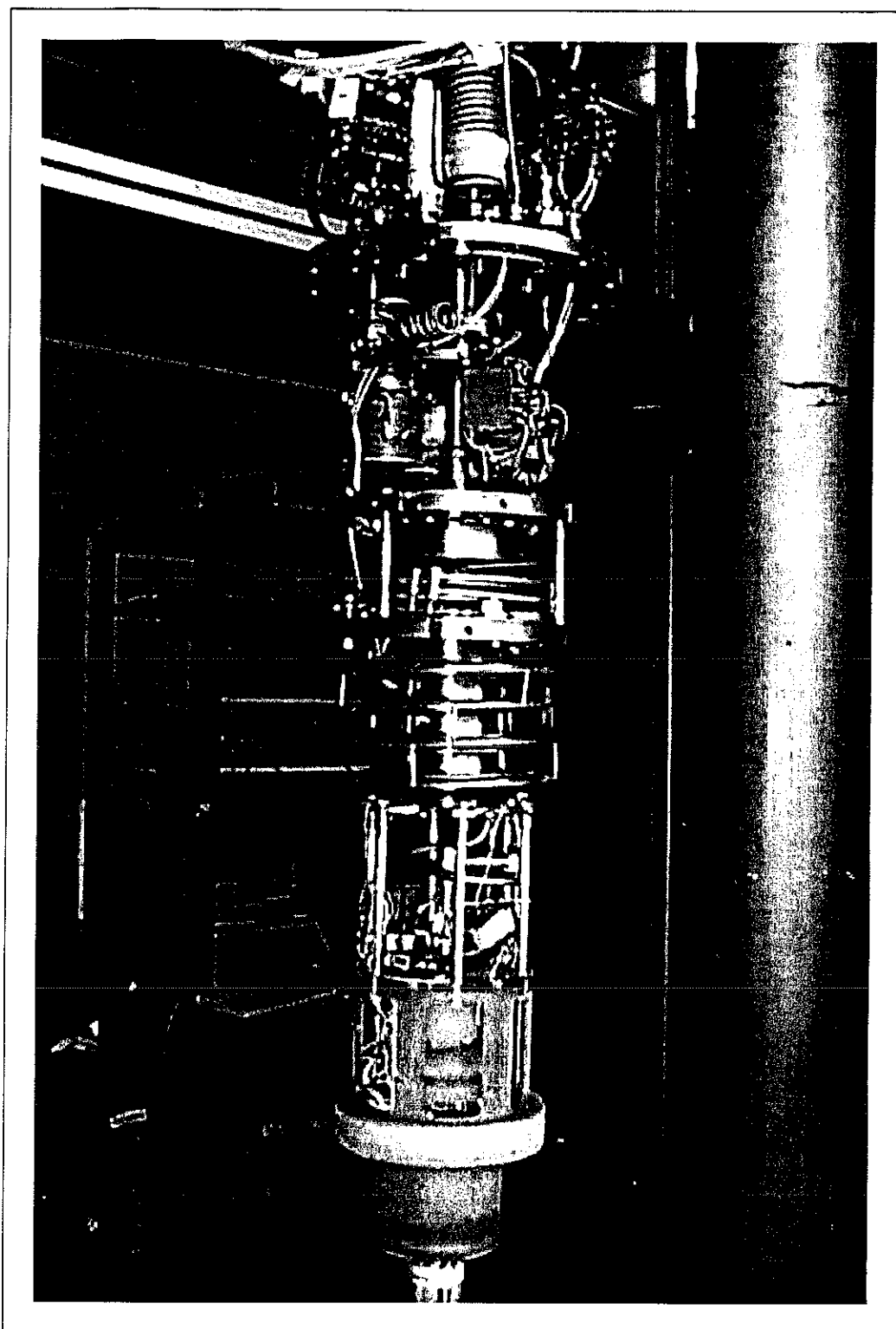


FIG. 2.1: Photographie de la canne intérieure du cryostat à désaimantation nucléaire DN1. On y distingue les différentes parties décrites dans le texte. Le bas de la photographie coupe le haut de l'étage à désaimantation nucléaire, constitué des lames de cuivre d'une longueur d'environ un mètre. A leur extrémité se trouve la cellule expérimentale étudiée (non photographiée).

Décrivons sommairement la technique de désaimantation nucléaire adiabatique¹. En un premier temps, l'application d'un fort champ magnétique $|\vec{B}|$, aux températures de l'ordre de quelques mK obtenues en dilution, permet d'orienter les spins nucléaires du cuivre. L'entropie (le désordre) est très faible, et la capacité calorifique (de spins) du système élevée. Nous renvoyons aux livres de référence (Pobell [210] et Lounasmaa [211]) pour une discussion complète du processus, et aux cours élémentaires (comme Diu [215]) pour les propriétés simples des assemblées de spins. Pour notre cryostat DN1, nous appliquons des champs de 7 T à des températures de l'ordre de 8 mK.

A la suite de ce pré-refroidissement sous champ², l'interrupteur thermique est ouvert. On entame la désaimantation, qui est adiabatique car elle est lente et le système isolé³. L'entropie (de spin) S_{spin} du système ne dépend que de la variable réduite $x = B/T$, monotoniquement (B représente évidemment $|\vec{B}|$). Ainsi, l'adiabaticité $S_{spin}(x) = Cste$ assure $x = Cste$, soit la relation fondamentale :

$$\frac{B_i}{T_i} = \frac{B_f}{T_f}$$

où i et f se réfèrent respectivement aux états initiaux et finals. Dans un langage imagé, on dit que l'adiabaticité requiert de conserver l'ordre imposé par le champ magnétique initialement (tous les spins alignés), ce qui ne peut se faire qu'en abaissant la température. La température de l'étage mesurée en cours de désaimantation est fournie en fig. 2.2. Plus le champ final B_f est faible, et plus la température atteinte T_f l'est également. En pratique, il y a des limitations que nous présentons sommairement ci-dessous.

En premier lieu, les spins nucléaires du cuivre ne sont pas parfaitement indépendants. Leurs faibles interactions correspondent au premier ordre à un faible champ (magnétique) moyen qu'il est impossible d'éliminer.

Revenons aussi rapidement sur la notion d'adiabaticité. Le système isolé est en réalité l'ensemble de spins nucléaires couplé à son entourage, à savoir les électrons de conduction du cuivre, mais aussi l'ensemble de l'étage à désaimantation nucléaire et de la cellule expérimentale. Plus précisément, le phénomène physique mis en jeu est donc la réduction de la température de spin, qui "pompe" la chaleur de l'étage du fait d'un faible couplage entre électrons de conduction (et phonons) du cuivre et ces spins nucléaires. Le mécanisme ne peut être efficace que si la chaleur spécifique de spin $C_{V spin}$ est suffisamment grande

¹La désaimantation de sels paramagnétiques (électroniques), comme les sels de LCMN, a également été étudiée par certains auteurs (voir par exemple Pobell [210]).

²L'obtention de températures de l'ordre de 10 mK peut prendre plus de deux jours.

³Il n'y a (presque) pas de fuite thermique, et la transformation thermodynamique est suffisamment lente pour que l'équilibre soit toujours quasi-statique. Nous revenons cependant sur les raffinements attachés à ce point dans la suite.

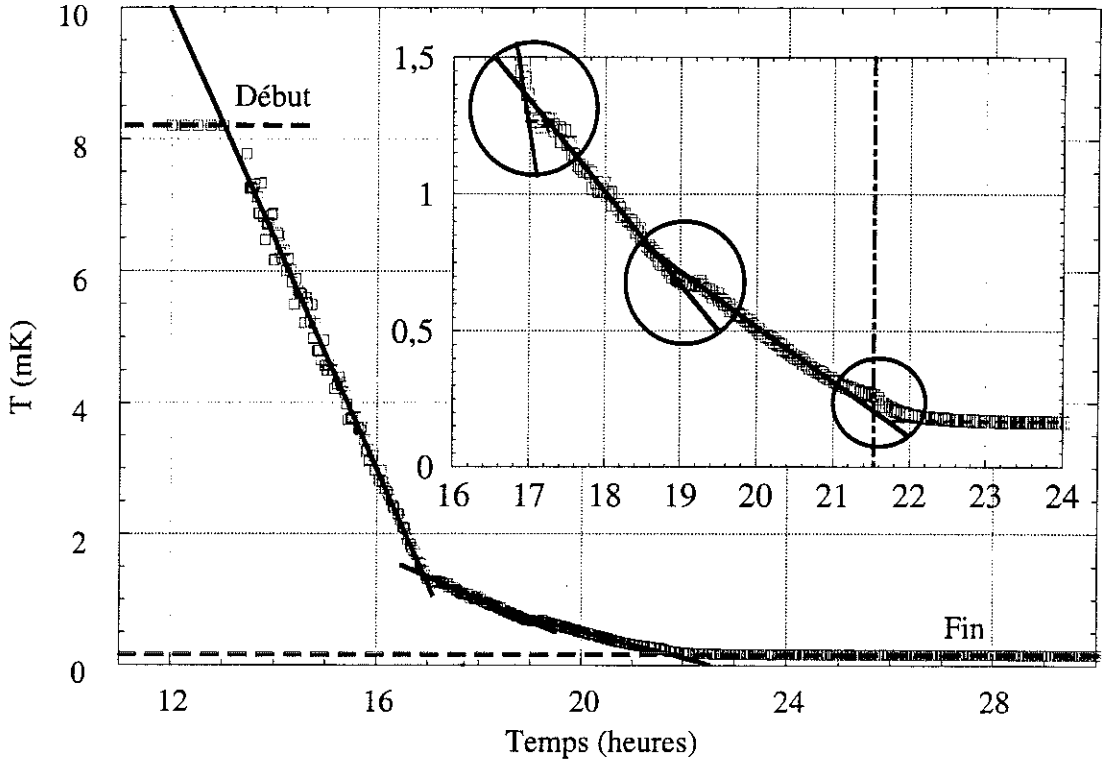


FIG. 2.2: Température de l'étage en cuivre mesurée en cours de désaimantation par un thermomètre à ^3He adsorbé (section 5.3). Le champ magnétique initial était de 7 T, et le champ final de 50 mT. Les différentes branches sur ce graphique représentent différentes vitesses de désaimantation, l'encart est un simple agrandissement. Les ruptures de pente (entourées) correspondent à des temps morts, et la brusque chute finale de la température à la déconnection de la source de courant (verticale tiretée). Elle est la cause d'une forte fuite thermique, qui empêche l'adiabaticité aux plus basses températures, mais qui tombe dans la gamme des pW lorsque sont atteintes des températures de l'ordre de $100\mu\text{K}$. Ici, la température initiale était de $8,2\text{ mK}$ et la température finale de $155\mu\text{K}$ (horizontales pointillées).

(fixée par le rapport B_i/T_i), et si le couplage spins nucléaires/électrons de conduction est suffisant. Ce couplage est décrit par la constante de Korringa, qui dépend du champ magnétique B . Pour que le couplage soit efficace, le champ magnétique final B_f imposé ne peut être arbitrairement faible.

Enfin, la vitesse de réchauffement $\delta T/\delta t$ de l'étage peut s'écrire simplement $\delta T/\delta t = (1/C_{V\text{ spin}})\delta W$ si δW représente la fuite thermique à l'étage. Or, plus le système se réchauffe, et plus la chaleur spécifique décroît, le réchauffement devient de plus en plus rapide. A fuite thermique δW fixée, le réchauffement sera moins violent, au moins aux premiers instants, pour des champs magnétiques B_f qui ne sont pas trop faibles.

Pour notre cryostat DN1, la fuite thermique est de l'ordre de quelques pW. Le champ de désaimantation final est de 50 mT, le cryostat atteint des températures de l'ordre de $100\mu\text{K}$ qu'il peut conserver pendant une semaine environ.

CELLULES EXPÉRIMENTALES

Les mesures principales de cette thèse ont été réalisées, pour l' ^3He bidimensionnel (^3He -2D), sur la cellule C_5 constituée de feuilles de Papyex¹. Pour nos expériences sur l' ^3He confiné, la cellule principale est celle de l'échantillon d'aérogel² E4.

Pour ces deux systèmes nous avons réalisé des mesures de résonance magnétique nucléaire (RMN) continue. Les spectromètres RMN employés sont sommairement décrits en chapitre 4. Chaque bobine radiofréquence, solidaire de la cellule expérimentale, lui est spécifique. Les deux cellules, connectées à l'extrémité inférieure de l'étage en cuivre, ont été centrées de la même façon vis-à-vis de nos bobines de champ magnétique. Nous les décrivons succinctement dans les sections ci-dessous.

3.1 Cellule C_5 ^3He -2D

La cellule C_5 a été réalisée par Bäuerle (Thèse [201] 1996). Elle est constituée de feuilles de Papyex (S 607) agencées en sandwich, de surface verticale et parallèle à notre champ magnétique de mesure. Ces feuilles (environ 0,632 g) sont soudées par diffusion thermique à des feuilles d'argent (Goodfellows 25 μm) connectées via des fils d'argent à l'étage en cuivre, et aux thermomètres.

Une bobine de cuivre (fil de 50 μm verni) a été réalisée sur l'extérieur en Stycast 1266 de la cellule expérimentale. Elle est constituée de 43 spires ϕ 10 mm, dont 6 serrées de chaque côté, et 31 au centre espacées de façon homogène (l'ensemble fait 10 mm). Le profil de champ généré par cette bobine sur le graphite est assez homogène (de l'ordre de 5 %). Sur la bobine RMN, des fils de cuivre de thermalisation ont été déposés (une cinquantaine), et connectés directement à l'étage. Une vue artistique de la cellule est présentée en fig. 3.1. Un premier thermomètre, pour les hautes températures, est monté sur la partie inférieure de l'étage à désaimantation nucléaire. Il s'agit de la résistance de carbone R21, décrite en

¹Papyex : substrat de graphite dont la structure est discutée en section 7.2.

²Aérogel : verre de silice dont la structure particulière est discutée en section 10.2.

section 5.1. Directement sur les fils d'argent de thermalisation sortant de la cellule, nous avons connecté le thermomètre basse température. Il s'agit d'un thermomètre à RMN du platine (section 5.2). Il est constitué d'environ 1 g de fils de platine ($25\ \mu\text{m}$ sur 12 mm environ, sans vernis), soudés sur des fils d'argent. Sa bobine RMN a été réalisée sur un papier-Stycast³ enserrant ces fils mais ne les touchant que par le biais de deux supports très fins placés à ses extrémités. Elle est constituée de 615 spires $\phi\ 4\text{ mm}$ de fils de cuivre de $50\ \mu\text{m}$ verni, bobinées sur six couches de 10 mm de long. Là encore, une trentaine de fils de thermalisation relie cette bobine à l'étage en cuivre.

La régulation de la température se fait par le biais d'une résistance (jauge de contrainte) collée sur le haut de l'étage en cuivre.

La bobine RMN du thermomètre de platine est connectée (via des fils supraconducteurs et des fils normaux) au préamplificateur (à chaud) de notre spectromètre-thermomètre (réalisé au laboratoire). La bobine RMN pour l' ^3He -2D est connectée par des fils supraconducteurs exclusivement à un amplificateur à froid placé dans le bain d' ^4He (celui numéroté # 1, développé au laboratoire). Nous donnons dans le tableau 3.1 les principales caractéristiques techniques de notre dispositif expérimental.

Ces caractéristiques sont utilisées ou invoquées en chapitre 8, ainsi que dans cette partie plus technique. Les paramètres RMN et les formules qui sont employées sont commentés en chapitre 4. Ces valeurs sont nécessaires à la compréhension de certaines propriétés, et à l'évaluation chiffrée de certaines grandeurs.

3.2 Cellule aérogel

La cellule contenant notre aérogel E4 a été réalisée par Yu. M. Bunkov. Elle est constituée d'un écran externe d' ^3He , et d'une cellule interne qui joue le rôle de ballast thermique. Ces deux réservoirs d' ^3He sont thermalisés à l'étage à désaimantation nucléaire par des échangeurs d'argent fritté (environ 100 g) reliés à des fils d'argent. L'aérogel se trouve dans un cylindre de papier-stycast vertical connecté au ballast thermique, d'axe parallèle au champ magnétique (15 mm de long et 5 mm de diamètre).

La bobine RMN a une forme en double selle à cheval, les deux pièces étant disposées de part et d'autre du cylindre d'aérogel, en son milieu. Les deux parties sont distantes d'environ 10 mm. Chacune fait environ 8 mm de large pour 14 mm de haut, et contient 40 spires (soit un total de 80 spires). Cette bobine est réalisée en fil de cuivre verni de $70\ \mu\text{m}$,

³Papier à cigarette ici, ou papier millimétré commercial enduit de Stycast 1266.

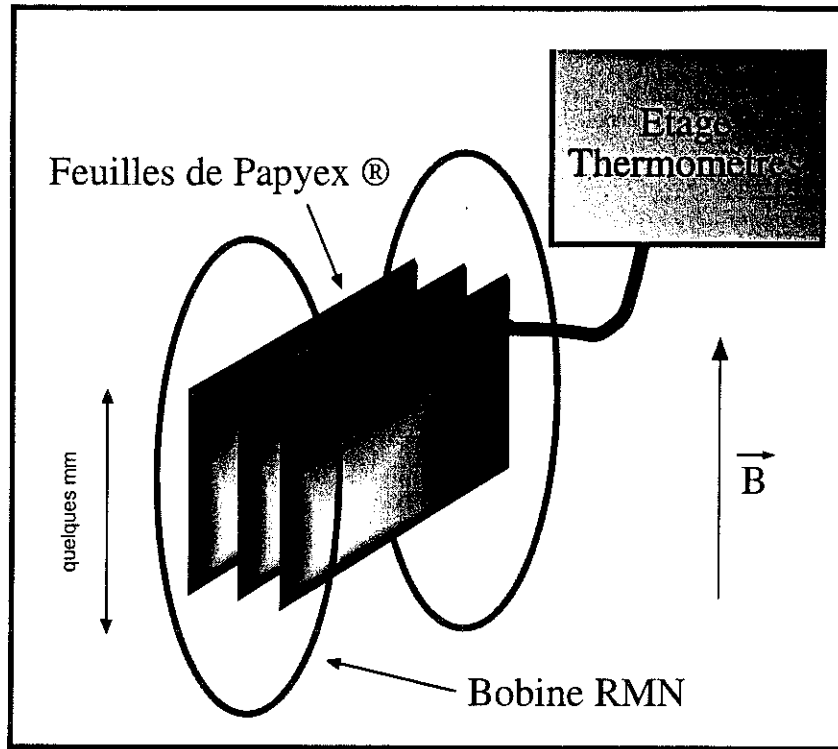


FIG. 3.1: Vue d'artiste de la cellule C_5 utilisée dans nos expériences sur l' ^3He -2D. Le champ magnétique $\vec{B}$ de mesure est vertical, le champ radiofréquence de détection, généré par la bobine RMN, est lui dans le plan horizontal.

et est thermalisée directement sur l'étage en cuivre. Une vue d'artiste de cette cellule est présentée en fig. 3.2.

Le thermomètre pour les hautes températures est à nouveau la résistance R21. Elle est montée sur le bas de l'étage à désaimantation nucléaire. Directement à l'intérieur du ballast thermique se trouvent les thermomètres basses températures. Il s'agit de deux fils vibrants, un fil de niobium-titane de $13,5\ \mu\text{m}$, formant une boucle d'environ 3 mm, et un fil de tantale de $125\ \mu\text{m}$, formant également une boucle de 3 mm. Le fil de niobium-titane n'a été que très peu utilisé, alors que le fil de tantale a fait l'objet d'une étude détaillée, fournie en section 5.4. Il s'agit de notre thermomètre principal, que nous avons recalibré contre la RMN du platine.

Pour réguler la température de la cellule, deux techniques ont été utilisées. En premier lieu, nous disposons de chauffages résistifs sur l'étage en cuivre. En contrôlant le courant qui les traverse, on réchauffe l'étage à désaimantation nucléaire qui perd sa capacité calorifique. En second lieu, nous nous sommes servis d'un troisième fil vibrant placé au sein du ballast

Propriété	valeur	commentaire
S_{incom}	13,6 m ²	isotherme BET
G_{inj}	1/6,58	atténuation de l'injection avant l'amplificateur (2 splitters et un atténuateur 10 dB)
L	9,6 μ H	inductance bobine RF
$C_{ }$	2,7 nF	capacité parallèle (spécialement rajoutée)
f_0	0,9896 MHz	fréquence RMN
Q	72,5	facteur de qualité du circuit résonant
$C_=_$	5,6 pF	capacité série
$Z_=_$	28,7 k Ω	impédance série
$Z_{ }$	4,31 k Ω	impédance équivalente du circuit résonant
$G_{rés}$	1/7,66	atténuation au niveau du circuit résonant
$G_{détect}$	191	gain de la détection
$a/2$	2,42 10 ⁻⁵ T/V	facteur de conversion reliant H_1 à la tension sur la bobine RF
$\sqrt{V^2}$	2,5 μ V _{rms}	bruit électrique ramené à l'entrée de la détection synchrone

TAB. 3.1: Caractéristiques techniques de la cellule C_5 (et de son circuit électrique) utilisée dans nos expériences sur l'³He-2D. La fréquence de résonance (et par conséquent le champ RMN utilisé) est 3,71 fois plus faible que pour Bäuerle [201] 1996.

thermique d'³He. Il s'agit d'un fil de tantale, auquel on a donné une forme carrée⁴, et dont l'écartement des pieds est environ double de son collègue thermomètre. Son utilisation donne les mêmes résultats physiques qu'avec les chauffages résistifs, mais elle permet une certaine souplesse : en l'agitant violemment on réchauffe l'³He environnant, (presque) sans affecter la chaleur spécifique stockée dans l'étage en cuivre (le couplage thermique entre l'³He liquide et les spins nucléaires du cuivre n'étant pas parfait). Il suffit de couper l'injection au fil de chauffe pour que la cellule se refroidisse à nouveau aux ultra-basses températures.

Les fils vibrants sont connectés à des amplificateurs à chaud (réalisés au laboratoire), via des fils normaux et des fils supraconducteurs. La bobine RMN est également connectée à un amplificateur à chaud (dénommé KD, développé au laboratoire). Nous donnons dans le tableau 3.2 les principales caractéristiques de notre cellule expérimentale.

⁴Les fils vibrants usuels ont une forme de boucle. Nos fils de silicium ont également une forme carrée, rappelant des cages de football (section 5.5). La largeur à mi-hauteur de la résonance, mesurée sur le signal en phase, pour le fil chauffage est environ 15 % supérieure à celle fournie par le fil thermomètre.

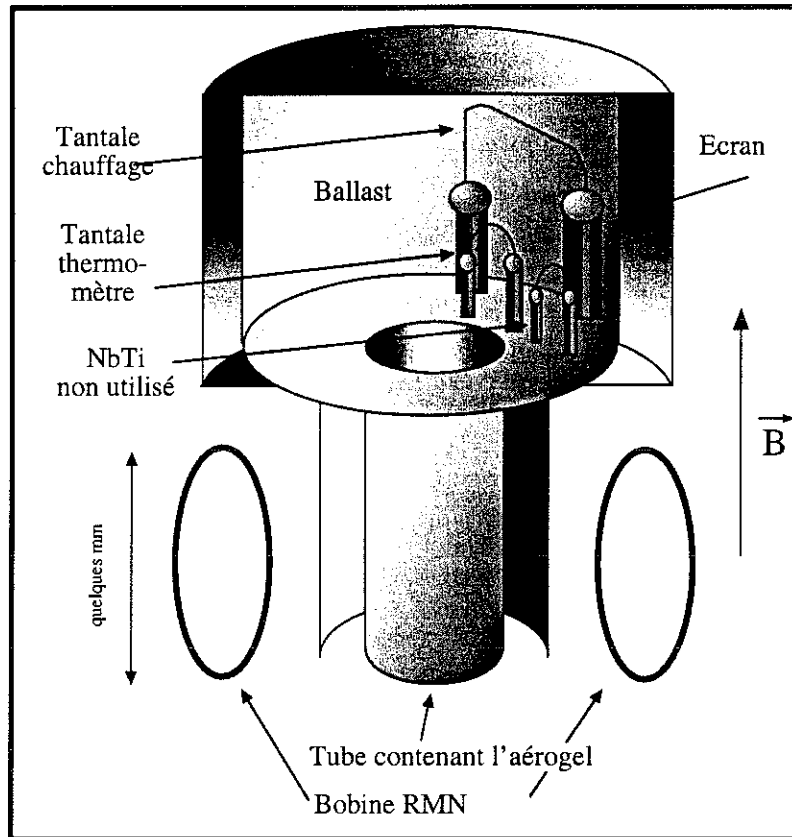


FIG. 3.2: Vue d'artiste de la cellule utilisée pour l'échantillon d'aérogel E4. Le champ magnétique $\vec{B}$ est vertical, et le champ radiofréquence généré par la bobine RMN est horizontal.

Ces caractéristiques sont utilisées ou invoquées en chapitre 11, ainsi que dans cette partie plus technique. Les paramètres RMN et les formules qui sont employées sont commentés en chapitre 4.

Dans notre expérience, l'amplificateur KD a été muni d'un switch, qui nous permettait de basculer entre une position champ fort décrite dans cette section, et une position champ faible. Les mesures en champ fort sont le cœur de notre travail, la position champ faible a été utilisée pour vérifier que les propriétés physiques se comportaient de façon correcte en $|\vec{B}|$. Mentionnons simplement qu'en champ faible, la fréquence de résonance est 561,4kHz, et que nous perdons un facteur 45 sur notre sensibilité.

Enfin, quelques mesures ont été réalisées en RMN pulsée sur cette cellule. La fréquence de travail était alors de 1095 kHz, et l'amplificateur KD a été remplacé par le spectromètre qui a également servi à nos mesures thermométriques sur la poudre de platine (section 5.2,

Propriété	valeur	commentaire
S_{incom}	5,9 m ²	isotherme BET
G_{inj}	1/124	atténuation de l'injection avant l'amplificateur (un splitter et un diviseur capacitif)
L	63 μ H	inductance bobine RF
$C_{\parallel}$	275 pF	capacité parallèle (cables)
f_0	1,2109 MHz	fréquence RMN
Q	64,4	facteur de qualité du circuit résonant
$C_{=}$	1,5 pF	capacité série
$Z_{=}$	87,6 k Ω	impédance série
$Z_{\parallel}$	30,9 k Ω	impédance équivalente du circuit résonant
$G_{rés}$	1/3,84	atténuation au niveau du circuit résonant
$G_{détect}$	376	gain de la détection
$a/2$	0,902 10 ⁻⁵ T/V	facteur de conversion reliant H_1 à la tension sur la bobine RF
$\sqrt{V^2}$	5 μ V _{rms}	bruit électrique ramené à l'entrée de la détection synchrone
thermo. Ta f_0	1809 Hz	fréquence de résonance (à vide) du fil de tantale thermomètre
chauff. Ta f_0	1160 Hz	fréquence de résonance (approx. à vide) du fil de tantale chauffage
NbTi f_0	930 Hz	fréquence de résonance (approximative) du fil de niobium-titane

TAB. 3.2: Caractéristiques techniques de la cellule de E4 (et de son circuit électrique) utilisée dans nos expériences sur l'³He confiné dans l'aérogel (paramètres fort champ, 37,3 mT).

son bruit électrique ramené à l'entrée de la détection synchrone est de $\sqrt{V^2} \approx 5 \mu \text{ V}_{rms}$).

Il est décrit sommairement dans le chapitre 4.

Les valeurs présentées dans cette section sont nécessaires à la compréhension de certaines propriétés, et à l'évaluation chiffrée de certaines grandeurs. Cette cellule aérogel a été réutilisée pour nos calibrations de fils vibrants contre la RMN du platine (sections 5.2 et 5.4). L'aérogel dans son tube a simplement été remplacé par un tube rempli de poudre de platine.

RÉSONANCE MAGNÉTIQUE NUCLÉAIRE

Les principales mesures réalisées au cours de cette thèse sont des mesures de résonance magnétique nucléaire (RMN). Nous nous devons donc de présenter les bases de cette technique, et renvoyons pour une étude détaillée à l'excellent ouvrage de référence d'Abragam [228].

A la suite de ces rappels, nous présentons les calibrations que nous avons été amenés à faire dans l'étude de nos résultats. Enfin, nous présentons quelques points particuliers à l' ^3He -2D que nous avons contribué à développer.

4.1 Quelques bases

Les atomes d' ^3He ont un spin nucléaire¹ $S = 1/2$. Dans un champ magnétique $\vec{B}$ parallèle à l'axe $\vec{z}$, les deux états de projection de ces spins nucléaires $\vec{S}$ suivant $\vec{z}$ ($\sigma = \pm 1/2$) donnent lieu à une différence d'énergie Zeeman $2g_N\mu_N(1/2)|\vec{B}|$. Nous notons dans ce manuscrit μ_N le magnéton nucléaire et g_N le facteur de Landé (nucléaire) de l' ^3He . Les valeurs numériques, tirées du Handbook [209], sont fournies en annexe A.

Si l'on cède au système de l'énergie $\mathcal{E}$ sous la forme de radiofréquence $\mathcal{E} = hf = \hbar\omega$, il est possible d'exciter les transitions de l'état $\sigma = +1/2$ à l'état $\sigma = -1/2$ lorsque $\mathcal{E}$ correspond exactement à la séparation Zeeman. Cette position de résonance correspond à $f = f_0$ où f_0 s'appelle la fréquence de Larmor. Cette fréquence se déduit du champ magnétique $|\vec{B}|$ lorsqu'il est en résonance (nous l'écrivons alors B_L , champ de Larmor) par $f_0 = \frac{\gamma}{2\pi}B_L$. $\gamma = (g_N\mu_N)/(\hbar)$ s'appelle le facteur gyromagnétique.

L'équation d'évolution quantique du système de spins est similaire à celle d'un macro-spin classique, qui précesse à la fréquence f_0 autour du champ magnétique, l'angle entre les deux vecteurs étant d'autant plus grand que la puissance injectée est plus grande. Cette image classique est souvent invoquée pour décrire les propriétés RMN des assemblées de

¹Pour des raisons de commodité, nous désignons dans l'ensemble de ce manuscrit les spins nucléaires par S , et non I comme il est d'usage.

spins.

La technique de RMN consiste donc à exciter cette transition, et à la détecter. Sa mesure précise permet de remonter aux propriétés physiques du système de spins nucléaires, c'est ce que nous décrivons brièvement ci-dessous.

Sous l'action d'un champ magnétique $\vec{B}$, l'assemblée de spins nucléaires acquiert une aimantation $\vec{M}$. Ces deux vecteurs sont reliés par le tenseur de susceptibilité $[\chi]$:

$$\vec{M} = [\chi]\vec{B}$$

Dans les cours élémentaires (par exemple Diu et al. [215]), l'aimantation $\vec{M}$ est définie comme le rapport du moment magnétique total $\vec{M}$ au volume V de l'échantillon. Cette définition est pertinente pour une assemblée tridimensionnelle de spins, mais ne l'est plus pour un système bidimensionnel comme l' ^3He -2D. C'est pourquoi nous confondrons en deuxième partie l'aimantation et le moment magnétique total, par abus de langage.

En RMN, le champ magnétique $\vec{B}$ se décompose en deux composantes $\vec{B} = \vec{B}_{statique} + \vec{B}_{RF}$:

$$\vec{B}_{statique} = B\vec{z}$$

$$\vec{B}_{RF} = 2H_1 \cos(\omega t)\vec{x}$$

$\vec{B}_{statique}$ est le champ statique (vertical) imposé sur le système, et $\vec{B}_{RF}$ est le champ radiofréquence (dans le plan horizontal) qui autorise les transitions. Ce champ radiofréquence se décompose en la somme de deux ondes circulaires, tournant dans le plan horizontal : $\vec{B}_{RF} = H_1[\cos(+\omega t)\vec{x} + \sin(+\omega t)\vec{y}] + H_1[\cos(-\omega t)\vec{x} + \sin(-\omega t)\vec{y}]$. De ces deux vibrations, seule la première satisfait la condition de résonance, et est absorbée par le système de spins.

En pratique, $H_1 \ll B$, et l'on peut appliquer la théorie de la réponse linéaire². On montre que dans notre configuration, le tenseur de susceptibilité $[\chi]$ est diagonal et amène :

$$\mathcal{M}_x = H_1[\chi'(\omega) \cos(\omega t) + \chi''(\omega) \sin(\omega t)]$$

$$\mathcal{M}_y = H_1[-\chi'(\omega) \sin(\omega t) + \chi''(\omega) \cos(\omega t)]$$

$$\mathcal{M}_z = \chi_0 B$$

χ_0 est la susceptibilité statique (par définition $\chi'(0)$), et χ' et χ'' sont nommées respectivement dispersion et absorption. Ces deux quantités vérifient les relations de Kramers-

²Nous avons vérifié ce point dans notre système. D'une part, nous avons réalisé des mesures en fonction de l'injection radiofréquence (commentaire en section 4.2), mais aussi nous avons ponctuellement vérifié que les relations de Kramers-Kronig, détaillées ci-après, sont vérifiées.

Kronig :

$$\chi'(\omega) - \chi_\infty = \frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\chi''(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega'$$

$$\chi''(\omega) = -\frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\chi'(\omega') - \chi_\infty}{\omega' - \omega} d\omega'$$

où $\mathcal{P}$ signifie " parité principale ", et χ_∞ représente la réponse du système χ' aux plus hautes fréquences. $\chi''(\omega)$, qui chiffre le taux d'absorption d'énergie par le système à la pulsation ω , est nous l'avons dit une fonction piquée autour de la valeur $\omega_0 = 2\pi f_0$. Si l'on suppose que la largeur de cette fonction, que nous notons pour l'instant arbitrairement $\Delta\omega$ est suffisamment faible (soit $\Delta\omega \ll \omega_0$), on montre que :

$$\mathcal{M}_z \propto \mathcal{P} \int_{-\infty}^{+\infty} \chi''(\omega') d\omega'$$

L'aimantation statique est proportionnelle à l'aire de la raie d'absorption χ'' , alors que l'on montre de la même façon que l'aire de la dispersion χ' est nulle. Expérimentalement, nous déterminons donc $\mathcal{M}_z$ par intégration numérique du signal χ'' que nous avons digitalisé.

La susceptibilité (complexe) $\bar{\chi} = \chi' - i\chi''$ peut se mesurer de deux façons. Soit directement, en balayant le champ magnétique de mesure (à fréquence radiofréquence fixe), ou le contraire (balayage en fréquence à champ fixe), c'est ce que l'on nomme la RMN continue. Soit en réalisant un pulse radiofréquence. Le signal d'induction $G(t)$ recueilli dans la bobine radiofréquence à la suite du pulse est alors la transformée de Fourier de l'absorption χ'' . Si l'on utilise l'image semi-classique du macro-spin, on dit que le pulse a défléchi par rapport à $\vec{B}$ l'aimantation d'un angle ϕ dépendant de la puissance radiofréquence, et que le signal d'induction correspond à sa précession lors de son retour à l'équilibre.

Nos mesures sont principalement des mesures de RMN continue. Nous balayons, à fréquence fixe, le champ magnétique autour de sa valeur de résonance (typiquement 2 mT pour $B_L \approx 30$ mT). Le principe de notre spectromètre est présenté en fig. 4.1, et les valeurs des paramètres, pour nos deux types d'expériences, sont données en chapitre 3. Les réglages et calibrations sont explicités brièvement en section 4.2. Sur ce schéma, nous distinguons trois fonctions : l'injection de la radiofréquence avec son atténuation, le circuit résonant contenant la bobine RMN, qui permet déjà d'amplifier le signal électrique, et enfin la partie détection. L'absorption d'énergie par le système se voit au niveau de la bobine RMN par une variation de l'ordre de 10^{-4} sur sa tension. Nous la mettons en évidence à l'aide d'un amplificateur différentiel qui permet de compenser en grande partie le signal électrique provenant de l'injection. Les raies de résonance $\bar{\chi}$ sont finalement sauvegardées sur ordinateur via une carte DAQ 4096 points.

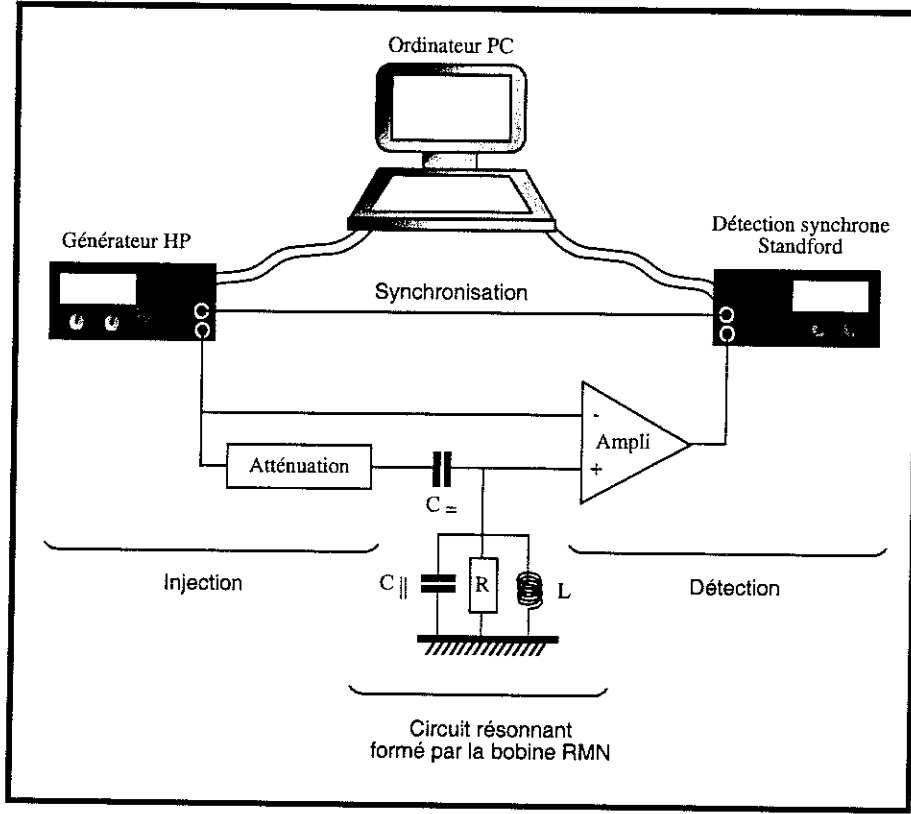


FIG. 4.1: Schéma de principe du spectromètre RMN continue. Les valeurs relatives aux différents composants sont citées en chapitre 3. L'injection est faite à l'aide d'un générateur de signaux HP, la détection à l'aide d'une détection synchrone Stanford. L'ensemble est piloté par un ordinateur qui stocke les données. Le circuit résonnant formé par la bobine RMN est décrit par un circuit RLC, commenté dans le texte.

Quelques relations concernant notre dispositif électrique sont utiles (et employées en chapitre 3) :

$$f_0 = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC_{\parallel}}}$$

$$Q = \frac{f_0}{\Delta f}$$

$$Z_{\parallel} = QL2\pi f_0$$

$$Z_{=} = \frac{1}{2\pi f_0 C_{=}}$$

$$G_{rés} = \frac{Z_{\parallel}}{Z_{\parallel} + Z_{=}}$$

$$a = \frac{1}{nS2\pi f_0}$$

où n représente le nombre de spires de la bobine RMN et S sa section³. Δf est la largeur à mi-hauteur de la résonance RLC en phase (mode $X - Y$ sur la détection synchrone), ou encore la largeur à $1/\sqrt{2}$ pour le signal mesuré en mode $R - \Theta$. Elle correspond à la dissipation d'énergie dans le circuit, représentée par la résistance R . Les autres variables ont déjà été définies.

Quelques mesures de RMN pulsée ont été réalisées sur l' ^3He confiné dans l'aérogel. C'est le même spectromètre qui a servi à nos mesures sur de la poudre de platine (section 5.2). Le spectromètre présenté en fig. 4.1 est cette fois remplacé par un amplificateur de puissance (200 Watts) et un générateur de rafales contrôlé par ordinateur à l'injection, et un mélangeur pour l'acquisition (fréquence de travail 13 kHz). La sauvegarde des données passe encore par une carte DAQ 4096 points. Ces mesures RMN sur l' ^3He confiné concernent la détermination du coefficient de diffusion de spin (section 11.2). Pour ce faire, nous avons utilisé la technique des échos de spin, dont on peut trouver une description dans Abragam [228]. En quelques mots, disons que nous appliquons deux pulses distants d'un temps τ . Le premier pulse défléchit les spins nucléaires, et le second est suivi d'une refocalisation de ces spins après à nouveau un temps τ . La hauteur de cet écho en fonction de τ permet de remonter au coefficient de diffusion.

Pour un solide peu polarisé ou un liquide de Fermi, les raies de résonance χ'' sont symétriques⁴ autour de ω_0 , et les χ' antisymétriques. Nous représentons en fig. 4.2 des raies typiques que nous avons mesurées sur l' ^3He bidimensionnel, et l' ^3He liquide confiné dans l'aérogel (sans couches magnétiques solides).

Les champs magnétiques $\vec{B}_{statique}$ et $\vec{B}_{RF}$ contribuent à l'Hamiltonien $\mathcal{H}$ du système par deux termes ($\mathcal{H}_{zeeman}$ et $\mathcal{H}_{RF}$), techniquement indispensables mais faibles. Le comportement de $\mathcal{M}_z$ est lui défini par $\mathcal{H}_{interaction}$, interaction entre spins nucléaires. C'est ce terme qui contient la physique du système. La thermalisation du système de spins et la relaxation de la puissance injectée se fait par le biais d'un terme⁵ $\mathcal{H}_{réseau}$, également très faible mais dont l'existence est tout aussi indispensable. En RMN pulsé sur les liquides normaux et les solides, on en rend compte par un temps de relaxation T_1 .

On montre que la forme de la raie RMN (si l'on considère que le champ magnétique est parfaitement homogène) est définie par les termes dans l'Hamiltonien $\mathcal{H}$ qui ne commutent pas avec l'opérateur S_x (projection de l'opérateur de spin suivant $\vec{x}$). Cette propriété n'est

³En toute rigueur, l'expression fournissant a (rapport du champ radiofréquence à la tension sur la bobine) suppose que le champ magnétique est homogène dans la cellule. Cette approximation, suffisante pour un ordre de grandeur, donne une borne supérieure.

⁴Lorsque les gradients de champs magnétiques sont suffisamment faibles, les symétries de l'Hamiltonien du problème garantissent que les raies RMN sont symétriques (Abragam [228]).

⁵Le nom de " réseau " provient historiquement de la description du cas des solides, où le degré de liberté de spin est couplé à l'agitation physique des atomes porteurs du moment nucléaire.

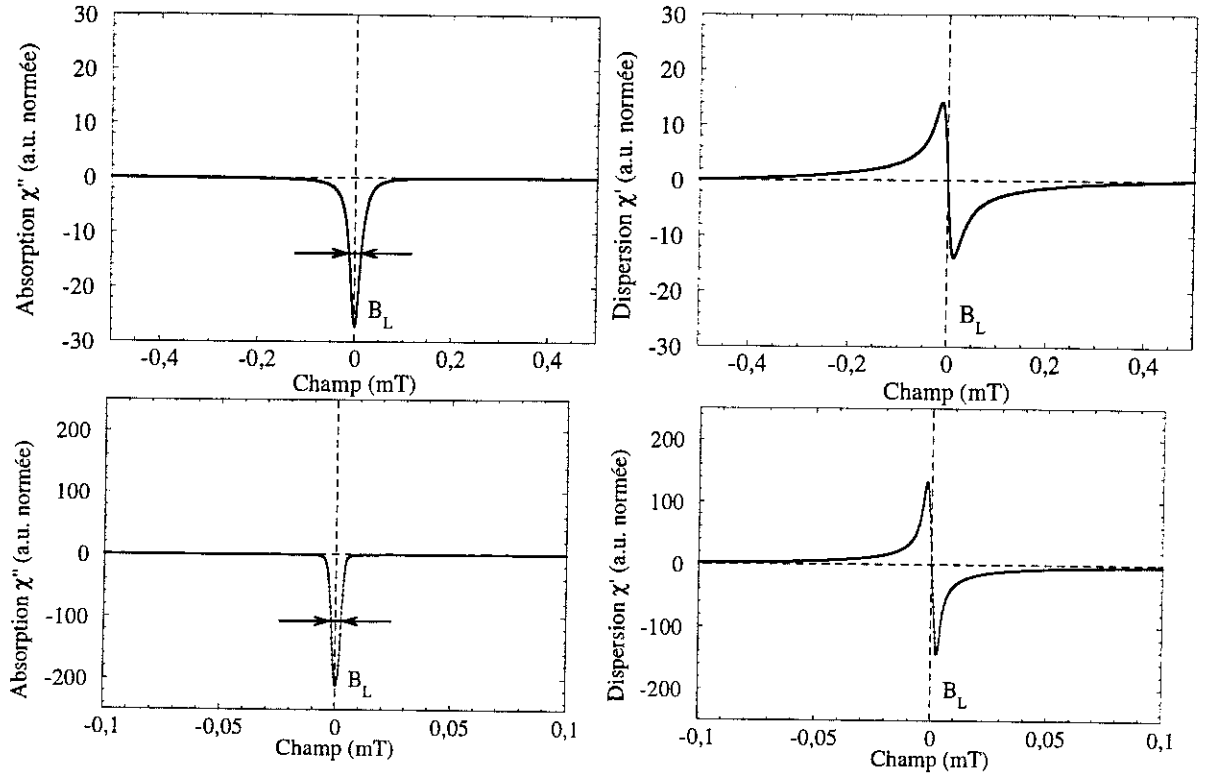


FIG. 4.2: Raies de résonance typiques mesurées en RMN continue à 3 mK. Sur la gauche, nous représentons l'absorption, et sur la droite la dispersion en fonction du champ magnétique. Les deux sont normées à l'aire de l'absorption, et les verticales pointillées représentent les champs de Larmor. En haut : cas de l' ^3He -2D en sous-monocouche sous 30,51 mT (cellule C_5 , 9,28 at/nm² et 3,27 mK). En bas : cas de l' ^3He confiné dans l'aérogel sous 37,3 mT (17 bar, l' ^3He adsorbé a été remplacé par de l' ^4He , 3,26 mK). Les largeurs à mi-hauteur, très différentes, sont de 0,026 mT pour le solide bidimensionnel et 0,0044 mT pour le liquide confiné. Pour le solide, elle est due à l'interaction dipolaire, alors que le liquide mesure directement l'inhomogénéité du champ magnétique (sections 4.1 et 11.2).

vérifiée que par la dernière interaction entre spins d'importance, l'interaction dipolaire $\mathcal{H}_{\text{dipolaire}}$: chaque spin nucléaire rayonne lui-même un champ magnétique sur l'assemblée des autres spins⁶. Nous écrivons :

$$\mathcal{H}_{\text{Zeeman}} = - \sum_i^N g_N \mu_N \vec{S}_i \vec{B} \quad (4.1)$$

$$\mathcal{H}_{\text{RF}} = - \sum_i^N g_N \mu_N \vec{S}_i 2\vec{H}_1 \cos(\omega t) \quad (4.2)$$

$$\mathcal{H}_{\text{dipolaire}} = \sum_{i < j} \mu_0 \frac{(g_N \mu_N)^2}{4\pi} \frac{(\vec{S}_i \vec{S}_j - 3(\vec{S}_i \hat{r}_{ij})(\vec{S}_j \hat{r}_{ij}))}{|\vec{r}_{ij}|^3} \quad (4.3)$$

La somme $i < j$ se fait sur toutes les paires ij , en ne comptant chaque couple qu'une seule

⁶On déduit cette forme de l'expression classique, en appliquant le principe de correspondance. Cette formule est donnée dans Abragam [228], exprimée en unités CGS.

fois, et N représente le nombre total de spins. Nous mesurons la position de la résonance RMN à l'aide du minimum de la courbe χ'' , ou encore à l'aide de son premier moment. L'information sur la largeur du pic est tirée de la largeur à mi-hauteur, ou du second moment de la raie d'absorption χ'' . Aussi, tant que la forme du pic est constante, on a simplement $M \propto \delta H$ si M est l'aire, H la hauteur et δ la largeur de la raie.

Dans le cas de l' ^3He superfluide, l'interaction dipolaire donne lieu à une forme de raie compliquée, image de la structure du paramètre d'ordre : sa texture (section 8.5 et sous-section 10.1.2). Dans le cas de l' ^3He -2D, l'interaction dipolaire ne devient raisonnablement importante que lorsque la polarisation du film est grande. Du fait du substrat de graphite, elle donne lieu à une déformation particulière de la raie RMN, qui se décale et s'élargit. Nous discutons ces faits en section 4.3. Concernant ces différentes échelles d'énergie, quelques ordres de grandeur sont calculés pour l' ^3He -2D en section 7.6.

Dans les solides et les liquides normaux, la largeur dipolaire est réduite par le mouvement des atomes (leur déplacement, ou leur échange). La forme de raie contient donc une information sur l'interaction entre spins, dont on rend compte en RMN pulsée par un temps caractéristique T_2 . En revanche, en présence d'un champ magnétique inhomogène d'étalement ΔB , la réponse $\bar{\chi}$ du système est la convolution de la réponse en champ homogène par la distribution de champ. Lorsque l'inhomogénéité est dominante, la largeur du pic RMN obtenu est une mesure du gradient de champ imposé sur la cellule (fig. 4.2). Ces points sont discutés dans la suite de ce chapitre, ainsi qu'en section 11.2.

4.2 Calibrations du dispositif expérimental

L'utilisation du spectromètre demande quelques précautions et calibrations. En premier lieu, nous avons mesuré tous les paramètres jouant un rôle dans notre chaîne d'acquisition ; ils sont listés en chapitre 3. Pour l'expérience sur l' ^3He -2D, nous avons spécialement abaissé la fréquence RMN de mesure, en insérant sur la partie froide du circuit une capacité supplémentaire. Nous avons ainsi pu faire des mesures dans un champ magnétique 3,70 fois plus faible que dans la précédente expérience (Thèse de Bäuerle [201] 1996).

Pour toutes nos mesures, nous avons fait attention à ce que la phase entre la détection synchrone et le générateur de signaux soit correctement ajustée. Le critère est que la raie RMN mesurée sur les systèmes expérimentaux soit, à haute température, symétrique en phase et antisymétrique en quadrature (section 4.1).

Ce réglage effectué, la raie RMN nous a servi à calibrer nos trois bobines de champ magnétique supraconductrices. Dans la bobine principale, nous imposons un courant persistant qui crée le champ principal $\vec{B}$. La définition très précise de la fréquence d'excitation utilisée permet, via le facteur gyromagnétique, de remonter à la valeur de B .

Nous balayons notre champ en imposant des rampes de courant dans une bobine de modulation. En changeant la fréquence de résonance légèrement, nous pouvons mesurer la caractéristique $B(I)$ de cette bobine. C'est évidemment une droite, de pente 2,8 mT/A (à $\pm 5\%$ près sur toutes nos calibrations, la stabilité au cours de l'une d'entre elle étant de l'ordre du %).

La dernière de nos bobines nous permet de jouer sur l'homogénéité du champ magnétique. Elle impose un gradient G_z , qui se traduit par un étalement $\Delta B = G_z \mathcal{L}$ du champ sur la taille $\mathcal{L}$ de la cellule. La largeur de la raie RMN à mi-hauteur est alors une mesure directe de ΔB . Les dimensions de nos cellules, ainsi que nos mesures de diffusion de spin (section 11.2), nous donnent un gradient proportionnel au courant imposé dans cette bobine, la pente étant en accord avec les caractéristiques du constructeur (0,64 mT/cm/A).

Pour nos mesures de RMN continue, nous avons pris garde à rester dans le régime des faibles injections radiofréquence. Dans le cas de l' ^3He -2D, dès que la puissance est trop forte (typiquement $H_1 = 5 \cdot 10^{-9}$ T à 200 μK) on note un échauffement de l'échantillon de graphite par courant de Foucault. Ce phénomène est évidemment absent de nos mesures sur l' ^3He confiné. En revanche, nous pouvons dans ces dernières expériences remonter à des estimations des temps de relaxation (T_1 et T_2) propres au système (nous renvoyons à la section 11.2).

Dans le cas de nos mesures de RMN pulsée⁷, nous avons pris soin de définir le niveau d'injection nécessaire aux déflexions du spin classique de $\pi/2$ et π .

Deux techniques de réchauffement en cours d'acquisition RMN ont été employées : une mesure où la température du réfrigérateur est réglée, et un nombre N de raies RMN sont acquises et moyennées (cas de l' ^3He -2D), et une mesure où le cryostat est réchauffé continûment et très lentement (cas de l' ^3He confiné dans l'aérogel). Pour ces deux cas nous avons développé des logiciels d'analyse appropriés⁸. La technique de moyennage nous permet de récupérer en sensibilité lorsque le signal devient trop faible (haute température), la convergence étant en $1/\sqrt{N}$ (voir section 5.3). Globalement, nous obtenons des barres

⁷Nota : le logiciel sauvegarde le signal d'induction avec pour unité sur l'axe des temps le nombre de fronts de l'horloge d'acquisition.

⁸Programmes utilisant le langage Scilab, développé par l'INRIA [176]. Ils nous permettent à la fois d'ajuster la ligne de base des raies RMN continues, et de réaliser l'analyse statistique.

d'erreur de l'ordre de $\pm 3\%$ sur l'aimantation⁹, et de l'ordre de $0,5 \cdot 10^{-3}$ mT sur les champs¹⁰. Notons la qualité de ces amplificateurs, développés au laboratoire.

4.3 Forme de raie RMN de l'³He-2D solide

L'interaction dipolaire (4.3) est la source d'une déformation des raies RMN du solide adsorbé, lorsque sa polarisation est suffisante. Nous montrons dans cette section que l'étude de la forme des raies permet, du moins en principe, de remonter à des informations pertinentes pour la physique de l'³He-2D.

L'analyse d'Abragam [228] montre que l'Hamiltonien dipolaire (4.3) peut se réduire à :

$$\mathcal{H}'_{\text{dipolaire}} = \sum_{i < j} \frac{3}{2} \mu_0 \frac{(g_N \mu_N)^2}{4\pi} (1 - 3 \cos^2 \Theta_{ij}) \frac{S_{zi} S_{zj}}{|\vec{r}_{ij}|^3} \quad (4.4)$$

la somme ne compte encore une fois chaque couple ij qu'une seule fois. $\vec{r}_{ij}$ représente le vecteur joignant les spins i et j , et l'angle Θ_{ij} est formé par $\hat{r}_{ij}$ (direction du vecteur) et $\vec{z}$ (également axe du champ magnétique $\vec{B}$). Dans l'expression (4.4), on ne conserve que les termes du premier ordre en théorie des perturbations, et on omet les produits scalaires du type $\vec{S}_i \vec{S}_j$ (ces termes commutent avec S_x et n'influencent pas la forme de raie). En revanche, l'analyse quantique de l'Hamiltonien dipolaire apporte un facteur $3/2$ qui est remplacé par un 1 en mécanique classique. Il provient des termes dits " flip-flop ".

Notre système étant bidimensionnel, nous décomposons $\cos \Theta_{ij} = \cos \Theta \cos \phi_{ij}$. Θ est l'angle entre le champ magnétique suivant $\vec{z}$ et le plan, et ϕ_{ij} l'angle entre $\hat{r}_{ij}$ et la projection de $\vec{z}$ dans ce plan.

L'effet de l'Hamiltonien réduit $\mathcal{H}'_{\text{dipolaire}}$ est double : au premier ordre, il donne lieu à un champ magnétique proportionnel à la polarisation et à une largeur de raie RMN finie et constante.

Pour ce qui est du champ, nous négligeons les fluctuations et écrivons : $\langle S_{zk} \rangle / S \approx P$ où P est la polarisation du film. Il est alors possible de réécrire $\mathcal{H}'_{\text{dipolaire}}$ sous la forme :

$$\mathcal{H}'_{\text{dipolaire}} = - \sum_i^N g_N \mu_N S_{zi} b_i$$

⁹Rappelons que la mesure de tension est une mesure différentielle, le signal à détecter étant de l'ordre de 10^{-4} sur la bobine. Ceci signifie que nos amplificateurs sont stables à un niveau meilleur que 10^{-6} .

¹⁰Cette valeur est une borne supérieure, définie non pas par notre détection, mais par notre système d'acquisition : nous avons noté, par exemple, que la mise en veille de l'écran Windows modifiait notre vitesse d'acquisition RMN et déformait très légèrement les raies RMN. Néanmoins, cet effet est faible et nos mesures restent extrêmement précises.

$$b_i = -\frac{3}{2}\mu_0 \frac{|g_N\mu_N S|}{4\pi} P \sum_{i \neq j} \left(1 - \frac{3}{2}(\cos^2 \Theta)[2 \cos^2 \phi_{ij}] \right) \frac{1}{|\vec{r}_{ij}|^3}$$

où b_i est le champ dipolaire moyen (suivant $\vec{z}$) rayonné par tous les autres spins sur le spin i . Cette fois, la somme $i \neq j$ compte tous les liens ij deux fois.

Pour ce qui est de la largeur, nous utilisons la relation sur le second moment : $\Delta\omega^2 = -tr\{[\mathcal{H}'_{\text{dipolaire}}/\hbar, S_x]^2\}/tr\{S_x^2\}$. $\Delta\omega$ est alors la largeur tirée du second moment en unité de pulsation, et $tr\{\}$ représente la trace des opérateurs mis en jeu. En toute rigueur, cette expression se limite au cas du solide paramagnétique, et l'on obtient :

$$\Delta\omega^2 = \left[\frac{3}{2}\mu_0 \frac{(g_N\mu_N)^2}{\hbar 4\pi} \sqrt{\frac{S(S+1)}{3}} \right]^2 \frac{1}{N} \sum_{i \neq j} \left(1 - \frac{3}{2}(\cos^2 \Theta)[2 \cos^2 \phi_{ij}] \right)^2 \frac{1}{|\vec{r}_{ij}|^6}$$

où les notations sont les mêmes que précédemment, mais la somme $i \neq j$ est cette fois une somme double, sur tous les couples ij comptés deux fois. La largeur, définie en unité de champ magnétique est simplement donnée par $\Delta b = \Delta\omega/\gamma$.

Nous avons évalué ces sommes dans le cas d'une plaque sur laquelle les spins sont agencés selon un réseau triangulaire. Elles ont été calculées pas à pas en rajoutant, à un noyau hexagonal, à chaque étape une nouvelle couronne (hexagonale) de spins en périphérie. Le champ b_i est évalué au centre. Nous avons poussé le calcul jusqu'à plus de 10^6 spins, ce qui représente pour nous le cas limite de la plaque infinie.

Pour simplifier l'écriture, nous avons posé diverses constantes :

$$b_i = -\frac{3}{2}\mu_0 \frac{|g_N\mu_N S|z}{4\pi d^3} A_i (2 - 3B_i \cos^2 \Theta) P$$

$$\Delta b = \frac{3}{2}\mu_0 \frac{|g_N\mu_N S|z}{4\pi d^3} \sqrt{\frac{S(S+1)}{3S^2}} \frac{A_1}{4} \sqrt{2^2 - 2(3 \cos^2 \Theta)2B_1 + (3 \cos^2 \Theta)^2 B_2^2}$$

où d est le paramètre de maille du réseau et z sa coordonnée (pour le réseau triangulaire, $z = 6$). Dans notre cas $S = 1/2$; $A_i \approx A$, $B_i \approx B$ en milieu infini, ainsi que A_1 , B_1 et B_2 sont les constantes à calculer numériquement. Nos résultats sont listés dans le tableau 4.1.

Le terme angulaire de b_i vaut +1 si le champ magnétique est parallèle au plan, et -2 s'il lui est orthogonal. Il est nul si le champ fait un angle $\Theta \approx 33^\circ$ avec le plan. Pour Δb , le terme angulaire est maximum à 2,34 si le champ est parallèle à la plaque, et minimal à 1,16 s'il fait un angle $\Theta \approx 48^\circ$ avec elle. Il est égal à 2 si le champ lui est orthogonal.

A notre connaissance, les seuls travaux visant à calculer les effets du champ dipolaire dans l' ^3He -2D solide sont ceux de l'équipe de Los Angeles. Dans l'article de Bozler et al. [185] 1983, les auteurs évaluent pour $P = 1$ un champ dipolaire par spin b_i de 0,163 mT

pour $d = 3,32\text{\AA}$ et $\vec{B}$ parallèle au plan des spins. Cette valeur correspond au calcul classique, c'est-à-dire qu'ils ont pris 1 au lieu de la valeur correcte quantique de $3/2$ pour le préfacteur global.

Dans les articles suivants, Friedman et al. [186] 1986 et [187] 1989 utilisent le calcul quantique. En revanche, les valeurs qu'ils publient minimisent le facteur A que nous avons introduit d'environ 10 %. Nous supposons que c'est parce qu'ils n'ont pas sommé sur suffisamment de spins dans leurs calculs numériques. Nous considérons que nos valeurs sont meilleures, elles tiennent compte de plus d'un million de spins.

La déformation des raies sous l'effet du champ dipolaire a bien entendu été observée dans d'autres expériences, par exemple Godfrin et al. [100] 1988. Nous représentons en fig. 4.3 le décalage et l'élargissement des raies RMN tels qu'ils sont mesurés sur une monocouche, dans notre cellule C_5 et pour deux champs distincts.

Expérimentalement, les plans où s'adsorbent les atomes d' ^3He sont les plaquettes de graphite qui constituent notre substrat (feuilles de Papyex). Nous commentons leurs propriétés en section 7.2. Disons simplement ici que leurs tailles et leurs orientations par rapport au champ magnétique $\vec{B}$ peuvent être décrites par des distributions en taille et en angle que l'on peut obtenir par diffraction de neutrons, par exemple. Ce sont ces distributions qui sont à l'origine de la forme très particulière des raies RMN aux plus basses températures (pour le cas ferromagnétique très polarisé, voir nos résultats en section 8.4). En moyenne, les plaquettes sont parallèles au plan des feuilles de Papyex, ce qui fait qu'un changement d'orientation de la cellule vis-à-vis de $\vec{B}$ modifie la forme des raies RMN (voir par exemple Bozler et al. [185] 1983).

Un ajustement direct des raies RMN à l'aide de ces distributions peut être tenté (Godfrin [88] et Bäuerle [201] 1996). Ces ajustements peuvent être à présent affinés à l'aide de nos nouveaux résultats ; nous n'avons malheureusement pas eu le temps de le faire. Insistons

Constante	valeur
A	0,919
B	1
A_1	0,842
B_1	1
B_2	1,225

TAB. 4.1: Paramètres calculés numériquement pour la forme de raie dipolaire. Il s'agit des valeurs extrapolées au-delà des 10^6 spins placés en hexagone sur un plan.

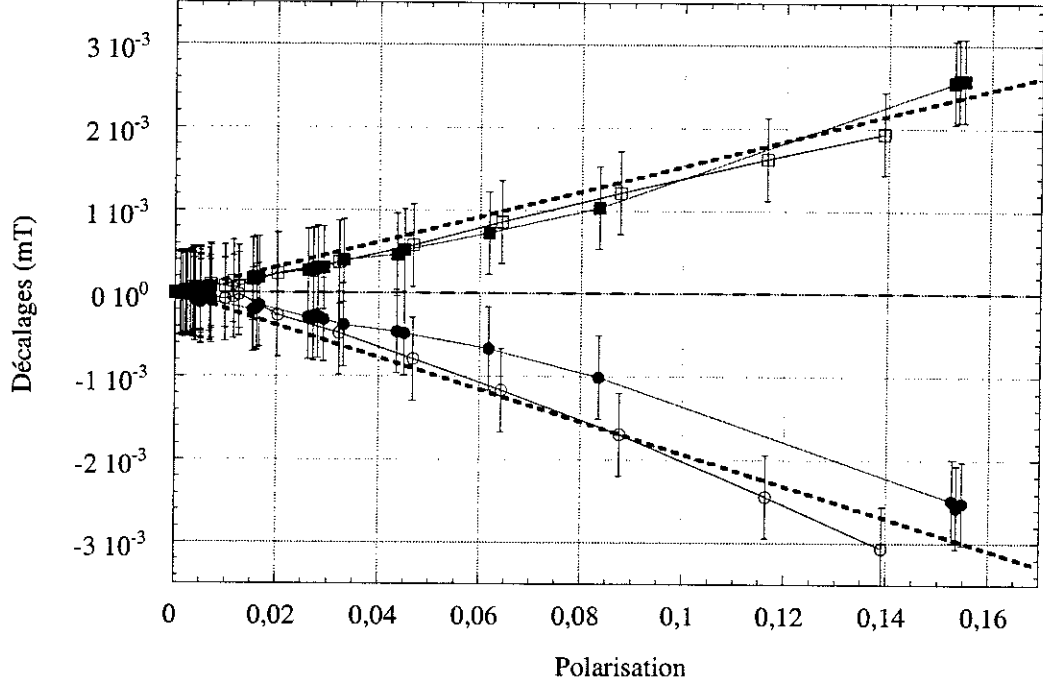


FIG. 4.3: Opposé du décalage et élargissement des raies RMN de l' ^3He -2D en monocouche. Nous représentons la position du minimum de la raie χ'' ($\bullet$, $\circ$), et l'élargissement de sa largeur à mi-hauteur ($\blacksquare$, $\square$), en fonction de la polarisation du film. La cellule utilisée est la cellule C_5 , dont les caractéristiques sont discutées dans le texte. Nous représentons nos résultats, avec une densité de $9,28 \text{ at/nm}^2$, et un champ magnétique de $30,51 \text{ mT}$ (symboles pleins), et les mesures de Bäuerle [201] 1996 pour $9,30 \text{ at/nm}^2$ et 113 mT (symboles creux). Dans notre cas la largeur à mi-hauteur vers 10 mK est de l'ordre de $0,025 \text{ mT}$. Les barres d'erreur représentées sont de $0,5 \cdot 10^{-3} \text{ mT}$. L'effet est dû à la polarisation, et l'ordre de grandeur de cette déformation correspond, à la distribution de plaquettes près dans le graphite, à nos simulations (droites pointillées de pentes $1,54 \cdot 10^{-2} \text{ mT}$ et $-1,93 \cdot 10^{-2} \text{ mT}$ discutées dans le texte).

cependant sur l'intérêt de ceux-ci :

- Ces ajustements sont une validation des distributions de plaquettes mesurées par des techniques complètement différentes. Celles-ci justifient la variation similaire en fig. 4.3 de la largeur et de la position (alors que la largeur est supposée fixe), et la valeur des pentes extraites par les droites pointillées. Notre évaluation, si l'on omet le terme angulaire, est $b_i = 1,77 \cdot 10^{-1} P \text{ mT}$.
- Le second moment Δb que nous avons calculé ici est réduit par les interactions entre spins, l'échange dans la couche (section 7.4). Pour la monocouche, cet échange est très faible mais influence néanmoins le second moment (Rapp et Godfrin [45] 1993). La comparaison des largeurs ajustées et des largeurs dipolaires calculées donne donc une information sur l'interaction entre spins. Notre évaluation est $\Delta b \approx 0,095 \text{ mT}$ pour le second moment (plaquettes infinies parallèles au champ, $9,28 \text{ at/nm}^2$), alors que nous mesurons $0,025 \text{ mT}$ sur la largeur à mi-hauteur à 10 mK .

- Les résultats calculés ici sont en toute rigueur valables pour le solide paramagnétique peu polarisé. L'étude en dehors de ce régime, tant expérimental que théorique, doit amener également des informations sur l'échange dans les couches solides.
- Enfin, l'aspect peut-être le plus important de ces ajustements est leur utilisation pratique : le décalage de la résonance RMN est directement relié au paramètre de maille d , tout comme la largeur du pic (lois en $1/d^3$). Nous avons donc, en principe, une mesure RMN de la densité des couches adsorbées.

Nous espérons que dans l'avenir des développements sur ces points permettront d'obtenir de nouvelles informations sur la physique des couches solides d' ^3He .

A plus haute température, l'étude de la position du pic RMN et de sa largeur est également source d'information. En fig. 4.4, nous montrons nos résultats sur une monocouche d' ^3He adsorbé, dans 30,51 mT. Au-dessus de 50 mK environ, la raie se rétrécit, et

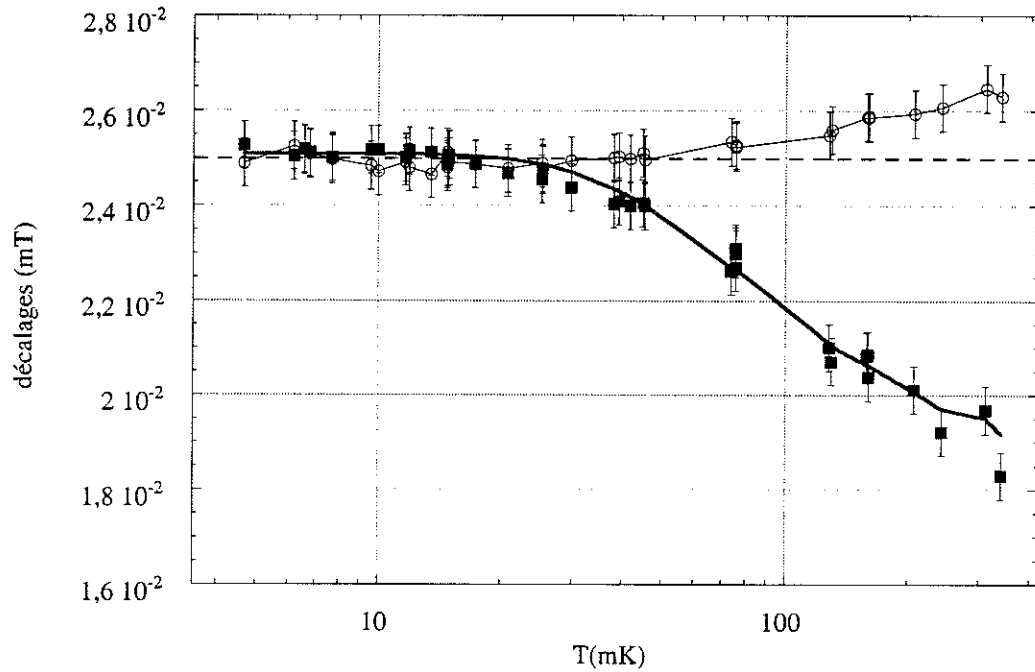


FIG. 4.4: Comportement haute température des raies RMN de l' ^3He -2D. Nous utilisons la cellule C_5 dans 30,51 mT, pour une densité de 9,28 at/nm². Nous représentons la position du pic (○, opposé des données arbitrairement décalées d'une constante) et sa largeur à mi-hauteur Δb (■) en fonction de la température. Au-delà de 50 mK environ, la raie se rétrécit et se décale légèrement. Le trait plein correspond à un ajustement de la largeur basée sur les arguments d'Abragam [228] : $\Delta b^2 = \Delta b_1^2 + \Delta b_2^2 \frac{2}{\pi} \arctan(\Delta b \gamma \tau)$ où $\tau = \tau_0 e^{U/(k_B T)}$. L'expression self-consistante utilisée consiste en $\tau_0 = 9,3 \cdot 10^{-12}$ s et $U = 90$ mK, $\Delta b_1 = 0,014$ mT, $\Delta b_2 = 0,00275$ mT. A basse température, nous obtenons un plateau dans la largeur de raie vers 0,025 mT (largeur dipolaire), et à haute température nous en proposons un vers 0,014 mT (jamais atteint dans nos mesures). Les barres d'erreur représentées sont de $0,5 \cdot 10^{-3}$ mT.

se décale légèrement. Deux explications peuvent être invoquées pour rendre compte de cet

effet :

- Il peut s'agir d'un morceau de matière magnétique inclus dans la cellule, qui se polarise à plus basse température et crée un champ supplémentaire sur le film d' ^3He , élargissant et décalant la raie jusqu'à quelques dizaines de mK. D'ailleurs, un effet similaire (mais plus important) est observé dans le cas de notre cellule pour l'aérogel, et cette explication est retenue en section 11.2 : l'effet est indépendant de la pression appliquée, et de la couverture en ^4He . En revanche, il semble dépendre du champ magnétique $|\vec{B}|$ de mesure, ce qui pour cette interprétation est naturel.
- Il peut s'agir d'une propriété intrinsèque à l'Hamiltonien $\mathcal{H}_{interaction}$. En effet, l'agitation thermique est la source d'un mouvement supplémentaire au mouvement quantique des atomes, et peut donner lieu à ce rétrécissement. Empiriquement, on en rend compte en considérant que l'interaction correspond à une barrière de potentiel U , au-delà de laquelle les atomes sautent avec une fréquence $1/\tau$ écrite sous la forme $\tau = \tau_0 e^{U/(k_B T)}$ (loi de type Arrhenius, voir Abragam [228]). La dépendance de τ_0 et U au champ magnétique et à la densité du film n'est pas évidente a priori ; il est cependant raisonnable de penser qu'ils sont gouvernés en grande partie par le potentiel d'adsorption du substrat (voir la discussion de la section 7.3).

Cet effet a été observé sur différentes cellules expérimentales pour l' ^3He -2D (Godfrin [88] et Bäuerle [201] 1996). La première explication requiert alors que les inclusions magnétiques soient à l'intérieur des différents substrats de graphite, en proportions similaires. En revanche la comparaison, même sur une même cellule, des résultats en différents champs et pour différentes densités n'est pas aisée, car l'homogénéité du champ n'est pas toujours identique. Il est difficile de conclure sur l'influence de ces paramètres, et de nouvelles études sont nécessaires. Néanmoins, ce rétrécissement haute température de la raie RMN est commenté en section 7.6. Un ajustement semi-empirique, basé sur les propositions d'Abragam [228], est détaillé en fig. 4.4. Les paramètres extraits pourraient apporter de nouvelles informations sur l' ^3He -2D.

THERMOMÉTRIE

Lorsque l'on étudie un système à basse température, on rapporte finalement l'une de ses propriétés (par exemple, pour nous, l'aimantation $\mathcal{M}_z$) en fonction de la température. Il est donc au moins aussi important d'avoir une bonne résolution sur la température que sur la propriété physique mesurée.

De manière générale, on demande à un thermomètre d'avoir les propriétés suivantes (par exemple Pobell [210]) :

- Qu'il soit sensible dans la gamme de température étudiée.
- Que sa réponse soit la plus reproductible possible, même après l'avoir cyclé à température ambiante.
- Que sa loi de dépendance en température soit la plus simple possible.

On distingue d'ailleurs deux types de thermomètres. Les thermomètres primaires dont la loi est une propriété physique fondamentale qui ne nécessite aucune calibration ou ajustement, et les thermomètres secondaires, dont la loi est plus compliquée et/ou qui nécessitent une calibration préalable. En pratique, la différence entre ces deux types de thermomètre est souvent ténue.

La gamme de température explorée dans nos expériences va de 500 mK à des températures de l'ordre de 100 μ K, soit plus de trois ordres de grandeur. Différents thermomètres sont disponibles et utilisés au laboratoire, et remplissent de façon différente ces critères.

Citons le thermomètre paramagnétique par sel de CMN (nitrate de césium et magnésium), dont on peut trouver des descriptions dans Bäuerle [201] 1996 et Collin [107] 1998, le thermomètre à courbe de fusion extensivement utilisé par Triqueneaux [206] 2001, ou encore récemment le CBT (thermomètre à blocage de Coulomb), étudié entre autres par Gay [205] 2000.

Dans notre travail de thèse, nous avons été amené à utiliser des thermomètres résistifs (résistance de carbone), des thermomètres paramagnétiques (RMN du platine et de l' ^3He -2D en monocouche), et des fils vibrants. Nous décrivons brièvement ces thermomètres dans

les sections suivantes, et précisons les développements que nous avons été amenés à faire. Nous concluons, pour les fils vibrants, sur les oscillateurs microfabriqués en silicium que nous avons réalisés et étudiés. Dans un avenir proche, ils devraient remplacer les boucles de fils usuelles.

5.1 Résistance de carbone

La résistance d'une résistance de carbone croît à basse température, et peut être utilisée comme thermomètre (voir par exemple Pobell [210]). Cette technique est simple, et très précise sur une vaste gamme de température. En revanche, une telle résistance ne peut se décrire à l'aide d'une loi simple, et une calibration préalable est nécessaire. Sous certaines précautions, les résultats sont reproductibles même après cyclage de la résistance entre les basses températures et l'ambiante.

Dans nos expériences, nous avons utilisé couramment entre 7 mK et 500 mK la résistance R21 (Speer 100 Ω). Elle a été mesurée à l'aide du pont de mesure alternatif dernièrement développé au laboratoire, le TRMC2. Celui-ci est piloté par ordinateur. Il injecte un courant calibré dans la résistance, et mesure la tension à ses bornes (mesure en quatre fils).

En fig. 5.1, nous présentons la calibration de R21, ainsi qu'un ajustement empirique que

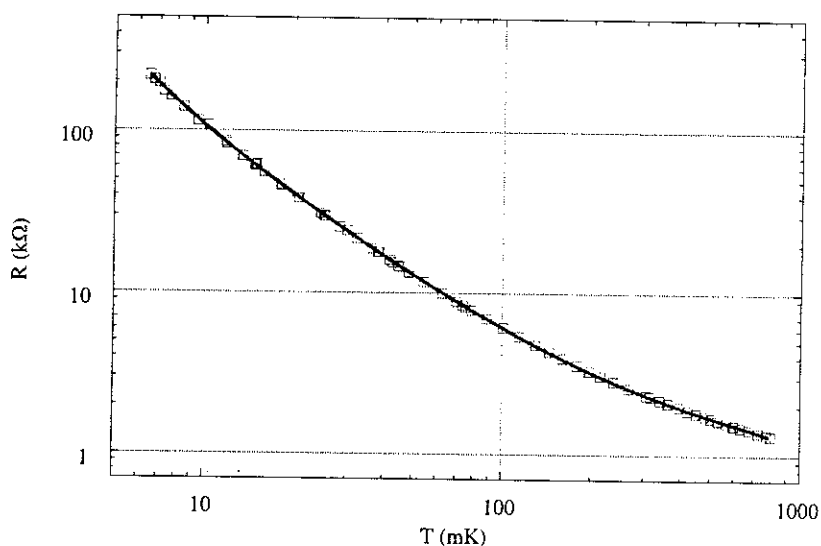


FIG. 5.1: Calibration de la résistance de carbone R21 que nous avons utilisé pour les hautes températures. Nous représentons également l'ajustement empirique : $T = -6185 \ln(R)^{-1.0222} + 13710 \ln(R)^{-0.8731} - 10980 \ln(R)^{-0.64261} + 3704.4 \ln(R)^{-0.468883}$. Celui-ci nous donne une précision en température de l'ordre de $\pm 2\%$.

nous avons réalisé.

5.2 RMN du platine

La définition de notre échelle basse température passe par l'utilisation d'un thermomètre par RMN pulsée du platine. Le ^{195}Pt (annexe A) possède un spin nucléaire. Les interactions entre ces spins sont suffisamment faibles pour que l'aimantation nucléaire $M(T)$ du platine soit paramagnétique jusqu'à $100\ \mu\text{K}$ (en C/T , où C est la constante de Curie). Cette loi simple en fait un thermomètre pratique et " presque " primaire¹, il ne faut calibrer que la constante C .

Pour nos expériences sur l' ^3He -2D, l'échelle basse température est réalisée par RMN pulsée sur des fils de platine (chapitre 3). Nous avons calibré ce thermomètre entre 7 mK et 15 mK environ sur la résistance R21 (section 5.1). Aux ultra-basses températures, il nous a lui-même servi à calibrer la constante de Curie C_{mono} de la monocouche d' ^3He sur graphite. Cette monocouche est également utilisable en thermomètre, jusqu'aux ultra-basses températures (section 5.3).

Dans nos expériences sur l'aérogel, nous avons utilisé un fil vibrant de tantale calibré par la RMN du platine (chapitre 3 et section 5.4). Pour réaliser cette calibration, nous avons utilisé la même cellule expérimentale, où nous avons simplement remplacé le tube contenant l'aérogel par un tube rempli de poudre de platine². Sur cette poudre, nous avons réalisé des mesures de RMN pulsée (usuelle pour le platine), mais aussi de RMN continue. Des raies de résonance typiques sont présentées en fig. 5.2.

De ces résonances, nous avons extrait l'aimantation nucléaire du platine M par différents critères. Dans le cas de la RMN continue, il s'agit simplement de l'aire de la courbe (comme pour nos mesures sur l' ^3He , discussion en section 4.1). Dans le cas de la RMN pulsée, nous avons à la fois ajusté le signal pour en extraire la valeur de l'induction $G(t)$ à l'instant $t \rightarrow 0$, l'aire du signal redressé $\int_0^\infty |G(t)| dt$, et la racine carrée de la somme des carrés des points digitalisés $\sqrt{\sum_i G(t_i)^2}$. Ces différents critères sont cités dans l'ordre de leur complexité, le dernier calcul étant le plus simple. Nous vérifions que sur toute la plage de mesure où le bruit électronique est négligeable, tous ces critères sont proportionnels³. Au delà de 15 mK environ, une correction est nécessaire, dont la nature est différente

¹Comme pour un sel paramagnétique de CMN (spins électroniques), cette constante pourrait être calculée à l'aide d'une connaissance approfondie du dispositif de mesure (gain d'amplification, nombre de spins nucléaires, etc...). En pratique, cette connaissance reste entachée d'incertitude, et il est bien plus facile et précis de calibrer, au moins en un point, le thermomètre contre un thermomètre étalon. Nous renvoyons à la discussion de la section 5.3 concernant la monocouche d' ^3He -2D.

²Provenant du laboratoire d'Helsinki. Historiquement, c'est celle qui possède les meilleures propriétés RMN.

³Mathématiquement, il s'agit d'une conséquence de la stabilité de notre système de mesure, et de la forme du signal d'induction $G(t)$.

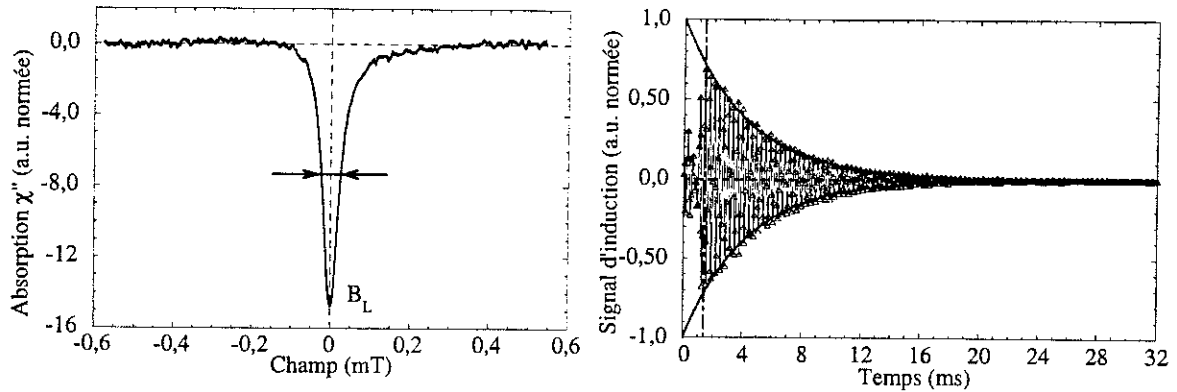


FIG. 5.2: Signal de résonance RMN du platine (immérgé dans de l' ^3He liquide à 17 bar) obtenu à 3,24 mK. A gauche, nous présentons l'absorption χ'' mesurée en RMN continue dans 132 mT, en fonction du champ de balayage. La raie est normée à son aire, la verticale pointillée représente le champ de Larmor. A droite, signal d'induction obtenu dans 121 mT, en fonction du temps. Il est normé à la hauteur extrapolée en $t \rightarrow 0$ (la verticale tiretée marque la perte du signal aux temps courts). La largeur à mi-hauteur obtenue en RMN continue est de 0,049 mT (double flèches), et le temps de décroissance ajusté par une exponentielle sur le signal pulsé (ligne pleine) est de 4,3 ms.

d'un calcul à l'autre (soustraction d'une valeur constante $|V|$ pour les deux premiers, et déviation quadratique en $\sqrt{V^2}$ pour le dernier). Pour toutes nos mesures, la largeur de raie continue et le temps de décroissance en pulsé sont constants en température. Ils vérifient la relation de transformation de Fourier $\frac{1}{2}T_2\Delta b \approx 1$. L'intérêt de nos comparaisons est de montrer que la simple somme de carrés $\sqrt{\sum_i G(t_i)^2}$, pour le signal pulsé, est suffisante pour atteindre une précision de l'ordre de quelques % sur toute la gamme d'intérêt. Nous montrons également que le choix de la RMN continue nous permet de suivre ce signal avec une précision du même ordre jusqu'à 35 mK environ (section 5.4).

En revanche, la mesure d'une raie continue nécessite plusieurs minutes, alors qu'un pulse donne une lecture de la température quasi-instantanée. L'utilisation de la RMN continue implique une faible fuite thermique constante due à l'énergie radiofréquence injectée, alors que la RMN pulsée utilise de fortes injections qui, si sur l'instant ne perturbent pas le système, le réchauffent néanmoins à la suite du pulse et nécessitent un retour à la température de base⁴. Suivant les cas, les conditions expérimentales peuvent privilégier une technique plutôt qu'une autre.

⁴Dans nos expériences sur l' ^3He -2D, cet échauffement (due au graphite) est très clair aux ultra-basses températures. Le retour à l'équilibre peut être très rapide dans le cas du solide paramagnétique, mais prend des heures dans le cas de l' ^3He bidimensionnel "liquide de spins", où la chaleur spécifique au-dessous du mK est très importante. Pour la calibration du fil vibrant de tantale, aucun effet de chauffage n'a pu être mis clairement en évidence.

5.3 RMN de l' ^3He -2D en première couche

Les interactions entre spins nucléaires de la monocouche (solide) d' ^3He sur graphite sont très faibles. Il s'agit d'un aimant paramagnétique presque idéal, dont l'aimantation $M(T)$ peut donc se décrire par la fonction de Brillouin à $S = 1/2$ (nous renvoyons aux cours élémentaires, comme Diu et al. [215]). De plus, la nature bidimensionnelle du système assure qu'il ne peut s'ordonner à température finie (Mermin et Wagner [70] 1966), aux faibles interactions perturbatives près, comme l'interaction dipolaire déjà citée (voir également le chapitre 8). Le système ne sera complètement polarisé à M_{sat} qu'aux plus basses températures, ou à fort champ⁵. A haute température, son aimantation se comporte comme une loi de Curie en C_{mono}/T .

La mesure est simple, précise (dans notre cas de l'ordre de $\pm 4\%$, fig. 5.3) et reproduc-

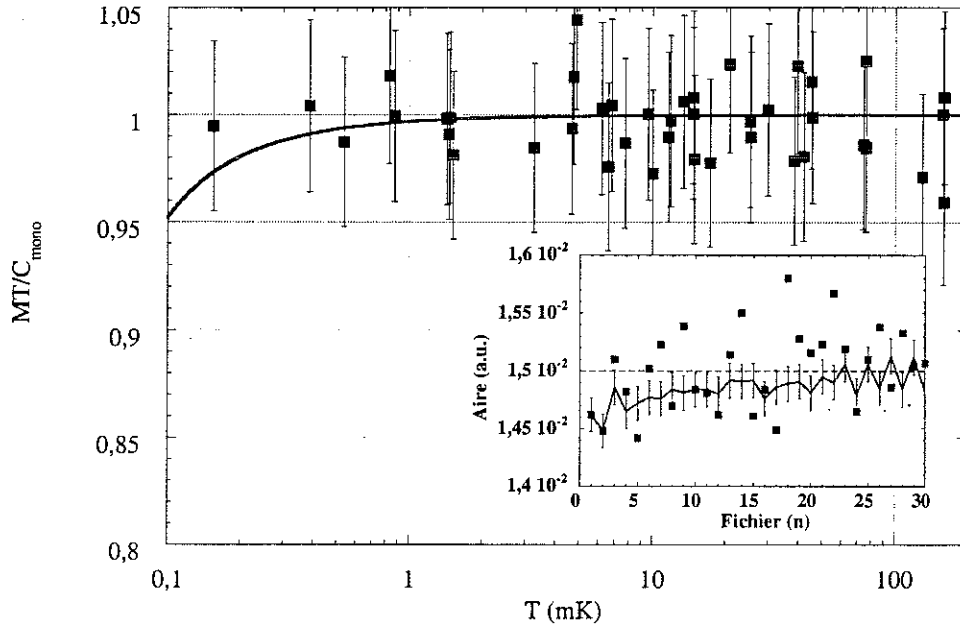


FIG. 5.3: Produit normé de l'aimantation de la monocouche d' ^3He -2D par la température, en fonction de la température. Celle-ci est mesurée à haute température par R21 (section 5.1), et par la RMN pulsée du platine à basse température (section 5.2). La densité est de $9,28 \text{ at/nm}^2$, et le champ de $30,51 \text{ mT}$. La ligne pleine est un ajustement sur le développement au second ordre de l'aimantation, soit $MT/C_{\text{mono}} \approx 1 + (3J/T) + 2/3(3J/T)^2 - 1/3([g_N \mu_N SB]/[k_B T])^2$, où l'interaction J vaut $1 \text{ } \mu\text{K}$. Toutes conditions expérimentales confondues, nous obtenons un écart quadratique moyen à l'ajustement de l'ordre de 4% . Encart : convergence de l'aimantation en fonction du nombre de raies RMN moyennées par le programme, à 39 mK (■ n -ème aimantation, ligne pleine moyennage). L'écart statistique moyen obtenu sur cette mesure est de $\pm 1\%$ (barres d'erreur). Nous tirons $C_{\text{mono}} = 0,172 \text{ V}^2\text{mK}$ dans nos unités.

⁵Ce n'est pas le cas pour le platine ou le CMN (spins électroniques) qui sont des systèmes tridimensionnels. Typiquement, un sel de CMN finit par s'ordonner à des températures au mieux de l'ordre de $0,5 \text{ mK}$.

tible. Les seules limitations sont la perte de signal à haute température, et la limitation de l'injection à basse température pour ne pas chauffer le graphite. En principe, la donnée de la saturation par le champ magnétique fait de ce thermomètre un thermomètre primaire. En pratique, changer le champ magnétique altère la chaîne de détection, ce qui fait qu'il n'est pas possible, pour un montage standard⁶, de réaliser une mesure non ambiguë de M_{sat} . Dans notre cas, l' ^3He -2D demeure un thermomètre " presque " primaire, que nous calibrons à haute température sur la résistance R21 (section 5.1).

En fig. 5.3 nous présentons nos mesures d'aimantation sur une monocouche d' ^3He en cellule C_5 . L'ajustement présenté est le développement au premier ordre de l'aimantation $M(T, J, B)$, J étant la constante d'échange entre spins nucléaires (l'interaction). Nous obtenons la borne supérieure de $1\ \mu\text{K}$, en accord avec les résultats de Schiffer et al. [87] 1994. Toutes ces propriétés font de l' ^3He -2D en monocouche un excellent candidat pour la thermométrie aux ultra-basses températures, jusqu'à des hautes températures de l'ordre de $450\ \text{mK}$. Ce système fait le lien entre le microkelvin et les échelles établies au-dessus du millikelvin.

5.4 Fils vibrants

Un fil vibrant est une boucle de fil supraconducteur (qui ne dissipe donc pas d'énergie par effet Joule), le diamètre du fil étant a et celui de la boucle D dans notre manuscrit. Dans un champ magnétique $\vec{B}$ suivant $\vec{z}$, si le fil est traversé par un courant I , chaque portion $d\vec{l}$ de ce fil est soumise à une force de Laplace $d\vec{F} = I d\vec{l} \times \vec{B}$. Cette force d'excitation est compensée par la raideur des deux pieds de la boucle, et par la dissipation intrinsèque au fil. Si ce fil est placé dans un milieu matériel, et non dans le vide, il s'exerce également sur lui une force dissipative visqueuse.

Dans le cas qui nous intéresse, on excite le fil par un courant sinusoïdal $I = I_0 \cos(\omega t)$, et on impose un champ statique $\vec{B} = B_0 \vec{z}$. Le fil vibre (d'où son nom), et cette vibration peut être détectée par une tension induite à ses bornes. C'est la loi de Lenz, chaque portion $d\vec{l}$ parcourant une distance $d\vec{x}$ pendant un temps dt coupe le flux magnétique et crée à ses bornes $dV = B_0 d\vec{l} \cdot d\vec{x} / dt$.

Usuellement, ces vibreurs sont réalisés à l'aide de fil de tantale de $0,250\ \text{mm}$ et $0,125\ \text{mm}$, ainsi que de fils de niobium-titane de $13\ \mu\text{m}$ et $4,5\ \mu\text{m}$. Leur fabrication, pour les plus fins

⁶On pourrait imaginer un système constitué de deux bobines RMN, une pour un champ assez fort, et l'autre un champ faible. Leur fréquences de résonance seraient assez différentes pour éviter tout " pick-up " de l'une vers l'autre. La comparaison de ces deux signaux magnétiques permettrait alors de remonter aux paramètres manquants, faisant de l' ^3He -2D un thermomètre primaire.

d'entre eux, est pénible. On met le fil en forme suivant une boucle de laquelle on retire, sur la future partie vibrante, le vernis d'isolation. Pour les fils de niobium-titane, on part de fils multifilamentaires dont on sectionne un à un les brins, précautionneusement, jusqu'à n'en laisser qu'un seul. La base de la boucle, son pied, reçoit alors une petite goutte de colle (Stycast 1266) qui à la fois maintient les extrémités de filaments sectionnés loin du filament vibrant, et leste le pied pour qu'il soit fixe. Cette technique est décrite dans Fisher [198] 1991. Une alternative est la fabrication de vibreurs en silicium, que nous décrivons en section 5.5.

Le fil se déforme en vibrant, et lorsque les oscillations sont suffisamment faibles, cette vibration se ramène à celle d'un oscillateur harmonique à une dimension :

$$m_{vibre} \frac{d^2 x}{dt^2} + 2\Lambda \frac{dx}{dt} + 2k_{pied} x = IlB_0 \quad (5.1)$$

détectée par une tension totale aux bornes du fil $V = B_0 l' dx/dt$. Les paramètres de cet oscillateur fictif se déduisent de la déformation du fil, l'hypothèse étant que la déformée en cours de vibration est la même que dans le mode statique. On calcule alors les énergies cinétiques et potentielles du problème pour obtenir la masse vibrante $m_{vibre} = l'' \pi a^2 \rho_{fil}$ totale⁷, ainsi que la raideur effective k_{pied} d'un des pieds du fil ; c'est le critère de Rayleigh (nous renvoyons à Timoshenko [188] pour de plus amples détails sur cette méthode de calcul). Les longueurs l , l' et l'' correspondent à des longueurs calculées pour la structure vibrante. x représente le déplacement du mobile fictif et $v = dx/dt$ sa vitesse. Par définition, ils correspondent aux paramètres décrivant l'oscillation du haut de la boucle. Par abus de langage, nous les confondrons simplement dans la suite.

Les phénomènes dissipatifs sont pris en compte dans l'expression (5.1) par le paramètre Λ (force visqueuse, voir ci-après). Si l'on résout le cas harmonique, on définit l'amplitude complexe $\overline{x(\omega)}$ de vibration, fonction de la pulsation. Le cas le plus général fait alors part d'un terme complexe $\overline{\Lambda} = \Lambda_1 + i\Lambda_2$ où Λ_1 est purement dissipatif et Λ_2 correspond à une composante réactive.

La résolution de (5.1) apporte les relations simples :

$$\begin{aligned} \overline{x(\omega)} &= x_0 \frac{\omega_0^2}{(\omega_0^2 - \omega^2 - 2\frac{\Lambda_2}{m_{vibre}}\omega) + i(2\frac{\Lambda_1}{m_{vibre}}\omega)} \\ \overline{v(\omega)} &= v_0 \frac{i\omega\omega_0}{(\omega_0^2 - \omega^2 - 2\frac{\Lambda_2}{m_{vibre}}\omega) + i(2\frac{\Lambda_1}{m_{vibre}}\omega)} \\ \overline{V(\omega)} &= V_0 \frac{i\omega\omega_0}{(\omega_0^2 - \omega^2 - 2\frac{\Lambda_2}{m_{vibre}}\omega) + i(2\frac{\Lambda_1}{m_{vibre}}\omega)} \end{aligned}$$

⁷La masse vibrante est nécessairement légèrement inférieure à la masse réelle de la boucle, car seul son extrémité se déplace de façon notable, ses pieds sont fixes.

$$V'(\omega) = V_0 \frac{\omega^2 \omega_0 2 \frac{\Lambda_1}{m_{vibre}}}{(\omega_0^2 - \omega^2 - 2 \frac{\Lambda_2}{m_{vibre}} \omega)^2 + (2 \frac{\Lambda_1}{m_{vibre}} \omega)^2}$$

où l'on introduit, avec $\overline{V(\omega)} = V'(\omega) + iV''(\omega)$:

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{2k_{pied}}{m_{vibre}}}$$

$$x_0 = \frac{I_0 l B_0}{m_{vibre} \omega_0^2}$$

$$v_0 = \frac{I_0 l B_0}{m_{vibre} \omega_0}$$

$$V_0 = \frac{I_0 l l' B_0^2}{m_{vibre} \omega_0}$$

Ces équations correspondent à la résonance⁸ du fil (mode fondamental " avant-arrière "). Dans cette géométrie, les autres modes (torsion du fil, etc...) ne peuvent être excités. Seul aux amplitudes de déplacement les plus fortes, les harmoniques supérieures du mode fondamental " avant-arrière " peuvent être excitées. De tels effets non linéaires peuvent être décrits à l'aide d'une raideur en $k = k_{pied} - k''x^2$, il s'agit d'une non linéarité géométrique. Le paramètre k'' peut être calculé à l'aide de la déformation du fil, en réalisant un développement en (x/l) . Nous avons étudié ce régime et vérifié que nos oscillateurs (fils usuels et fils de silicium) ne se trouvent pas dans cette limite. Nous renvoyons pour plus de détail à Landau et Lifshitz [190], ce point n'est pas l'objet de notre discussion. Pour tous nos fils vibrants, nous avons également vérifié que V_0 est linéaire en I_0 et croît comme B_0^2 .

La tension détectée est donc l'image directe de la vitesse du fil. On montre simplement que dans la limite où la force visqueuse n'affecte pas trop la résonance naturelle du fil ω_0 , c'est-à-dire lorsque $(2\Lambda_1/m_{vibre})/\omega_0 \ll 1$ et $(2\Lambda_2/m_{vibre})/\omega_0 \ll 1$, la résonance en tension $V'(\omega)$ (ou $|\overline{V(\omega)}|$) est une raie piquée autour de $\omega_{rés}$ avec une largeur à mi-hauteur $\Delta\omega$ (ou à $1/\sqrt{2}$ respectivement) :

$$\omega_{rés} = \omega_0 - \frac{\Lambda_2}{m_{vibre}}$$

$$\Delta\omega = 2 \frac{\Lambda_1}{m_{vibre}}$$

$$Q = \frac{\omega_0}{\Delta\omega}$$

⁸L'expression obtenue pour la tension $\overline{V(\omega)}$ est presque Lorentzienne (loi en $V_0 i \omega_0 / [(\omega_0 - \omega) + i(\Delta\omega)]$). Par abus de langage, la résonance du fil vibrant porte souvent ce nom.

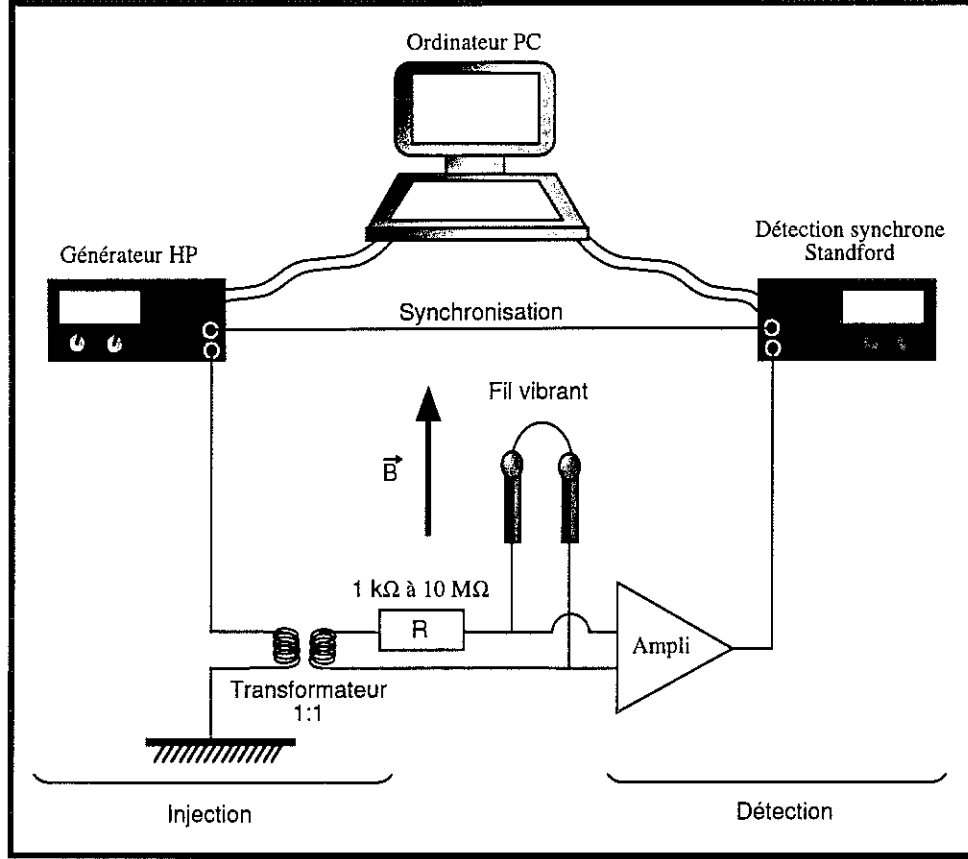


FIG. 5.4: Principe de la mesure d'une résonance de fil vibrant. Un courant sinusoïdal est imposé dans le fil, qui plongé dans un champ magnétique $\vec{B}$ se met à vibrer. Cette vibration crée une tension à ses bornes que l'on détecte à l'aide d'une détection synchrone. L'ensemble est piloté par un ordinateur. Typiquement, les champs magnétiques que nous avons utilisés vont de 10 mT à 130 mT, pour des courants allant de 2 pA_{rms} aux ultra-basses températures pour les fils les plus fins, à $0,1 \text{ mA}_{rms}$ près de la transition superfluide de l' ^3He pour les plus gros. Le gain d'amplification utilisé va de 1 à 1 000.

où l'on a défini le facteur de qualité Q du résonateur. A la résonance, le signal est purement résistif, c'est-à-dire que $V' = V_{max}$ et $V'' = 0$, avec $V_{max} = V_0 Q$. La hauteur de la résonance est simplement inversement proportionnelle à la largeur⁹.

Le schéma de principe de la détection est présenté succinctement en fig. 5.4. Pour toutes nos mesures, nous avons sauvegardé l'ensemble de la raie de résonance $\overline{V(\omega)}$, et l'avons ajustée (sa partie réelle ou son module carré) à l'aide des relations citées. Pour ce faire, nous avons développé avec l'aide de R. Harakaly un programme très performant¹⁰ sous Scilab

⁹Plus précisément, $\Delta\omega = 2 \frac{\Lambda_1}{m_{vibre}} \frac{\omega_{rés}}{\omega_0}$ et $Q = \omega_{rés}/\Delta\omega$. Dans notre cas, les conditions les plus défavorables sont 0 bar à T_C , où $(2\Lambda_1/m_{vibre})/\omega_0 \approx 0,4$ et $(2\Lambda_2/m_{vibre})/\omega_0 \approx 0,2$, le développement est encore valable.

¹⁰Ce logiciel ajuste tous les paramètres de la raie, et permet de prendre en compte une ligne de base courbe (phénomène inévitable lorsque la largeur de la résonance devient grande). Même près de T_C , cette

[176]. Ce dernier nous fournit les paramètres V_{max} , $f_{rés} = \omega_{rés}/(2\pi)$ et $\Delta f = \Delta\omega/(2\pi)$. Pour toute nos mesures, même lorsque la dissipation est importante, l'écart quadratique moyen entre l'ajustement et les données est de l'ordre de $\pm 4\%$ au maximum. En fig. 5.5, nous présentons une raie typique mesurée pour notre fil de tantale. Nous estimons sa masse vibrante à $590 \mu\text{g}$.

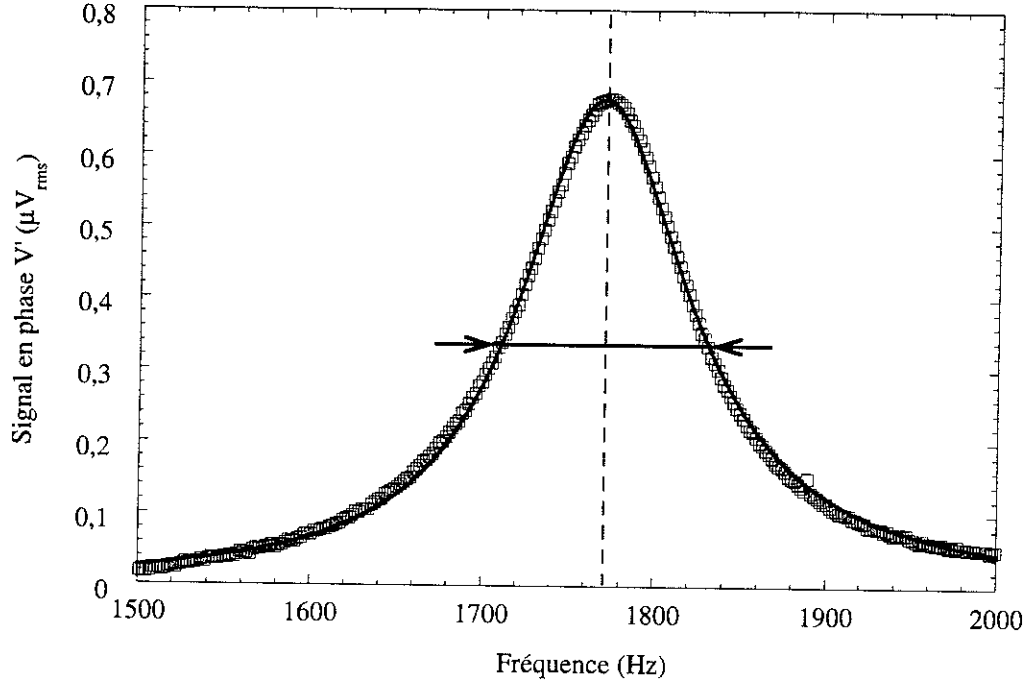


FIG. 5.5: Raie de résonance typique de notre fil vibrant de tantale immergé dans l' ^3He , dans le régime des faibles oscillations (champ de $37,3\text{mT}$, et courant de $0,1\text{mA}_{rms}$). L'ensemble de nos mesures est de qualité similaire. Nous présentons la tension en phase V' détectée en fonction de la fréquence. La température était de $3,20\text{mK}$, la pression de 17bar (phase normale, ^3He pur près de la transition superfluide). La ligne pleine est l'ajustement présenté dans le texte (écart quadratique moyen de 4% , taille des symboles). Les paramètres sont $f_{rés} = 1770\text{Hz}$ (verticale pointillée) et $\Delta f = 119\text{Hz}$ (double flèches), pour $V_{max} = 0,68\mu\text{V}_{rms}$ (le gain d'amplification a été pris en compte). Pour ces conditions, la force appliquée est de 35nN_{rms} , et le haut de la boucle se déplace d'environ $0,7\mu\text{m}$.

Les paramètres $f_{rés}$ et Δf contiennent toute l'information sur $\bar{\Lambda}$. Pour un fil plongé dans un milieu fluide, cette force dissipative se sépare en deux termes : l'un propre au fil, disons $\bar{\Lambda}^0$, provient de ses contraintes et frottements internes. Il est a priori dépendant de la température, et faible¹¹. Aux ultra-basses températures, il apparaît que pour les fils usuels en tantale et niobium-titane plongés dans l' ^3He , $\bar{\Lambda}^0$ prend une valeur constante en (T, P) qui tend à masquer la deuxième contribution, celle propre au fluide¹² que nous notons $\bar{\Lambda}^{visq}$. Il semble que Λ_1^0 , la partie dissipative, dépende du matériau et du diamètre a du fil

procédure compliquée garantit un très bon ajustement par la forme mathématique quasi-Lorentzienne.

¹¹Nous supposons donc raisonnablement que $\bar{\Lambda}^0$ est indépendant de ω .

¹²Nous verrons ci-après qu'à haute température au-dessous d'environ 75mK la force visqueuse exercée

utilisé (plus le fil est fin, plus la dissipation est faible). C'est également une des raisons qui nous a poussés à développer la technique des fils vibrants de silicium : ce matériau monocristallin, dont on peut faire des micro-senseurs (assez) facilement, possède a priori une faible friction interne (étude de la section 5.5).

Dans nos expériences sur l' ^3He liquide, nous nous intéressons évidemment à la partie Λ^{visq} , le vibreur est un viscosimètre. Dans un fluide visqueux, on introduit communément la longueur de pénétration visqueuse δ . Pour rendre compte du cas superfluide, on utilise le modèle à deux fluides et on introduit les densités ρ_s et ρ_n de fluide superfluide et normal (d'excitations). On a $\rho = \rho_s + \rho_n$, densité du liquide, et nous prenons par définition $\rho_s = 0$ au-dessus de la transition superfluide. On écrit alors $\delta = [(2\eta)/(\rho_n\omega)]^{1/2}$, où η est la viscosité du fluide. Si δ est faible face au diamètre D de la boucle du vibreur, on peut approximer en chaque point de cette boucle la force visqueuse par celle exercée par le fluide sur un fil droit (une corde¹³, et non une boucle).

Cette force visqueuse a été calculée par Stokes [180] 1901 pour les petites oscillations, dans le cas d'un fil infiniment long immergé dans un fluide visqueux infini. Les équations de Navier-Stokes linéarisées apportent (voir par exemple Carless et al. [178] 1983) :

$$\Lambda^{visq} = -i\omega \left[1 + \frac{\rho_n}{\rho} \{ (k-1) + ik' \} \right] m_{liquide} \quad (5.2)$$

où l'on a introduit les forces sans dimensions k et k' , $m_{liquide} = \pi a^2 l''' \rho$ étant la masse de liquide entraînée par le mouvement du fil (l''' étant à nouveau relié à la longueur de la boucle). La première force sans dimensions représente un terme réactif, action du fluide qui contourne l'objet qui se déplace, et la deuxième est dissipative, et correspond aux frottements. Carless et al. [179] 1983 fournissent l'expression :

$$(k-1) + ik' = - \left(\frac{4}{(1+i)(a/\delta)} \right) \left(\frac{H_1^{(1)}((1+i)(a/\delta))}{H_0^{(1)}((1+i)(a/\delta))} \right) \quad (5.3)$$

Les diverses grandeurs ont déjà été introduites, et $H_n^{(j)}$ représente la fonction de Hankel (complexe) de j -ème espèce, d'ordre n .

Dans la phase liquide de Fermi, la viscosité η se comporte, à bas champ et au-dessous de 75 mK, comme $1/T^2$ (sous-section 10.1.1). A haute température, le rapport a/δ devient

par le fluide est toujours dominante, alors qu'à basse température l'apparition de la superfluidité se traduit par une forte décroissance de cette force.

¹³L'intérêt d'utiliser une boucle plutôt qu'une corde est que sa fréquence de résonance naturelle $f_0 = \omega_0/(2\pi)$ est fixe et bien définie, alors que pour la corde la fréquence dépend de la tension qui s'exerce sur elle, mal définie (variant en température). Aussi, la résonance excitée sur une corde est deux fois dégénérée, dégénérescence qui peut être levée par l'asymétrie du problème et des contraintes supplémentaires. La raie mesurée a alors la structure d'un double pic, difficilement exploitable.

grand et le développement des fonctions de Hankel donne simplement $k - 1 \approx k' \approx 2\delta/a$, et :

$$f_{rés} = f_{fluide} - \delta f_{rés}$$

$$f_{fluide} = f_0 \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\rho}{\rho_{fil}} \right) \quad (5.4)$$

$$\delta f_{rés} = \frac{1}{2} \Delta f \quad (5.5)$$

Le décalage de la raie $\delta f_{rés}$ est la moitié de la largeur à mi-hauteur Δf , et la fréquence de résonance naturelle dans le fluide f_{fluide} est décalée par rapport à la fréquence naturelle dans le vide f_0 . Au-dessus d'environ 75mK, des corrections doivent être prises en compte à la simple loi $\eta \propto 1/T^2$.

Aux ultra-basses températures, au-dessous d'une température de transition T_C , la viscosité du superfluide tend vers zéro, le liquide est superfluide (nous ne considérons que le cas de la phase B , section 10.1.2). Dans cette gamme, le nom de viscosité n'est plus vraiment approprié, car le nombre des excitations élémentaires du fluide est très faible, et leur libre parcours moyen très grand : c'est ce que l'on nomme le régime balistique (section 10.1.2). Dans ce régime, l'amortissement du fil vibrant se décrit par les collisions qu'il subit des quasi-particules environnantes. Nous revoyons à la discussion de Fisher [198] 1991. En quelques mots, disons simplement que le mécanisme dominant est celui de la réflexion d'Andreev [177] 1964 : une quasi-particule se reflète sur le fil en un quasi-trou de quantité de mouvement opposée. Le résultat est une force visqueuse en $e^{-\Delta/(k_B T)}$, où Δ est le gap superfluide. La largeur de raie Δf est proportionnelle à S/m_{fil} si S correspond à la surface du fil qui balaye le fluide. La sensibilité varie donc comme $1/\rho_{fil}$ et $1/a$, ce qui justifie la fabrication de fils plus fins et plus légers adaptés à cette gamme. C'est une des motivations du développement de la technique des fils en silicium discuté en section 5.5.

Dans la gamme intermédiaire juste au-dessous de la transition superfluide, le comportement de la viscosité est mal connu. C'est une des raisons de notre travail de thermométrie.

L'ensemble des propriétés de la résonance ne dépend que du rapport a/δ , ce qui permet de remonter en principe aisément à η . Connaissant la loi $\eta(T, P)$ (au moins expérimentalement) pour une pression P donnée, le fil vibrant est un thermomètre primaire.

En pratique, les choses sont plus compliquées. En premier lieu, la qualité du fil vibrant réalisé va conditionner les grandeurs géométriques¹⁴ introduites ici, les longueurs l, l', l''

¹⁴La validité du critère de Rayleigh peut également être affectée. Le fil vibrant doit donc être calibré si l'on désire une mesure très précise. Dans le pire des cas, d'autres modes de vibration du fil vibrant peuvent être excités, le rendant non linéaire (ce point déjà cité ne fait pas l'objet de cette thèse).

et l''' (ainsi que a et D évidemment). Les expressions calculées dans le cas d'une boucle idéale sont (reprises sur Fisher [198] 1991 et Buu [202] 1998) :

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{E_{fil}}{\rho_{fil}}} \left(\frac{a}{D^2} \right)^{5,34^2}$$

$$l = \pi D$$

$$l' = \frac{\pi D}{4}$$

où E_{fil} représente le module d'Young du matériau ; elles ne donnent qu'approximativement les paramètres d'un fil réel (à une quinzaine de pourcent près). Il est donc nécessaire, si l'on désire une très grande précision, de calibrer le fil vibrant utilisé ; c'est la raison d'être de cette section.

En second lieu, certaines limitations physiques peuvent altérer les résultats :

- cas de la résonance très large : lorsque la condition $\Delta\omega/\omega_0 \ll 1$ n'est pas vérifiée, l'ajustement des données est difficile. Il faut remarquer aussi que la formule (5.2) proposée pour la résonance considère un $\bar{\Lambda}$ indépendant de ω , ce qui n'est pas conforme à (5.2). L'ajustement par cette loi simplifiée est pourtant le protocole suivi par l'équipe de Lancaster [126], et que nous avons également adopté par souci de conformité.
- La longueur de glissement : en principe, la vitesse tangentielle du fluide à la surface du fil est nulle (la vitesse normale l'est trivialement). Lorsque la viscosité est grande, on introduit pour elle une valeur non nulle via une longueur caractéristique, dite de glissement : le fluide n'adhère plus à la surface du fil (voir par exemple Carless et al. [179] 1983).
- Les effets de taille : si la viscosité est trop élevée, δ peut devenir comparable à la taille de la cellule et l'hypothèse de milieu infini n'est plus valable. Le mouvement du liquide couple le fil vibrant aux parois (voir la discussion de Buu [202] 1998).
- Non linéarités dans l'amortissement : lorsque le signal est trop faible, on peut être tenté d'augmenter le courant d'injection I sur le fil. Cependant, on peut alors rentrer dans le régime non linéaire des équations de Navier-Stokes, ou à ultra-basses températures saturer la force d'amortissement thermique due aux quasi-particules (Fisher et al. [181] 1989 et Fisher [198] 1991).

L'article de référence concernant les mesures de viscosité dans l' ^3He normal est celui de Carless et al. [179] 1983. En ce qui concerne le cas du superfluide ($^3\text{He-B}$) et des ultra-basses températures, nous renvoyons à Carless et al. [178] 1983, et Guénault et al. [182] 1986. Le fil vibrant utilisé pour les deux articles de Carless et al. est une boucle de

diamètre $D = 2,8$ cm, faite d'un fil de niobium-titane de diamètre $a = 58 \mu\text{m}$. La fréquence de résonance de ce vibreur était de 80 Hz. Le fil de Guénault et al. était une boucle de fil de tantale de $a = 0,125$ mm, mis en forme sur $D = 4$ mm. Sa fréquence de résonance naturelle était de 710 Hz environ.

Le diamètre de 2,8 cm pris pour les premières expériences vérifie facilement la condition $\delta \ll D$. en revanche, la valeur de 4 mm est sujette à caution (discussion dans nos conditions expérimentales ci-après). La taille finie de la cellule expérimentale de Carless et al. joue un rôle dans leur analyse, ce qui peut introduire une certaine incertitude dans leur résultat lorsque la viscosité est très grande. Enfin, le point sur lequel nous tenons absolument à insister est que ces viscosimètres ont des fréquences de résonance très basses : lorsque la viscosité atteint son maximum, la largeur de la raie Δf devient équivalente (ou surpasse) la résonance naturelle f_0 du fil, et l'extraction des paramètres est plus que douteuse.

Sur la base de ces résultats et des travaux théoriques que l'on trouve par exemple dans Carless et al. [178] 1983, Carless et al. [179] 1983, et Fisher [198] 1991, l'équipe de Lancaster a développé un programme [126] calculant $\Delta f(P, T)$, pour les phases liquide de Fermi et superfluide B , en fonction des caractéristiques mécaniques du fil¹⁵.

A haute température (disons entre 5 mK et 75 mK), nos propres résultats confirment ceux acquis antérieurement pour le liquide de Fermi. En revanche, au plus près de la transition T_C nous obtenons de légers écarts à ces valeurs dans la phase normale, et une forte déviation lorsque nous entrons dans la phase superfluide. En plus des difficultés expérimentales invoquées ci-dessus, nous pouvons faire valoir que dans les expériences de Guénault et al. [182] 1986, l'échelle de température peut être discutée. Elle est fournie par RMN pulsée du platine, les mesures s'effectuant en laissant le cryostat se réchauffer de lui-même. Près de T_C , ce réchauffement est extrêmement rapide (le réfrigérateur a perdu toute sa puissance frigorifique), et la calibration de la constante de Curie de leur thermomètre, sur la transition, pourrait aisément être erronée.

Nous avons donc effectué des mesures de Δf et $f_{rés}$ sur notre fil de tantale (fil de $a = 0,125$ mm, boucle de $D = 3$ mm, avec $\rho_{fil} = 16,6 \text{ g/cm}^3$), contre la RMN du platine (section 5.2). Les mesures se sont faites en réchauffant très lentement le cryostat et en ajustant chaque raie de résonance. Nous commentons nos résultats ci-dessous ; ils sont à notre connaissance les plus " propres " pour ce type d'application.

En premier lieu, la fig. 5.6 résume nos données dans un graphique où nous présentons le décalage $\delta f_{rés}$ en fonction de l'amortissement Δf , pour différentes pressions. Cette courbe

¹⁵Un certain nombre de paramètres ajustables empiriques font également partie de ce code.

est implicitement paramétrée par a/δ , c'est à dire par la température.

A haute température (faible $\delta f_{rés}$ et Δf), nous vérifions la relation (5.5), qui nous permet

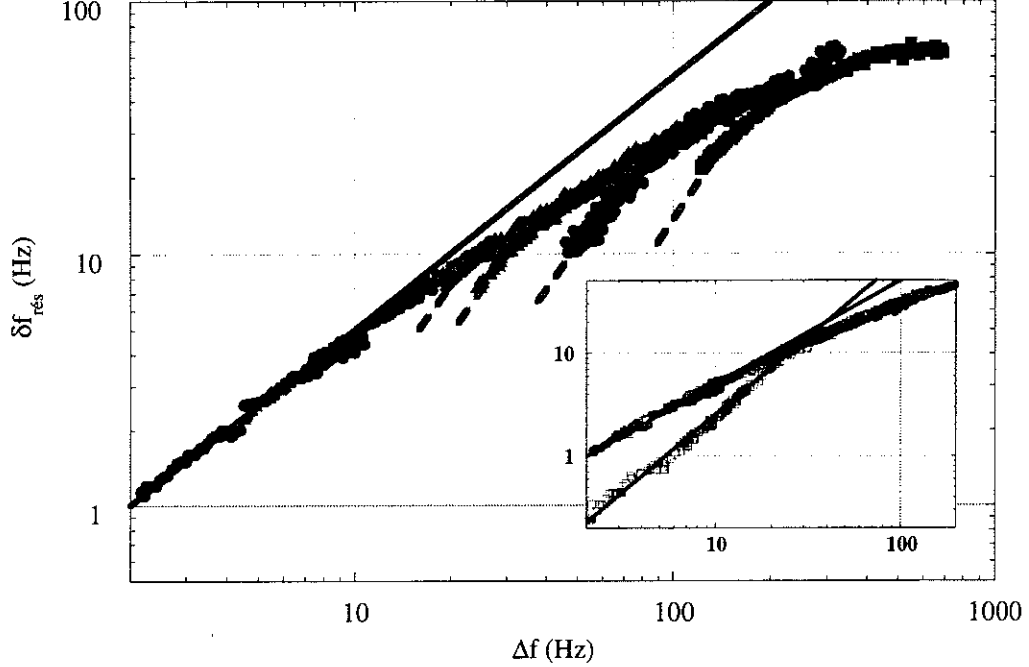


FIG. 5.6: Composante réactive $\delta f_{rés}$ en fonction de la composante dissipative Δf pour différentes pressions, mesurées dans 120,5 mT pour les faibles oscillations de notre fil de tantale ($a = 0,125$ mm, $D = 3$ mm, et $\rho_{fil} = 16,6$ g/cm³). Chaque courbe est implicitement paramétrée par la température. ■ : 0,6 bar. ● : 5,2 bar. ▲ : 17 bar. ◆ : 29,5 bar. Dans la phase liquide de Fermi, toutes ces courbes suivent la même loi définie par les fonctions de Hankel (non représentée). Lorsque la viscosité est faible, nous retrouvons la relation (5.5), ajustement plein $y = x/2$. Au-dessous de la transition superfluide, les différentes courbes dévient de ces lois du fait de la décroissance du rapport ρ_n/ρ (nous repérons ces points par des droites pointillées). En encart, nous répétons nos mesures haute températures à 5,2 bar (●), et présentons nos données à 24,5 bar et 37,3 mT (□). Empiriquement, la dépendance ultra-basse température de $\delta f_{rés}$ à Δf est une loi de puissance, ici nous présentons $y = 0,08x^{1,5}$. Sur ce graphique, les températures les plus élevées sont de l'ordre de 100 mK, et les plus basses de l'ordre de 700 μ K ($\Delta f = 2$ Hz).

de définir la fréquence de résonance f_{fluide} dans le liquide. Près de T_C , où la viscosité est maximale, la loi se courbe. Le maximum atteint dépend de la pression, et l'erreur que l'on peut y commettre sur les paramètres d'ajustement augmente. L'ajustement des données requiert beaucoup de précaution.

Cette courbure est due aux fonctions de Hankel, mais peut également être provoquée par des effets de taille finie. Dans notre cas, nous évaluons que la longueur de pénétration visqueuse est, dans la situation la plus défavorable (à savoir près de T_C pour une pression de 0 bar), de l'ordre de 0,6 mm. Cette valeur reste inférieure à D , et aux dimensions géométriques de la cellule (de l'ordre du mm, chapitre 3). Nous estimons donc que nos résultats peuvent être ajustés directement à l'aide des relations présentées, pour en extraire η à toute pression et température. Malheureusement, nous n'avons pas eu le temps de

conclure cette analyse.

Juste au-dessous de la transition superfluide, les lois de la fig. 5.6 continuent de suivre la dépendance obtenue dans l'état normal, jusqu'à ce que le rapport ρ_n/ρ ait un effet notable (nous l'indiquons sur le graphique par les droites pointillées). En encart, nous présentons un résultat typique obtenu à ultra-basse température : l'effet conjoint des diminutions de ρ_n/ρ et η tend à donner une dépendance en loi de puissance, clairement distincte de la relation (5.5) haute température. Encore une fois, l'ajustement précis des données est nécessaire.

Sur la fig. 5.7, nous montrons les fréquences f_{fluide} extraites du graphique précédent. L'axe des abscisses correspond à la densité du fluide normal normée à la densité du tantale ρ/ρ_{fil} ($\rho_{fil} = 16,6 \text{ g/cm}^3$).

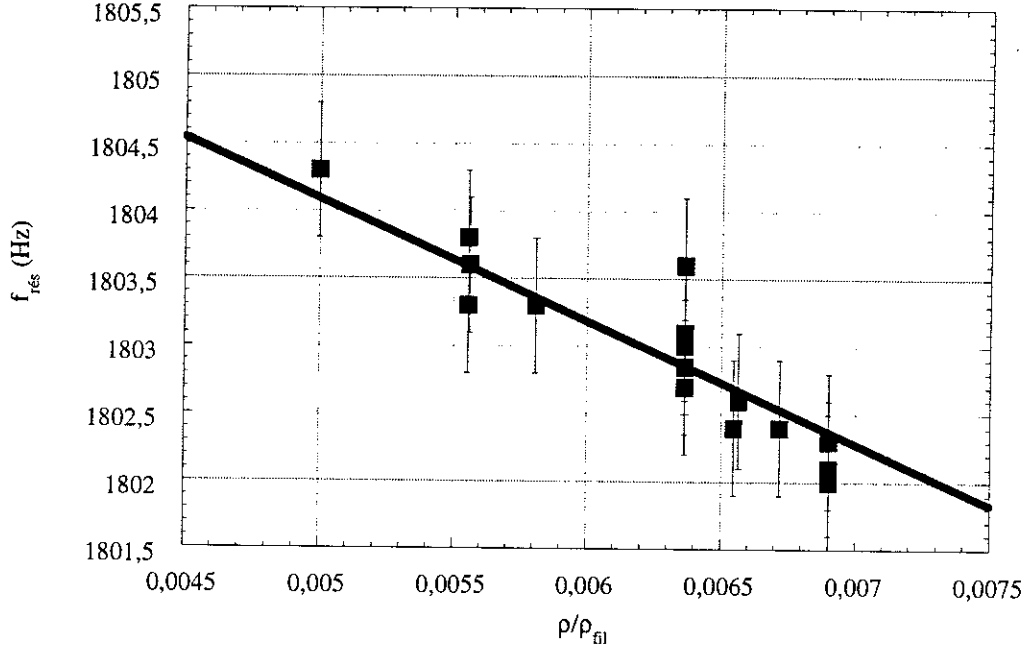


FIG. 5.7: Fréquence de résonance f_{fluide} extraite du graphique précédent, en fonction de la densité de l' ^3He liquide normée à la densité du fil vibrant (nous utilisons $\rho_{fil} = 16,6 \text{ g/cm}^3$). Les données dans deux champs magnétiques différents sont présentées. 120,5 mT et 37,3 mT. Les barres d'erreur sont de $\pm 0,5 \text{ Hz}$, de l'ordre de la reproductibilité de la fréquence de résonance. La droite est un simple ajustement de type (5.4) : $f_0 (1 - \frac{1}{2}x)$. Nous extrayons ainsi la fréquence de résonance à vide du fil : $f_0 = 1808,6 \text{ Hz}$.

La droite correspond à la loi (5.4), et nous permet de définir la fréquence de résonance à vide du fil vibrant ($f_0 = 1808,6 \text{ Hz}$). Typiquement, la reproductibilité de nos résultats, incluant le cyclage à l'ambiante et des mesures en différents champs magnétiques, est de l'ordre de $\pm 0,5 \text{ Hz}$. Quelques écarts ont cependant été observés, de l'ordre de 1 Hz,

imputables nous pensons à différentes routines d'ajustement des raies.

Nous nous sommes limités à une approche pragmatique : en fig. 5.8, nous donnons les calibrations $\Delta f(P, T)$ auxquelles nous sommes parvenus.

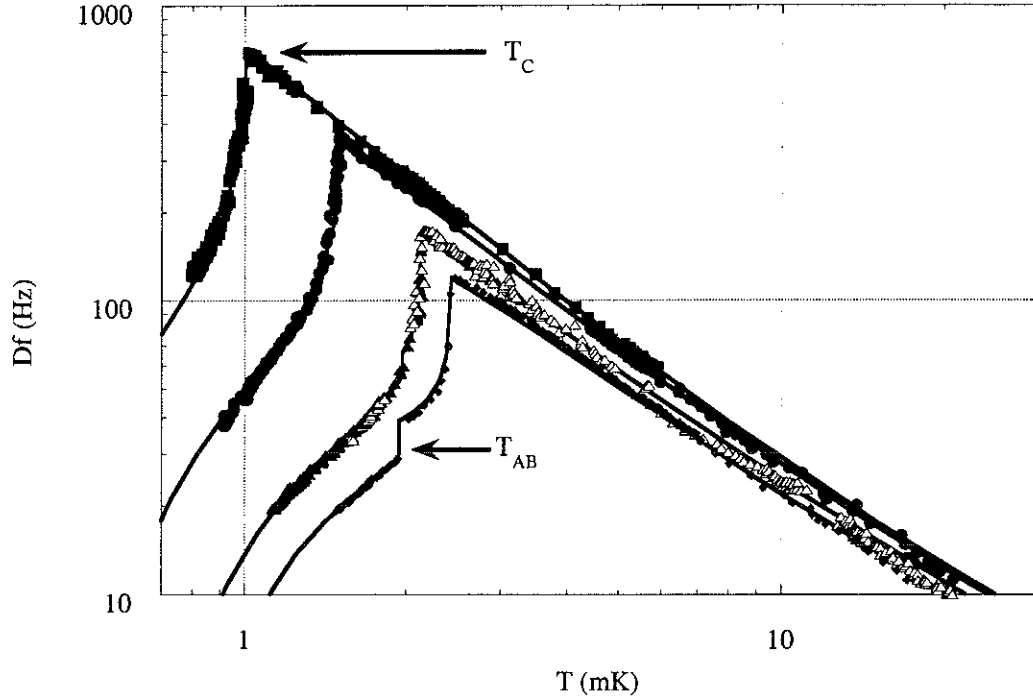


FIG. 5.8: Calibrations $\Delta f(P, T)$ du fil de tantale ($a = 0,125$ mm, $D = 3$ mm, $\rho_{fil} = 16,6$ g/cm³ et $f_0 = 1809$ Hz) obtenues à l'aide de la RMN du platine (continue dans 120,5 mT, et pulsée dans 132,3 mT). ■ : 0,6 bar. ● : 5,2 bar. ▲, △ : 17 bar. ◆ : 29,5 bar. Les symboles pleins se réfèrent à la RMN pulsée, et creux à la RMN continue. La dispersion sur ce graphique est de l'ordre de la taille des symboles, soit $\pm 3\%$. Nous notons la transition superfluide T_C , et la transition entre les deux phases superfluides $A - B$. Les ajustements sont basés sur le programme de Lancaster [126] modifié, commenté dans le texte.

Les ajustements en ligne pleine sont tirés du programme de Lancaster [126] que nous avons du modifier. Près de T_C dans la phase normale, nous ne notons aucun aplatissement notable de Δf , ce qui nous pousse à proposer de réévaluer à la baisse la longueur de glissement. Juste au-dessous de T_C , nos mesures diffèrent de près de 25 % de la calibration proposée par le groupe de Lancaster. Si le fil vibrant est utilisé en thermomètre dans cette gamme avec ces anciens paramètres, la température déduite est erronée et donne des aberrations dans les expériences auxquelles elle se rattache (cas de certains résultats de Chen [204] 1999 et de nos résultats préliminaires sur l'aérogel). Dans cette gamme, nous "déformons" empiriquement la calibration initiale afin d'ajuster nos données. Aux plus basses températures présentées, nous avons simplement supposé que l'échelle de température utilisée par le programme de calibration doit être réévaluée de 20 % à la

hausse (nous revenons sur ce point ci-dessous).

Remarquons enfin que la transition $A - B$ entre les deux phases superfluides de l' ^3He est clairement marquée sur nos données (mesurées en réchauffement). Nos mesures dans la phase A sont tout à fait reproductibles, ce qui semble indiquer que dans notre géométrie, la texture du paramètre d'ordre est fixe et bien définie (section 10.1.2). Pour la phase B , l'analyse quantitative finale de nos résultats doit permettre de remonter à la densité de quasi-particules dans le superfluide, fixant une échelle de température révisée pour le viscosimètre. C'est celle que nous avons utilisée dans nos expériences sur l'aérogel. De nouvelles mesures, aux ultra-basses températures, sont également nécessaires pour étendre ce travail.

Le décalage de 20 % que nous proposons pour l'échelle ultra-basse température s'expliquerait par une erreur dans la calibration des thermomètres des anciennes expériences (Guénault et al. [182] 1986). Ce résultat est cohérent avec les récents travaux de Bäuerle et al. [183] 1998, où l'échelle de température est obtenue en utilisant le fil vibrant en bolomètre¹⁶, et non en viscosimètre. Cette étude est rattachée aux expériences " cosmologiques " utilisant l' ^3He (Bradley et al. [170] 1995, Bäuerle et al. [168] 1996, et Ruutu et al. [169] 1996). Nous avons poursuivi ces mesures en collaborant au projet MacHe3 (Matrix of Cells of superfluid ^3He , Mayet et al. [184] 2000), qui propose d'utiliser ce type de bolomètre pour détecter la matière noire. Nos résultats récents à ce sujet sont en cours d'analyse et ne sont pas l'objet de cette thèse.

La réalisation de tels bolomètres en série a été l'un des moteurs du développement de fils vibrants en silicium. Nous présentons en section suivante nos résultats préliminaires les concernant.

5.5 Fils vibrants en silicium

La réalisation et l'étude de fils vibrants en silicium a été démarrée au cours de la thèse de Triqueneaux [206] 2001. Les motivations concernant la physique de l' ^3He ont été exposées en section précédente. Du point de vue micromécanique, l'étude de vibreurs en silicium a fait l'objet de nombreuses publications (par exemple Stemme [191] 1991, et Ayela et al. [192] 2000).

¹⁶Le fil vibrant (usuellement un NbTi de $4,5\ \mu\text{m}$) est enfermé dans une boîte en cuivre d'une centaine de mm^3 , percée d'un trou d'un diamètre de l'ordre de $100\ \mu\text{m}$. Si l'on dépose une énergie $\mathcal{E}$ dans la boîte, la mesure de l'augmentation de l'amortissement du fil donne, via la chaleur spécifique de l' ^3He qu'elle contient, une mesure de l'énergie déposée. Cette énergie s'échappe progressivement par le trou, et la boîte se thermalise à nouveau.

Variable	Valeur	Désignation
e	16 μm	épaisseur
e'	10 μm	largeur du " pied "
a	8,5 μm	largeur du " paddle "
H	1,66 mm	hauteur du " pied "
L	1,82 mm	longueur du " paddle "

TAB. 5.1: Dimensions du fil vibrant en silicium EB2. Elles ont été mesurées au MEB. La raideur du fil est due à ses " pieds ", et la partie active correspond à l'extrémité oscillante, le " paddle ".

La technique de réalisation est décrite dans Triqueneaux [206] 2001. En quelques mots, nous démarrons avec une plaquette de silicium (15mm×10mm), dans laquelle nous gravons par une attaque chimique une fenêtre de 5 mm×5 mm, ne laissant qu'une membrane extrêmement fine sur l'une des faces (de l'ordre de 20 μm). Celle-ci a été au préalable recouverte d'une fine couche de niobium (typiquement 1000 Å, le conducteur électrique), sur laquelle un masque d'aluminium a été déposé. Ce masque est un dessin de la structure à graver, pour nos premiers fils un carré rappelant des cages de football. Au cours de la dernière étape, une gravure ionique (RIE) perce la membrane et libère la structure protégée par l'aluminium. Une image MEB (microscopie électronique à balayage) d'un fil de silicium est présentée en fig. 5.9. Ses dimensions, mesurées au MEB également, sont fournies dans le tableau 5.1.

Les premiers fils vibrants réalisés par Triqueneaux [206] 2001 montraient un comportement très non linéaire. Ils étaient très fins (de l'ordre de 5 μm), et le niobium avait été remplacé par du vanadium qui, visiblement du fait d'une incompatibilité cristallographique avec le silicium, avait fortement distordu la structure. Nos fils pourvus de niobium sont parfaitement droits, et le signal détecté nous autorise à les exciter à des niveaux suffisamment faibles pour qu'ils soient linéaires.

Nous avons testé ces échantillons dans le vide à 4,2 K. Une raie de résonance typique est montrée en fig. 5.10. Elle est parfaitement linéaire, et il est possible d'extraire une fréquence de résonance naturelle f_0 ainsi qu'une largeur intrinsèque Δf à l'aide des ajustements proposés en section 5.4. Nous obtenons $f_0 = 4692,7 \text{ Hz}$ et $\Delta f = 150 \text{ mHz}$ pour

l'échantillon EB2. Le facteur de qualité Q correspondant est de l'ordre de $3 \cdot 10^4$, ce qui est une valeur élevée.

Nous avons vérifié que V_0 est linéaire en I_0 et quadratique en B_0 . Aucune anomalie rattachée à ces deux termes n'a pu être décelée sur les paramètres de résonance mesurés. La connaissance de notre gain d'amplification nous permet de remonter à la masse vibrante m_{vibre} de la structure. En quelque sorte, la connaissance de V_0 permet de " peser " le fil. Nous obtenons comme évaluation $m_{vibre} = 0,45 \mu\text{g}$, en accord avec les longueurs mesurées au MEB. Afin de prédire les propriétés micromécaniques de ces vibreurs, nous avons appliqué à ces structures le critère de Rayleigh déjà présenté, en considérant pour chaque pied la déformation d'une poutre droite (un cantilever, voir Timoshenko [189]) :

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{E_{fil}}{\rho_{fil}}} \left(\frac{e}{H^2} \sqrt{\frac{e'H}{aL}} \right) \frac{0,841^2}{\sqrt{1 + \frac{33}{70} \frac{e'H}{aL}}}$$

$$l = L$$

$$l' = L$$

où la structure est supposée être une poutre droite parfaite, de module de Young E_{fil} . Nous

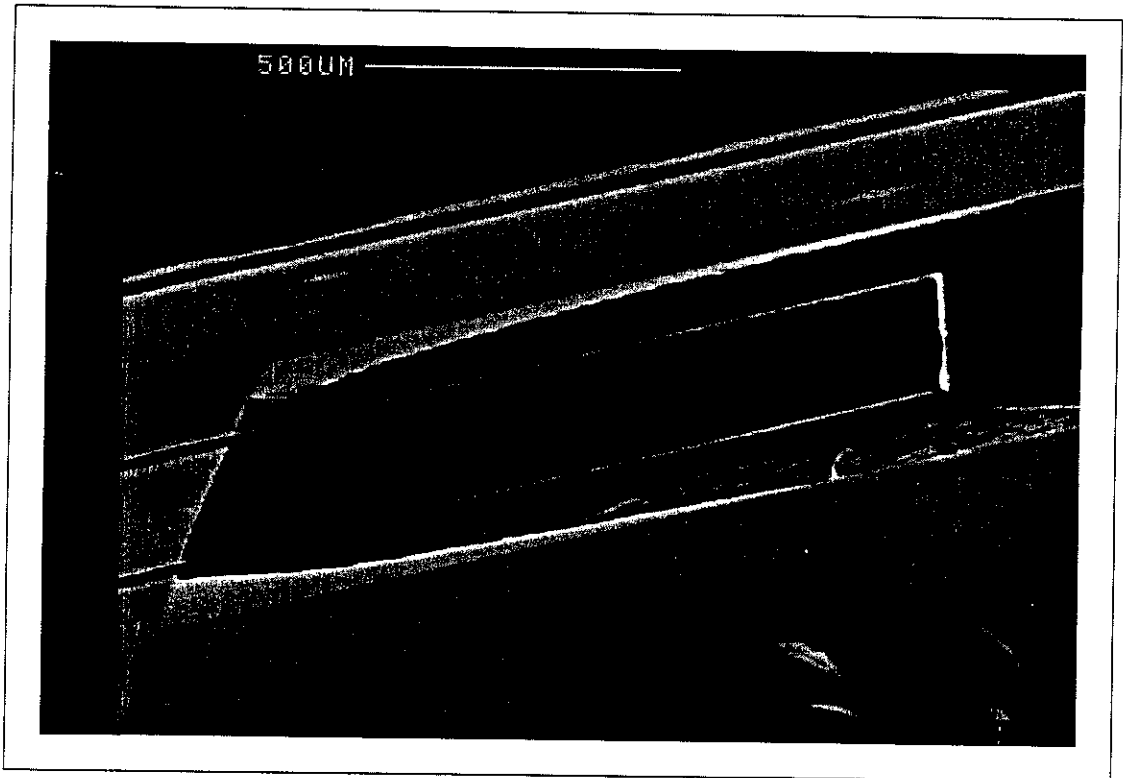


FIG. 5.9: Image MEB (microscope électronique à balayage) de l'un de nos fils vibrants en silicium (échantillon EB2). L'épaisseur du fil est de l'ordre de $10 \mu\text{m}$ (tableau 5.1).

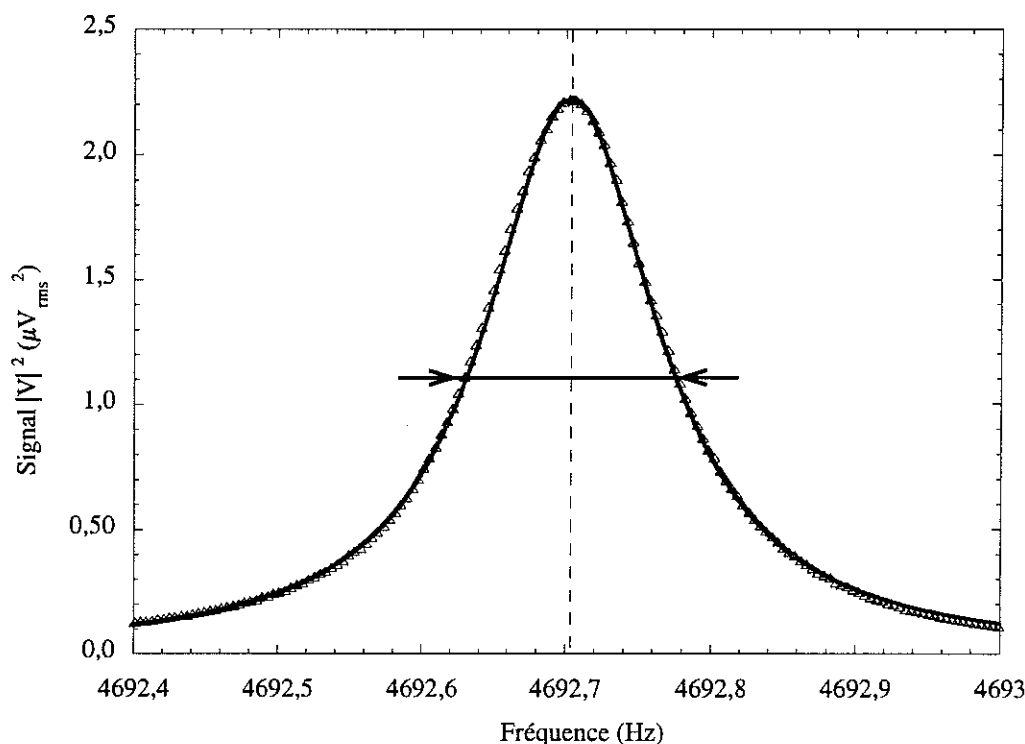


FIG. 5.10: Résonance obtenue pour l'échantillon de silicium EB2 dans le vide à 4,2 K. L'ajustement est réalisé sur les lois de la section précédente, et fournit $f_0 = 4692,7$ Hz (verticale pointillée) et $\Delta f = 150$ mHz (double flèches), pour $V_{max} = 1,5 \mu V_{rms}$. Le champ magnétique de mesure était de 6 mT, et le courant de $5 \mu A_{rms}$, ce qui correspond pour notre fil à une force de $65 pN_{rms}$. Nous évaluons l'amplitude de vibration x_0 du fil à $4 \mu m$. Le gain d'amplification est de 1.

avons négligé la couche de métal déposée sur le silicium.

L'amortissement intrinsèque au fil de silicium à 4,2 K est très faible (150 mHz), ce qui est encourageant. Aussi, la fréquence f_0 est reproductible après cyclage thermique à l'ambiante, dans les mêmes proportions que les fils de tantale (soit $\pm 0,5$ Hz). En revanche, il reste à vérifier que l'ensemble des propriétés mécaniques ne varie pas de façon catastrophique avec la température, lorsque le silicium est refroidi. Kleiman et al. [193] 1987 mesurent une dissipation qui décroît lorsque la température s'abaisse, mais ils notent une anomalie dans la vitesse du son au sein de leur vibreur de silicium (vers 50 mK, visiblement fonction du dopage en bore). Mikailovich et al. [194] 1992 confirment ce résultat, et montrent que l'augmentation du facteur de qualité à basse température va de pair avec une plus forte sensibilité du système à la non linéarité géométrique.

Aussi, des mesures de viscosité sur l' ^3He sont nécessaires pour valider le dispositif. En effet, des arrêtes trop pointues sur le vibreur pourraient être le siège de phénomènes turbulents dans l' ^3He normal. Pour l' ^3He superfluide, elles pourraient briser les paires de

Cooper en générant dans le fluide des vitesses locales supérieures à la vitesse critique, et rendre la mesure à ultra-basse température impossible.

Néanmoins, les caractéristiques de ces vibreurs sont très intéressantes. Citons simplement la possibilité de réaliser (presque) n'importe quelle géométrie d'oscillateur : des boucles, des carrés, des carrés à plusieurs branches (" raquettes de tennis "), des oscillateurs en torsion, des dispositifs couplés, qui tous peuvent avoir leur intérêt. La comparaison des paramètres mécaniques pertinents, faite en tableau 5.2, est également instructive. D'après

Paramètre	Fil de silicium	Fil de niobium-titane	Fil de tantale
E_{fil}	$130 \cdot 10^9 \text{ Pa}$	$0,13 \cdot 10^9 \text{ Pa}$	$0,014 \cdot 10^9 \text{ Pa}$
ρ_{fil}	$2,33 \text{ g/cm}^3$	$6,5 \text{ g/cm}^3$	$16,6 \text{ g/cm}^3$

TAB. 5.2: Paramètres mécaniques des différents matériaux utilisés pour la fabrication de fils vibrants (en accord avec nos formules). Le silicium est à la fois plus rigide et plus léger.

la discussion de la section 5.4, il apparaît que ces fils de silicium se prêtent tout à fait à la réalisation de viscosimètres dans l' ^3He . D'ailleurs récemment, Kraus et al. [195] 2000 ont étudié les excitations de l' ^4He liquide à l'aide d'un vibreur micromécanique de silicium en forme de corde.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Dans cette partie, nous avons décrit les techniques utilisées au cours de notre travail de thèse. Nous avons développé certaines d'entre elles afin de répondre aux mieux à nos besoins.

Nous avons calculé numériquement le champ dipolaire généré par l' ^3He -2D, dans la limite des plaquettes infinies et du solide paramagnétique. Nous avons montré que nos résultats sont consistants avec les mesures, et prolongent le travail préliminaire du groupe de Los Angeles.

La continuation de ce travail passe par l'ajustement direct des raies de RMN mesurées. Nous avons montré que l'on remonte ainsi à une information sur la densité des couches adsorbées, et sur l'échange entre spins.

Une grande part de notre travail a été de garantir l'échelle de température submillikelvin. Nous avons montré que les calibrations proposées par le groupe de Lancaster [126] pour les fils vibrants étaient erronées dans la zone intermédiaire entre le fluide normal et le régime balistique superfluide.

La continuation de ce travail passe par l'extraction quantitative (réévaluation) des paramètres pertinents dans ce problème, comme la viscosité η , la longueur de glissement et la densité de liquide normal ρ_n . De nouvelles mesures à ultra-basses températures sont nécessaires pour confirmer notre proposition de correction de l'échelle de température.

Nous avons participé également à l'étude des fils vibrants comme bolomètre à ultra-basse température (participation au projet MaCHe3). Cette technique permet également de définir l'échelle de température. L'analyse de nos données est en cours (C. Winkelmann, thèse en cours), de nouvelles expériences étant également prévues.

Enfin, nous avons contribué à développer la technique des fils vibrants en silicium, initiée au laboratoire. Nous avons montré que ces structures sont tout à fait disposées, du point de vue micromécanique, à servir de viscosimètre dans l' ^3He , et avons défini les

points importants du problème.

La continuation de ce travail requiert de tester ces fils de silicium au-dessous du Kelvin, afin de vérifier que le comportement de leurs caractéristiques mécaniques reste raisonnable lorsqu'on abaisse T . La mesure de la viscosité de l' ^3He à l'aide de ces oscillateurs est un point clé, qui valide leur fonctionnement. Enfin, le développement de géométries plus complexes de fils est envisageable dans un futur plus lointain.

Il est indispensable de garder à l'esprit que ce sont ces techniques expérimentales performantes qui permettent de réaliser des mesures physiques de qualité, et ainsi de remonter aux propriétés fondamentales de la matière.

Deuxième partie

^3He Bidimensionnel

^3He -2D

INTRODUCTION

7.1 Hélium à deux dimensions

Les travaux sur l'Hélium à deux dimensions (2D) furent initiés par l'étude de la physisorption de gaz rares et d'azote sur différents substrats, en particulier de graphite par Duval (Duval et Thomy [1] 1964) à Nancy. Dans ce type d'expériences, les molécules sont adsorbées sur l'échantillon et s'agencent en couches atomiques. Ce processus est discuté plus avant en section 7.3. Pour espérer détecter quelque signal que ce soit, la première des qualités que doit posséder un substrat d'adsorption est d'avoir une grande surface spécifique, dans un volume (une masse) raisonnable. On utilise donc beaucoup les poudres, ou les corps poreux. A la même époque, d'autres pionniers réalisèrent les premières expériences de résonance magnétique nucléaire (RMN, chapitre 4) sur de l' ^3He bidimensionnel (^3He -2D), en utilisant un substrat de Zéolite¹ (Careri et al. [2] 1965).

Quelques années plus tard, de nombreuses équipes étudièrent ces signaux magnétiques en immergeant directement leur substrat au sein d' ^3He liquide. Parmi les premiers, Brewer utilisa du Vycor² (Brewer et Rolt [3] 1972), mais ne descendit en température qu'aux alentours de 50 mK. Le groupe d'Helsinki confina de l' ^3He entre des feuilles de Mylar³ (Ahonen et al. [4] 1976), et dans du Carbolac⁴ (Ahonen et al. [5] 1978), et refroidit ce système au-dessous du mK. Le groupe de Grenoble utilisa de la poudre d'Alumine de 40 nm, de la poudre de platine de 8 μm ainsi que du Grafoil⁵ (Godfrin et al. [6] 1978), substrat également choisi par le groupe de Los Angeles (Bozler et al. [7] 1978). A l'origine, la plupart de ces expériences visait à étudier l'effet du confinement sur l' ^3He , dans ses

¹Zéolite : corps poreux, assez inhomogène, naturel (volcanique) ou artificiel

²Vycor : verre de silice poreux possédant une structure très régulière. Le Vycor de cette publication se caractérisait par une taille de pores de 3,6 nm.

³Mylar : fines feuilles de polymère. Dans cette expérience, l' ^3He était confiné dans un sandwich de 500 feuilles de 3,6 μm , séparées par environ 4 μm .

⁴Carbolac : poudre de carbone extrêmement fine, les particules ayant une taille moyenne de 9 nm.

⁵Grafoil : substrat de graphite dont les caractéristiques structurales sont exposées dans la section suivante.

phases liquide de Fermi et superfluides. A l'heure actuelle, une nouvelle classe de matériaux est disponible pour ce type d'études : les aérogels⁶. Nous présentons en chapitre 11 nos résultats concernant l'³He confiné dans ce type d'échantillons.

L'analyse de ces expériences se heurta au manque de connaissances de l'époque. Toutes mettent cependant en évidence, en plus de la susceptibilité constante de l'³He liquide (susceptibilité de Pauli caractéristique des liquides de Fermi), une contribution, associée au confinement, de type Curie-Weiss à tendance ferromagnétique aux plus basses températures (loi en $\frac{C}{T-\theta}$ obtenue typiquement pour les solides). En revanche, la nature exacte de ce magnétisme resta inconnue, différents points demeurant obscurs :

- En principe, la constante C , dite constante de Curie, mesure la quantité d'³He adsorbée. Et certaines expériences rendent compte de plus de cinq couches atomiques (c'est le cas du Mylar, du Carbolac et des poudres en général), alors que d'autres (dans le cas du Grafoil) n'en comptent qu'une au grand maximum. Combien de couches atomiques contribuent donc réellement au signal, et sont-elles toutes solides ou certaines sont-elles liquides ? Peut-être même sont-elles toutes liquides, et cette augmentation de l'aimantation est caractéristique de l'³He liquide en milieu confiné ? Quoi qu'il en soit, de tels écarts ne sont pas acceptables expérimentalement, et ne peuvent s'expliquer que par la difficulté à mesurer précisément la surface des échantillons, et la mauvaise qualité des spectromètres RMN de l'époque.
- La constante θ quant à elle mesure les interactions entre spins nucléaires. Toute la question est de savoir si elle provient d'une interaction entre Fermions de la (ou des) couches localisées, ou s'il s'agit d'un mécanisme couplant le liquide au solide. Typiquement, θ est de l'ordre de 0,5 mK en moyenne, mais varie de 0,1 mK à 0,8 mK suivant les auteurs. Là encore, on peut blâmer les conditions expérimentales (perte de signal RMN à haute température et fiabilité de l'échelle de température utilisée par chaque groupe). L'analyse effectuée est également parfois assez spéculative : les premières publications considèrent qu'il ne s'agit ni plus, ni moins que d'³He liquide " comprimé " par l'attraction du substrat, alors que plus tard certains auteurs affirmèrent résoudre des contributions magnétiques provenant de différentes couches solides, et ayant différentes interactions. Il est impossible de conclure.

La conviction qui finit par s'imposer fut que ce signal magnétique provient effectivement de couches bidimensionnelles adsorbées. A ce titre ces résultats, d'un point de vue qualitatif, sont fondamentaux : ils montrent que l'on peut étudier, si tant est que l'on

⁶ Aérogel : verre de silice à très haute porosité. Les propriétés des aérogels sont discutées en section 10.2.

utilise des techniques suffisamment performantes, le magnétisme nucléaire de couches atomiques bidimensionnelles et que ces couches, du fait de leur tendance au ferromagnétisme, doivent receler toute une physique liée à l'interaction entre spins nucléaires.

Ils stimulèrent l'étude de l' ^3He -2D sur substrat d'argent fritté et sur graphite, où les quantités adsorbées sont contrôlées précisément et ne sont pas en contact avec de l' ^3He liquide massif. L'argent fritté possède l'avantage indéniable d'être bien meilleur conducteur de chaleur que le graphite, et permet rapidement des études à très basses températures (Okuda et al. [8] 1985). Cependant, la taille des grains d'argent et leur qualité de surface ne permet pas d'exposer aux atomes d' ^3He de très grands domaines atomiquement plats, et ne permet donc pas l'étude de systèmes bidimensionnels " propres ". Il en va tout autrement de certains substrats de graphite, qui comme nous le verrons dans la section suivante, possèdent des zones atomiquement planes, idéales pour l'étude des interactions Fermioniques dans le plan d'adsorption. Pour l'étude de l' ^3He -2D sur graphite, un travail colossal a été réalisé dans le monde entier, alliant les mesures de chaleur spécifique, de diffraction de neutrons et de RMN, qui dépasse de loin celui réalisé pour l' ^3He -2D sur argent fritté (voir section 7.8). Bien que les propriétés de ce dernier système soient qualitativement similaires au premier, certaines spécificités pourraient provenir de l'aspect désordonné du substrat. Entre autres, ces questions ont motivé de nouveaux travaux sur le Vycor (Golov et Pobell [11] 1995, et Golov et Pobell [12] 1996).

Si l'Hélium massif est pris comme système modèle pour l'étude de la physique des particules quantiques fortement corrélés, L'Hélium adsorbé sur graphite représente son pendant à deux dimensions. Entre autres, l' ^3He -2D est un véritable système modèle pour l'étude des Fermions en interaction à basse dimensionnalité. Une discussion détaillée et nombre de références concernant l'Hélium à deux dimensions peuvent être trouvées dans l'article de revue de Godfrin et Rapp [9] publié en 1995.

Au cours de cette thèse, nous avons étudié les propriétés RMN de films solides d' ^3He adsorbé sur graphite. Cette technique de mesure est présentée brièvement en chapitre 4. Nos résultats expérimentaux sont exposés en chapitre 8. Les sections suivantes visent à présenter les bases théoriques et expérimentales nécessaires à la compréhension de ce type de physique.

7.2 *Le graphite comme substrat*

En physique des surfaces, pour réaliser une quelconque mesure sur une quantité macroscopique de matière, il est nécessaire d'utiliser des substrats possédant des surfaces spécifiques importantes. Typiquement, les échantillons usuels se trouvent dans la fourchette $1-100 \text{ m}^2/\text{g}$, ce qui permet à l'expérimentateur de sonder les propriétés physiques de quelques milli-moles d'atomes adsorbés. En second lieu, il est primordial de posséder des échantillons ayant d'excellents états de surfaces. Cela signifie d'abord, si le substrat est cristallin, d'exposer à l'adsorbat toujours le même site cristallographique, soit à l'aide de cristaux à symétrie cubique, soit au contraire à l'aide de systèmes très anisotropes. Ceci garantit l'homogénéité des résultats. Ensuite, il faut que ces facettes cristallographiques soient les plus grandes possibles, c'est-à-dire atomiquement planes sur des distances suffisamment grandes pour que les atomes adsorbés puissent être considérés comme un ensemble plan, et bidimensionnel.

Toutes ces qualités sont réunies par les substrats de graphite. Ils présentent des surfaces spécifiques de l'ordre de $20 \text{ m}^2/\text{g}$ pour des densités de l'ordre de $1 \text{ g}/\text{cm}^3$. Il s'agit de graphite exfolié, c'est-à-dire de flocons de graphite comprimés et roulés en feuilles. La structure microscopique de chacun de ces flocons, ou cristallites, est celle du graphite : un empilement hexagonal avec une distance entre carbone proches voisins de $1,42 \text{ \AA}$, et de $3,37 \text{ \AA}$ entre plans (fig. 7.2). Du fait de la nature lamellaire du graphite, due aux faibles forces attractives entre plans hexagonaux, cette mise en forme oriente très fortement les cristallites. Le matériau obtenu est par conséquent très anisotrope, et présente de larges plans cristallographiques (0002) que l'on nommera par la suite plaquettes.

Il existe différents types de graphite exfoliés, de noms génériques Grafoil, Papyex⁷ et ZYX. L'orientation de ces plaquettes ainsi que leur taille en dépend beaucoup. En moyenne pour le Grafoil et le Papyex, comme on peut le mettre en évidence en Microscopie Electronique et en Microscopie Tunnel à Balayage (STM), l'axe $\vec{c}$ des cristallites est orthogonal au plan des feuilles (bases hexagonales dans le plan), avec une dispersion de l'ordre de 30° autour de cette direction. Il est fait cependant référence pour ces substrats de 30 % à 50 % de petites plaquettes d'orientation quelconque. La dimension moyenne des plaquettes orientées est de l'ordre de $60 \text{ \AA}$ (Grafoil) à $1000 \text{ \AA}$ (ZYX). Pour le Papyex que nous avons utilisé, nous pouvons prendre comme valeur typique $500 \text{ \AA}$.

Notons que pour un paramètre de maille de l'ordre de $4 \text{ \AA}$, ceci représente environ 14000

⁷La cellule expérimentale utilisée au cours de cette thèse est faite de Papyex (voir chapitre 3).

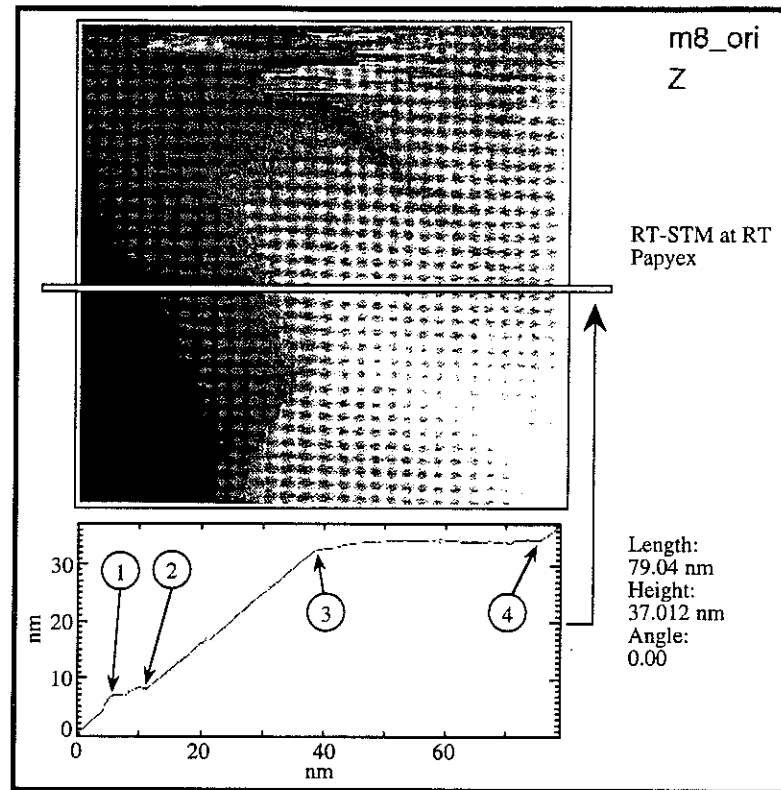


FIG. 7.1: Image STM réalisée à l'université de Tsukuba (H. Fukuyama, dans Bäuerle [201] 1996). Le graphique sous l'image représente l'altitude (en nm) mesurée au-dessus de la feuille de graphite suivant la ligne blanche. On y distingue quatre défauts : ① et ③ sont de concavités négatives, alors que ② et ④ sont de concavités positives. Leur influence est discutée en sections 7.7 et 7.8.

atomes d' ^3He , chiffre raisonnablement grand. Ces résultats sont obtenus par diffraction de neutrons sur les couches solides d'Hélium adsorbées (Godfrin et Lauter [10] 1995 pour les références, voir également cet article pour une description plus complète des propriétés physiques des substrats de graphite). Les effets de taille finie dus aux plaquettes sont discutés en chapitre 8 sur la base de nos résultats concernant l' ^3He -2D. Ci-dessus, en fig. 7.1 une image STM d'un échantillon de Papyex, ainsi qu'une vue schématique de la surface d'un échantillon (fig. 7.2). Alors que de grandes zones sont atomiquement planes, les bords et jonctions de plaquettes constituent des défauts, dont quatre sont visibles en fig. 7.1. Leur influence est discutée en sections 7.7 et 7.8, et ne peut être négligée dans notre analyse quantitative du chapitre 8.

Il est important de remarquer que ce sont ces caractéristiques intrinsèques aux échantillons qui vont originellement conditionner la structure des phases adsorbées, et qui en font la grande qualité. De plus, la taille ainsi que l'orientation des plaquettes ont également

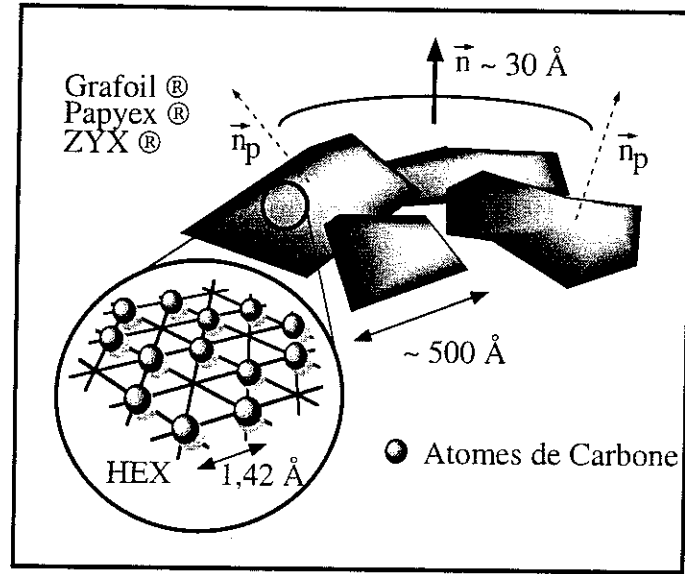


FIG. 7.2: Vue schématique d'un échantillon de Grafoil, Papyex ou ZYX. Les plaquettes de graphite (empilement hexagonal de carbone) ont une taille moyenne de 500 Å. Leurs normales $\vec{n}_p$ sont orientées, avec une dispersion de 30° environ, suivant la normale $\vec{n}$ aux feuilles.

des signatures indirectes sur certaines propriétés de l' ^3He -2D, comme la forme des raies de RMN (à forte polarisation, voir la section 8.4). Ce point est spécialement discuté en section 4.3.

7.3 Potentiel d'adsorption

La physisorption est due aux faibles forces attractives ressenties par les molécules d'un gaz se déplaçant dans l'environnement immédiat d'une surface solide. Ces forces ne sont rien d'autre que les forces dites de Van der Waals.

Décrivons-en rapidement l'origine. Les charges électriques du noyau (positif) et du cortège électronique (négatif) des atomes se compensent, mais elles ne sont pas situées au même endroit de l'espace et créent un faible moment dipolaire électrique. L'interaction de ces moments dipolaires fluctuants crée une force entre atomes attractive à longue distance, supplantée aux tailles atomiques par la répulsion entre nuages électroniques, qui refusent de s'interpénétrer. La somme de ces deux contributions dérive d'une énergie potentielle. Cette énergie entre atomes d'Hélium et de graphite sera notée dans la suite $V_{\text{He-Gr}}$, c'est le potentiel d'adsorption. Des forces dipolaires du même type existent bien évidemment également entre atomes d'Hélium, et donnent lieu à un potentiel d'interaction que l'on notera $V_{\text{He-He}}$.

Pour une assemblée d'atomes d'Hélium adsorbés sur du graphite, on écrit l'Hamiltonien de la façon la plus générale :

$$\mathcal{H} = E_{\text{cinétique}} + V_{\text{He-Gr}} + V_{\text{He-He}}$$

où $E_{\text{cinétique}} = \sum_i^N p_i^2/2m_i$ représente l'énergie cinétique totale du système formé par les N atomes de masse m_i et d'impulsion p_i . Notons que les potentiels d'interaction sont les mêmes pour ^3He et ^4He , puisqu'ils ont même cortège électronique. Du fait de son moment magnétique nucléaire, des termes éminemment plus faibles doivent être ajoutés à cette équation pour l' ^3He . Leurs effets " hyperfins " ⁸ sont discutés dans la suite (section 7.6).

En principe, connaissant les potentiels $V_{\text{He-Gr}}$ et $V_{\text{He-He}}$, si l'on adjoint à cette formule les règles de base de la statistique quantique permettant la construction des états propres du système total, on possède toute l'information disponible et nécessaire.

En pratique, partir de ces premiers principes pour calculer les propriétés physique du système relève de l'exploit. Cependant, certaines approches simplifiées sont possibles, et permettent de saisir les aspects fondamentaux des films adsorbés. C'est ce que nous nous proposons de décrire dans les paragraphes suivants.

Il est commode d'écrire, au premier ordre, $V_{\text{He-Gr}} = k_B V_S(z)(1 + V_\perp(x, y))$, avec $|V_\perp(x, y)| \ll 1$ et $V_S(z)$ valeur moyenne en Kelvin du potentiel orthogonalement au plan d'adsorption, c'est-à-dire que $\iint V_\perp(x, y) dS = 0$. Joly et al. [14] 1992 ont proposé un potentiel approché pour $V_S(z)$ qui reproduit remarquablement les premiers états liés des deux isotopes de l'Hélium sur graphite. Sa profondeur est de -190K environ. Le terme $V_\perp(x, y)$ quant à lui provient de la disposition latérale des atomes d'Hélium au-dessus de la maille de graphite (voir Cole et al. [15] 1981) : le potentiel d'adsorption est légèrement plus profond (de l'ordre de 20 %, soit 40 K sur $V_S(z)$) au centre de l'hexagone de carbone par rapport aux bords. C'est ce que l'on nomme la corrugation du substrat. Enfin, Aziz et al. [16] 1987 a proposé un potentiel approché pour $V_{\text{He-He}}$, fonction des distances entre atomes d'Hélium.

Partant de considérations de ce type, Clements et al. [17] 1993 et Roger et al. [18] 1998 ont pu calculer la densité de présence $\rho(z)$ de l'adsorbat dans la direction orthogonale au substrat, illustrée en fig. 7.3 pour l' ^4He . Les différentes approximations utilisées mettent en évidence une structure en couches atomiques, avec une première couche très bien définie et presque isolée, une seconde couche recouvrant légèrement la troisième couche, puis des oscillations correspondant aux atomes des couches supérieures. Cette structure en couches

⁸Le terme Hamiltonien hyperfin est à l'origine utilisé pour désigner l'interaction magnétique entre le

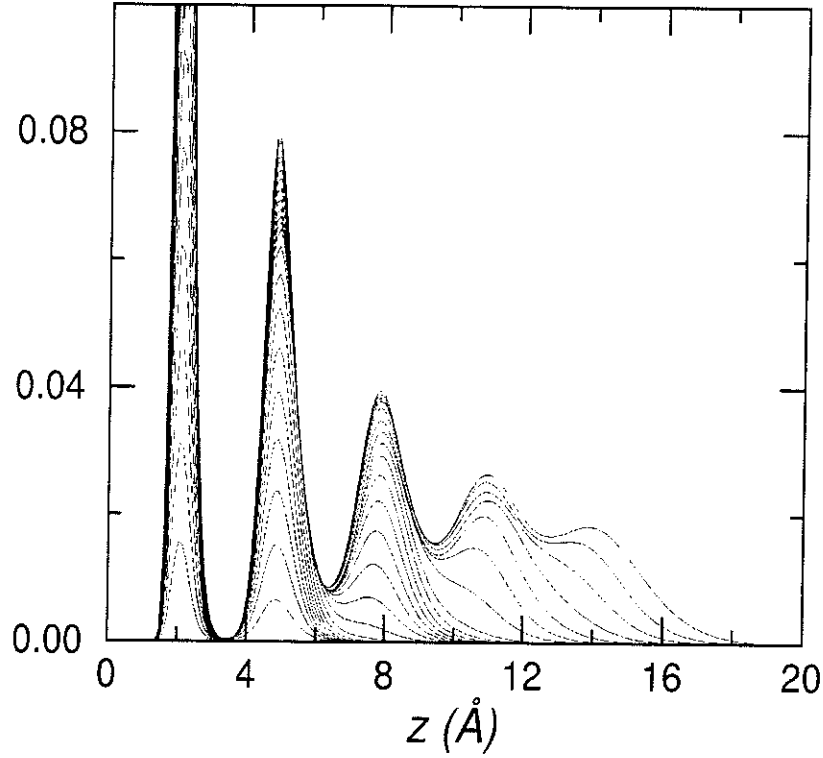


FIG. 7.3: Profil de densité $\rho(z)$ calculé dans le cas de l' ^4He (Roger et al. [18] 1998). Différentes densités sont représentées, montrant la formation de couches atomiques, depuis la première jusqu'à la promotion en cinquième couche. La solidification des première et deuxième couches a été négligée pour ce calcul. z est la distance au graphite.

bien définies est responsable des propriétés physiques 2D du système. Expérimentalement, au-delà de six couches atomiques environ, les couches adsorbées sur des plaquettes proches entrent en contact par capillarité. Le milieu ressemble alors plus à de l'Hélium confiné dans du graphite qu'à un système purement 2D.

Enfin, on peut comprendre qualitativement les propriétés structurales d'une couche en raisonnant sur une particule, et en traitant l'interaction avec le graphite et les autres atomes d'Hélium comme un potentiel effectif V^{eff} moyen. On écrit $\mathcal{H} = \sum_i^N h_i$ avec $h_i = p_i^2/2m_i + V_i^{eff}$, Hamiltonien effectif à une particule. Un tel potentiel V^{eff} est représenté schématiquement en fig. 7.4, suivant une direction du plan de la couche. Il est alors clair que :

- Si l'énergie totale E de la particule est supérieure à la hauteur H du potentiel, la

spin du proton et le spin de l'électron de l'atome d'Hydrogène.

- particule est délocalisée sur l'ensemble du plan de la couche. Il s'agit d'un fluide 2D.
- Si l'énergie totale E de la particule est inférieure à cette barrière, la particule se localise et l'on a un solide cristallin 2D quantique.

En s'appuyant toujours sur les cours élémentaires, par exemple Cohen-Tannoudji et al. [213], on peut développer ce potentiel d'interaction aux alentours d'un de ses minima (x_0, y_0) (fig. 7.4). Pour simplifier, supposons que V^{eff} y possède une symétrie cylindrique. Si l'on pose $k = \partial^2 V^{eff} / \partial x^2(x_0, y_0) = \partial^2 V^{eff} / \partial y^2(x_0, y_0)$, raideur du potentiel, on est ramené au cas d'un oscillateur harmonique à deux dimensions.

La solution bien connue de ce problème est, pour le fondamental :

$$E_0 = \hbar\omega + V^{eff}(x_0, y_0)$$

$$\varphi_0(x, y) = \sqrt{\frac{1}{\pi\delta^2}} e^{-\frac{1}{2} \frac{(x-x_0)^2 + (y-y_0)^2}{\delta^2}}$$

$$\delta = \sqrt{\frac{\hbar}{m\omega}}$$

$$\omega = \sqrt{\frac{k}{m}}$$

E_0 est l'énergie de point zéro de l'atome dans son puits de potentiel V^{eff} , $\varphi_0(x, y)$ sa fonction d'onde individuelle orbitale et δ correspond à son étendue spatiale. Si l'on suppose que k est donné, E_0 varie comme $m^{-\frac{1}{2}}$, et δ comme $m^{-\frac{1}{4}}$. Ainsi, un atome d' ^4He , plus lourd que l' ^3He , aura une énergie de point zéro plus basse et une " taille " plus petite⁹. Ce point est mis à profit dans nos expériences (voir chapitre 8). En revanche, le détail du comportement d'un mélange $^3\text{He}/^4\text{He}$ est au-delà de ce raisonnement : nous reviendrons sur ce point.

En augmentant la densité du film, on augmente les interactions entre atomes, et par conséquent $|V^{eff}|$ et sa hauteur de barrière H . On passe ainsi du fluide au solide 2D. Si l'interaction entre atomes d'Hélium reste cependant faible, V^{eff} aura la structure de $V_{\perp}(x, y)$: les phases solides formées seront dites commensurables, car la maille du cristal 2D d'Hélium sera fixée par la maille du graphite sous-jacent. Si l'on augmente encore la densité, V^{eff} sera gouverné par l'interaction entre atomes d'Hélium, et l'on perdra la commensurabilité du solide. En revanche, le mécanisme de passage de la commensurabilité à l'incommensurabilité ne peut être détaillé par ces arguments simplistes. Nous reviendrons

⁹Les mesures de diffraction de neutrons sur les premières couches denses d' ^3He et d' ^4He (section 7.8) donnent une différence de paramètre de maille de 2.36 %, du même ordre que les 7.46 % calculés ici. En revanche, une comparaison précise échoue : l'énergie de point zéro E_0 est si grande pour ces solides quantiques, que l'approximation harmonique n'est pas suffisante pour les calculs quantitatifs.

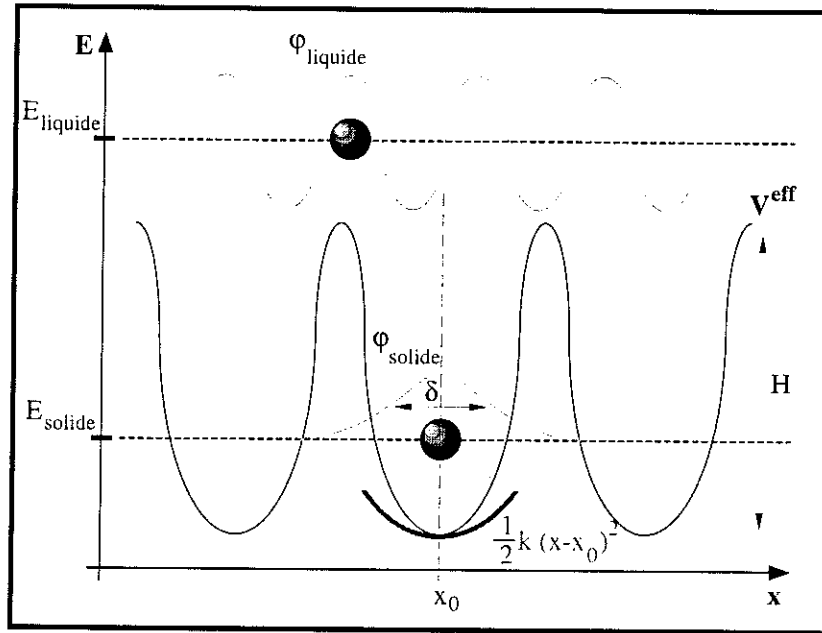


FIG. 7.4: Vue schématique du potentiel V^{eff} suivant une direction x du plan de la couche. Différents minima équivalents sont représentés, séparés par des barrières de potentiel H . Dans l'un de ces minima x_0 , dont on montre qualitativement le développement au premier ordre en $\frac{1}{2}k(x-x_0)^2$, se trouve un atome représenté par une sphère. Cet atome est caractérisé par une énergie $E = E_{\text{solide}}$, et une fonction d'onde φ_{solide} de largeur δ . Si l'énergie de la particule est supérieure à la barrière H , la particule est délocalisée. Un tel état est représenté schématiquement par une onde plane, d'énergie $E = E_{\text{liquide}}$.

sur ce point dans la suite.

Ces différentes propriétés sont mises directement en évidence par les diagrammes de phases de l' ^3He et de l' ^4He adsorbé (section 7.8). Elles forment la base de la compréhension de l' ^3He -2D, et de nos résultats exposés en chapitre 8.

7.4 Echange multiple

En mécanique classique, deux particules identiques sont toujours discernables, par définition. En effet, elles occupent à l'instant t_0 deux points distincts de l'espace, et leurs déplacements au cours du temps suivront toujours des trajectoires bien définies.

Il en va tout autrement en mécanique quantique. Les particules sont décrites par des fonctions d'ondes, et la connaissance de leur déplacement est limitée par le quantum d'action $\hbar$. Ainsi, si deux particules identiques, suffisamment éloignées spatialement à l'instant t_0 pour que l'on puisse en distinguer une comme étant A et l'autre comme étant B , entrent

en collision puis se séparent à nouveau, il est impossible de dire laquelle était nommée A et laquelle était nommée B à l'origine.

Heisenberg [19] 1926 et Dirac [20] 1926 furent les premiers à comprendre l'importance fondamentale de cette restriction intrinsèque à la mécanique quantique. Nous renvoyons à l'excellente discussion de Cohen-Tannoudji et al. [213] pour le détail de la présentation de ce problème. Dans cette section, nous limitons la discussion au cas des solides.

Considérons un ensemble de N particules identiques, dans notre cas soit de l' ^3He , soit de l' ^4He . Plaçons ces particules sur un réseau de N sites, c'est-à-dire supposons que leurs états orbitaux individuels¹⁰ $|\varphi_i\rangle$ correspondent à des fonctions d'ondes localisées en certains points de l'espace. Cette localisation se fait, dans notre cas, par le biais d'un potentiel du type décrit en section 7.3, que l'on a noté $V_{\text{He-Gr}} + V_{\text{He-He}}$, $V_{\text{He-He}}$ étant l'interaction entre atomes d'Hélium (fig. 7.5). Nous avons donc un solide cristallin quantique, notion introduite dans cette même section. Ce potentiel peut être quelconque, nous supposons simplement qu'il est indépendant du temps, et comme précédemment ne fait pas intervenir, pour l' ^3He , les termes magnétiques dus au spin qui seront traités ultérieurement (section 7.6). Encore une fois, ce potentiel est le même pour ^3He et ^4He .

La force du raisonnement de Dirac [214] est d'écrire l'Hamiltonien du système sous la forme :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 - Jk_B \quad (7.1)$$

où $\mathcal{H}_0 = \sum_i h_i$ et $h_i = p_i^2/2m_i + V_i^{\text{puits}}$ représente un Hamiltonien de confinement effectif à une particule, appliqué à l'atome que l'on a initialement arbitrairement appelé i . Notons qu' $\mathcal{H}_0$ dépend des interactions entre particules, mais ne fait pas intervenir explicitement les variables dynamiques des autres atomes¹¹. Il garantit que les états orbitaux $|\varphi_i\rangle$ individuels sont bien définis, c'est ce que l'on nomme l'hypothèse de quasi-localisation. Ainsi, cette écriture de l'Hamiltonien est pertinente et le terme J , qui ne dépend que des interactions et couple les états orbitaux $|\varphi_i\rangle$ de ces N puits de confinements individuels, est supposé petit face à $\mathcal{H}_0$. L'introduction de k_B définit J en Kelvin, et le signe dans (7.1) est purement conventionnel, et trouvera son utilité par la suite.

Si le potentiel de confinement V^{puits} est infiniment haut, les fonctions d'ondes individuelles de chaque atome tombent à zéro au centre de chaque barrière de potentiel (fig. 7.5).

¹⁰Même si l'on ne peut distinguer les particules identiques, il est pourtant commode de les considérer comme discernables et d'utiliser les états à une particule pour fabriquer, par produit, une base de l'espace des états du système total. Leur indiscernabilité n'est traitée qu'ensuite, voir Dirac [214], Cohen-Tannoudji et al. [213].

¹¹Dans la section précédente, nous ne faisons pas cette séparation et le terme V^{eff} contient l'interaction représentée ici par J , qui dépend de l'état de toutes les autres particules.

Chaque atome i est parfaitement isolé dans son propre puits de potentiel V_i^{puits} , et le problème fondamental de distinguer les particules disparaît. Aussi dans l'équation (7.1), $J = 0$. Chaque état du système est $N!$ fois dégénéré, puisque toute permutation $\mathcal{P}$ des N atomes le laisse inchangé. On est ramené au cas des particules indépendantes et, si

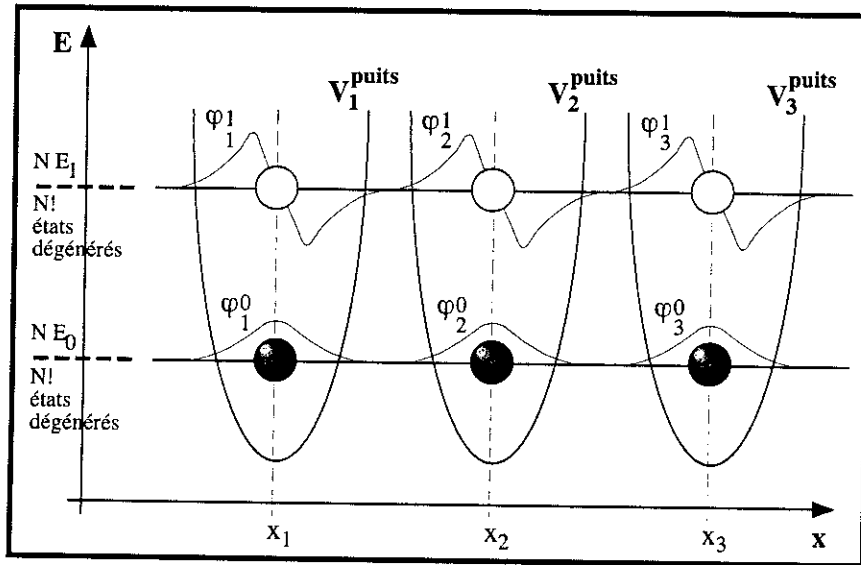


FIG. 7.5: Vue schématique des potentiels de confinement V_i^{puits} , suivant une direction x de l'espace, dans le cas idéalisé. Le potentiel est infiniment haut entre chaque atome, et tous les puits à une particule sont isolés. Ils se caractérisent par les états individuels $|\varphi_i^j\rangle$. Un atome, dans l'état fondamental de chaque puits a été représenté par une sphère pleine. Le premier état excité est lui représenté par une sphère vide. L'échelle d'énergie E représente l'énergie du système total formé par ces N atomes. Deux niveaux sont représentés, l'un où toutes les particules sont dans leur fondamental individuel, et l'autre dans leur premier état excité. Chaque état est $N!$ fois dégénéré, puisque les permutations $\mathcal{P}$ des N particules le laisse inchangé.

l'on connaît ce puits de potentiel V^{puits} et que l'on sait calculer la base des états propres à une particule, on est capable de construire les états propres du système total. Il faut simplement symétriser ou antisymétriser les vecteurs produits à un état, suivant que l'on considère des atomes d' ^4He (Bosons) ou d' ^3He (Fermions) respectivement. On lève ainsi cette dégénérescence $N!$ triviale.

Si maintenant on suppose que les barrières ne sont pas infiniment hautes, il y a une zone dans chacune de ces barrières de potentiel où les fonctions d'ondes se recouvrent (fig. 7.6). On est alors confronté au problème fondamental exposé au début de cette section. L'équation (7.1) tient compte dans ce cas d'un terme J non nul. L'idée de Dirac fut de dire qu'il doit être possible de réexprimer l'Hamiltonien du système en termes d'opérateurs de permutation $\mathcal{P}$ de ces N particules. Il montre [214] que le

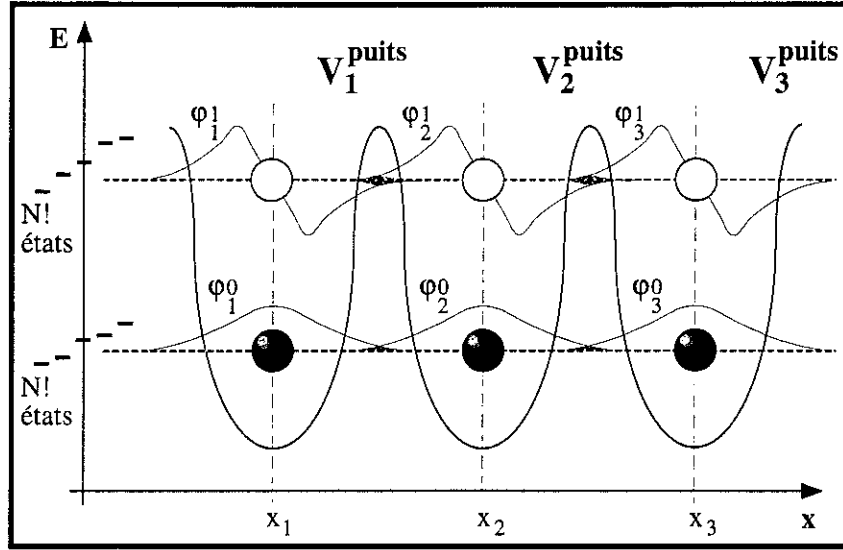


FIG. 7.6: Vue schématique des potentiels de confinement V_i^{puits} , suivant une direction x de l'espace, dans le cas réel. Les conventions sont les mêmes que pour le dessin précédent. Les barrières de potentiel sont finies, et les fonctions d'ondes de chaque puits se recouvrent (zone hachurée sur le dessin). Un produit d'états individuels $|\varphi_i^j\rangle$ n'est plus état propre du système total, et le recouvrement donne lieu à une interaction effective qui lève la dégénérescence $N!$ des états du système total.

développement en théorie des perturbations de cet Hamiltonien aboutit au résultat :

$$\mathcal{H} \approx \mathcal{H}_0 - \sum_{\mathcal{P}} J_{\mathcal{P}} k_B \mathcal{P}_x$$

L'indice x de $\mathcal{P}_x$ signifie que les permutations de particules ne sont à considérer que pour les degrés de liberté orbitaux (c'est-à-dire que pour l' ^3He , ils n'affectent pas le spin des particules permutes). Le signe $\approx$ indique qu'en plus du développement en perturbations, l'égalité n'est vérifiée que pour le sous-espace de l'espace des états qui est généré par les produits d'états à une particule quasi-localisée. Ces vecteurs ne sont pas vecteurs propres de l'Hamiltonien total $\mathcal{H}$, mais ils sont nécessaires et suffisants au calcul des $J_{\mathcal{P}}$.

Comme pour le cas des puits à une particule découplés, les états propres du terme $\mathcal{H}_0$ sont $N!$ fois dégénérés. Cependant ici, le terme perturbatif $-\sum_{\mathcal{P}} J_{\mathcal{P}} k_B \mathcal{P}_x$ lève a priori cette dégénérescence.

Si on se limite aux états orbitaux $|\varphi_i^0\rangle$ constituant les fondamentaux de chaque puits, $\mathcal{H}_0$ est une constante E_0 et l'étude du spectre de basse énergie de $\mathcal{H}$ revient à l'étude de l'Hamiltonien perturbatif $-\sum_{\mathcal{P}} J_{\mathcal{P}} k_B \mathcal{P}_x$. Tant que les $k_B |J_{\mathcal{P}}|$ sont faibles face à $|E_0|$, il reproduit la bande d'états de basse énergie, c'est-à-dire reproduit les propriétés physiques basses températures du système.

Restreignons-nous maintenant au cas des Fermions, c'est-à-dire de l' ^3He . On montre

que la condition d'antisymétrisation des vecteurs d'état apporte :

$$\mathcal{H} \approx E_0 - \sum_{\mathcal{P}} \varepsilon_{\mathcal{P}} J_{\mathcal{P}} k_B \mathcal{P}_{\sigma} \quad (7.2)$$

où $\varepsilon_{\mathcal{P}}$ désigne la parité de la permutation $\mathcal{P}$ (soit +1 ou -1), et $\mathcal{P}_{\sigma}$ correspond cette fois à la permutation des états de spin (les états orbitaux d'une particule n'étant pas affectés). Le signe $\approx$ signifie que l'égalité n'est vérifiée que sur le sous-espace des états antisymétriques, seuls états ayant un sens physique.

L'intérêt de cette réécriture (7.2) de l'Hamiltonien est immédiat : elle permet de se restreindre à l'étude des états de spin. L'espace des états de spin est de dimension bien plus faible que l'espace total (états orbitaux et états de spin). Aussi, bien que l'expression originale du potentiel d'interaction $V_{He-Gr} + V_{He-He}$ ne faisait pas intervenir le spin des particules, ce résultat montre que l'antisymétrisation des états, qui donne lieu au principe d'exclusion de Pauli, se traduit en un Hamiltonien effectif $-\sum_{\mathcal{P}} \varepsilon_{\mathcal{P}} J_{\mathcal{P}} k_B \mathcal{P}_{\sigma}$ qui lui dépend directement (et uniquement) du spin. En ce sens c'est un Hamiltonien magnétique.

Thouless [21] 1965 montra que cet Hamiltonien (7.2) peut être interprété comme un Hamiltonien de saut, où le système total formé par les N particules saute de l'une de ses $N!$ configurations fondamentales Ω_I à l'autre Ω_J , dans un espace à $3N$ dimensions.

Il démontre ainsi que les $J_{\mathcal{P}}$ se calculent à l'aide du recouvrement des fonctions d'ondes des configurations Ω_I et Ω_J couplées par $\mathcal{P}$, au sein de la barrière de potentiel les séparant. C'est ce qu'il nomme comme étant des canaux reliant ces configurations, ou cavités¹², entre elles.

La levée de dégénérescence par ces sauts, analogues à l'effet tunnel, se décrit par les fonctions d'ondes des deux premiers modes $|\psi_I^S\rangle$, $|\psi_I^A\rangle$, et $|\psi_J^S\rangle$, $|\psi_J^A\rangle$ de chaque cavité Ω_I , Ω_J respectivement, d'énergies $E_0 - J_{\mathcal{P}} k_B$ (états S) et $E_0 + J_{\mathcal{P}} k_B$ (états A).

Du fait des propriétés de ces fonctions¹³, il prouve que tous les $J_{\mathcal{P}}$, dits constantes d'échange, sont des réels positifs, et correspondent à des fréquences de saut. A l'aide d'un formalisme quelque peu différent en intégrale de chemins, Roger [32] 1984 obtient les mêmes résultats. Le développement de l'Hamiltonien en perturbation de cavités isolées dans leurs états fondamentaux se justifie alors en disant que le recouvrement des fonctions d'ondes orbitales est faible et les sauts rares, suffisamment pour qu'un saut soit bien défini. Cette condition s'exprime bien évidemment encore par $k_B J_{\mathcal{P}} \ll |E_0|$.

¹² Attention à ne pas confondre l'espace physique à trois dimensions des puits de confinement de chaque atome, avec l'espace des configurations à $3N$ dimensions du système total.

¹³ Les fonctions d'ondes fondamentales indexées S n'ont pas de nœuds ; les premiers états excités notés A n'en ont qu'un seul. Se référer à Mattis [219] pour la démonstration de ce théorème.

On trouve également dans la littérature l'écriture de l'Hamiltonien d'échange multiple sous une forme équivalente, disons symétrisée, du type : $-\frac{1}{2} \sum_{\mathcal{P}} \varepsilon_{\mathcal{P}} J_{\mathcal{P}} k_B (\mathcal{P}_{\sigma} + \mathcal{P}_{\sigma}^{-1})$, les constantes $J_{\mathcal{P}}$ vérifiant évidemment d'après ce qui précède $J_{\mathcal{P}} = J_{\mathcal{P}^{-1}}$. Notons également qu'il est toujours loisible d'exclure l'Identité de la somme $\sum_{\mathcal{P}}$, qui n'apporte qu'une valeur constante.

Dirac montra [214] que l'échange à deux corps $\mathcal{P}_{ij}$ peut s'écrire sous la forme d'un opérateur dépendant uniquement des opérateurs de spin des deux particules, $\mathcal{P}_{ij} = 2\vec{S}_i \vec{S}_j + \frac{1}{2}$. Comme toute permutation se décompose en produits d'opérateurs à deux corps $\mathcal{P}_{ij}$, l'Hamiltonien peut être réécrit exclusivement en fonction des opérateurs de spin de l'assemblée.

Aussi, partant de l'Hamiltonien symétrisé et de ce résultat, Thouless [21] 1965 prouva que tout échange à trois corps se ramène à la somme de trois échanges à deux corps.

Nous verrons dans la suite que pour l' $^3\text{He-2D}$, l'importance de chaque échange $J_{\mathcal{P}}$ est fonction de la densité du film (section 7.8 et chapitre 8).

Lorsque l'interaction entre particules est très importante, on est ramené au cas des spins indépendants de la fig. 7.5. Le solide formé est tout simplement paramagnétique¹⁴.

Si on se limite aux échanges à deux et trois proches voisins, l'Hamiltonien d'échange multiple se réécrit $-2J^{eff} k_B \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{S}_i \vec{S}_j$, où la somme $\langle i,j \rangle$ se fait sur les proches voisins, en ne comptant chaque couple ij qu'une seule fois.

Par exemple pour un réseau triangulaire, structure de l' $^3\text{He-2D}$ (voir section 7.8), on a $J^{eff} = -(J_2 - 2J_3)$, qui est une constante d'échange effective. Cette forme est exactement celle de l'Hamiltonien de Heisenberg¹⁵, la constante J^{eff} pouvant être positive (ferromagnétisme) ou négative (antiferromagnétisme) suivant l'importance respective des échanges à deux (J_2) et trois (J_3) corps proches voisins. Nous revenons sur ces faits en chapitre 8.

Si l'on prend en compte les échanges à plus de trois corps, l'Hamiltonien fait intervenir des termes produits $(\vec{S}_i \vec{S}_j)(\vec{S}_k \vec{S}_l)$ à quatre opérateurs de spin, et plus. Leur importance vient du fait qu'ils induisent une physique nouvelle, comme l'existence d'un état fondamental " liquide de spins " sur réseau triangulaire. Ce point est discuté dans la suite, en s'appuyant sur les résultats théoriques de Misguich [203] 1999.

Bien évidemment, le calcul des constantes d'échanges $J_{\mathcal{P}}$ pour un système donné est un travail théorique ardu.

L'intérêt premier de ce formalisme est de rendre compte des propriétés magnétiques de la

¹⁴L'aimantation suit une loi de Brillouin, se référer aux cours élémentaires, par exemple Diu et al. [215].

¹⁵A l'origine, Heisenberg proposa son modèle en 1928, pour décrire les propriétés magnétiques de la matière (voir Domb et al. vol. 1 [225]).

matière¹⁶, et de justifier l'Hamiltonien de Heisenberg.

Aux ordres supérieurs, l'Hamiltonien d'échange multiple a été extensivement étudié pour expliquer les propriétés magnétiques particulières de l'³He massif solide (voir, par exemple Roger et al. [23] 1983, et Godfrin et Osheroff [22] 1988), Thouless [21] 1965 ayant le premier noté l'importance des cycles d'échanges à plus de trois corps.

Delrieu et al. [24] 1980 proposèrent d'appliquer ce formalisme au magnétisme de l'³He-2D. De nombreux travaux sont allés dans ce sens depuis, et l'ensemble de ce travail de thèse est axé sur cette approche.

7.5 *Echange indirect*

Considérons le solide quantique présenté en section précédente, et supposons qu'il est en contact avec un liquide constitué des mêmes particules. C'est-à-dire que leurs fonctions d'ondes orbitales se recouvrent dans une certaine zone de l'espace.

Il existe alors des couplages indirects au sein du solide induits par le liquide, qui se traduisent par l'échange de deux atomes du solide via le liquide.

Restreignons cette discussion au cas des Fermions, c'est-à-dire dans notre cas à l'³He. Nous sommes donc intéressés par l'échange d'états de spin. Un tel mécanisme a été étudié originellement par Ruderman, Kittel, Kasuya et Yoshida pour les métaux (Ruderman et Kittel [25] 1954), et c'est pourquoi il est connu sous le nom de couplage RKKY (pour plus d'informations, se référer à Mattis [218]).

Sokoloff et Widom [26] 1977 les premiers proposèrent un couplage du type RKKY pour l'³He-2D, visant à expliquer le ferromagnétisme de la seconde couche (section 7.8). Un autre mécanisme indirect proposé par Héritier [27] 1979 donne lieu à une interaction antiferromagnétique.

Partant des premiers principes, Jichu et Kuroda [28] 1982 et Tasaki [29] 1988 ont étudié en détails ces divers couplages, et retrouvent deux classes de mécanismes : RKKY et Héritier. Nous les présentons brièvement ci-dessous en nous basant sur l'approche de Guyer [31] 1990.

La fig. 7.7 donne une image du processus RKKY suivant une direction x du plan de la couche. Comme précédemment, les atomes du solide sont quasi-localisés. Le liquide est

¹⁶En mécanique classique, si l'on se limite aux mouvements orbitaux des particules sans introduire arbitrairement le spin, on démontre (théorème de Van Leeuwen, discuté dans Lévy [217]) qu'il ne peut pas y avoir de magnétisme.

décrit lui par des ondes planes de vecteur d'onde $\vec{q}$, appartenant à des disques de Fermi numérotés par l'indice m , de rayons k_F^m (Guyer et al. [30] 1989).

Un atome du solide, initialement situé en (x_i, y_i) avec un spin σ , saute dans un état vide

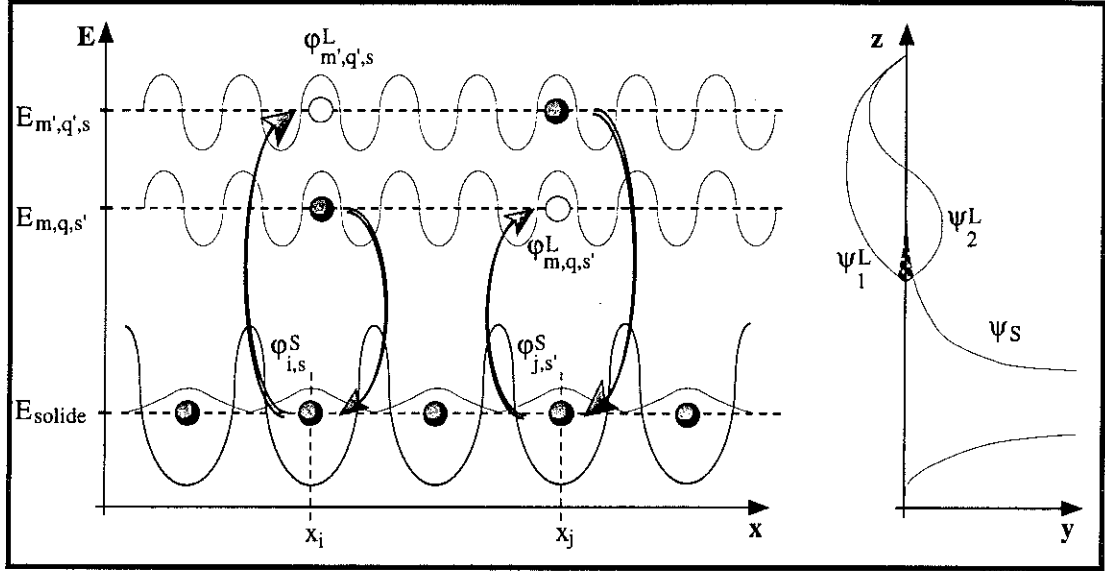


FIG. 7.7: Mécanisme d'échange RKKY dans l' ^3He -2D. Nous représentons schématiquement l'énergie en fonction d'une direction x du plan de la couche. Les états du solide $|\varphi_{i,\sigma}^S\rangle$ sont occupés par des atomes d' ^3He représentés par des sphères. Les états du liquide sont des ondes planes $|\varphi_{m,q,\sigma}^L\rangle$, un état vide étant pourvu d'une sphère blanche et un état occupé d'une sphère pleine. Le mécanisme se déroule de gauche à droite : création de l'état particule-trou excité du liquide, puis destruction. Sur la droite nous représentons les fonctions d'ondes ψ suivant z du liquide et du solide. Pour le liquide les deux premiers états $m = 1$ et $m = 2$ sont dessinés. L'échange est dû au recouvrement symbolisé par les hachures.

du liquide, caractérisé par un nombre quantique m' et un vecteur d'onde $\vec{q}'$. Un atome du liquide, dans l'état $(m, \vec{q}, \sigma')$, prend la place de la lacune laissée dans le solide. Le liquide est alors dans un état excité particule-trou. Enfin, un atome du solide, situé en (x_j, y_j) avec un spin σ' prend la place¹⁷ du trou laissé en $(m, \vec{q}, \sigma')$, alors que la particule en $(m', \vec{q}', \sigma)$ se désexcite en rejoignant l'état orbital (x_j, y_j) laissé vacant dans le solide.

On a ainsi échangé les états de spin σ et σ' de deux atomes du solide. Ce mécanisme peut être interprété comme un échange à deux particules i et j du solide, à l'aide d'un Hamiltonien du type $-2 \sum_{i < j} J_{ij}^{RKKY} k_B \vec{S}_i \vec{S}_j$, où la somme $i < j$ se fait sur tous les atomes distincts, en ne comptant chaque couple ij qu'une seule fois.

Le processus de Héritier est lui schématisé en fig. 7.8. Les conventions sont les mêmes que sur la figure précédente. Un atome du solide, initialement situé en (x_i, y_i) avec un spin σ , saute dans un état vide du liquide, caractérisé par un nombre quantique m' et un

¹⁷Notons que seul un atome de spin σ' peut faire ce saut. C'est le point central du processus, qui permet le transport d'information.

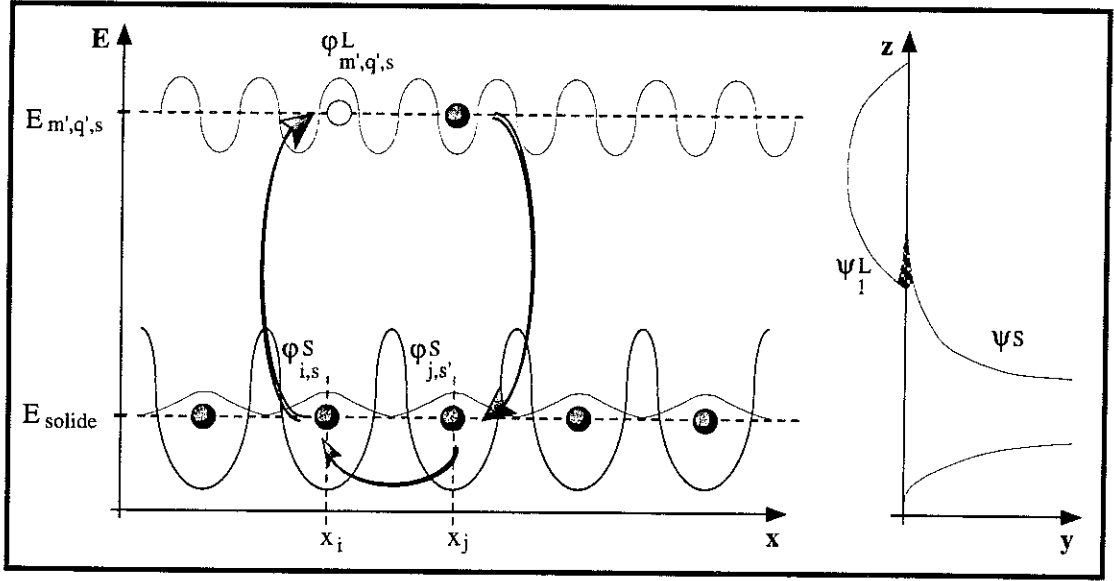


FIG. 7.8: Mécanisme de Héritier dans l' $^3\text{He-2D}$. Nous représentons schématiquement l'énergie en fonction d'une direction x du plan de la couche. Les conventions sont les mêmes que pour la figure précédente. Le mécanisme se déroule de gauche à droite, cependant cette fois, seul un état originellement vide du liquide est nécessaire.

vecteur d'onde $\vec{q}'$. Un atome voisin du solide, situé en (x_j, y_j) avec un spin σ' prend sa place. la particule en $(m', \vec{q}', \sigma)$ se désexcite en rejoignant l'état orbital (x_j, y_j) laissé vacant dans le solide.

On a à nouveau échangé les états de spin σ et σ' de deux atomes du solide. Ce mécanisme peut être interprété comme un échange à deux particules i et j du solide, à l'aide d'un Hamiltonien du type $+2 \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij}^{\text{Hér}} k_B \vec{S}_i \vec{S}_j$, où la somme $\langle i,j \rangle$ se fait sur tous les atomes proches voisins, en ne comptant chaque couple ij qu'une seule fois.

L'amplitude de ces échanges se calcule en théorie des perturbations à l'aide des états du solide $|\varphi^S\rangle$ et du liquide $|\varphi^L\rangle$, ainsi que du recouvrement de leurs fonctions d'ondes suivant z (figures 7.7 et 7.8).

Le couplage de Héritier n'implique que deux atomes proches voisins (ce que l'on peut écrire $J_{ij}^{\text{Hér}} = 0$ si i et j ne sont pas contigus), mais l'interaction RKKY est a priori à longue portée. Cependant, les seuls états $|\varphi^L\rangle$ du liquide ayant réellement une importance sont ceux de vecteur d'onde $\vec{q}$ proche de k_F^m , c'est-à-dire de grands $|\vec{q}|$, soit de petite longueur d'onde $\lambda = 2\pi/|\vec{q}|$. Les échanges liquide-solide sont donc restreints à de faibles zones de l'espace. Ce point sera spécialement discuté dans la suite.

On obtient que le processus RKKY, à trois corps, est ferromagnétique¹⁸ (soit $J_{ij}^{\text{RKKY}} > 0$),

¹⁸La constante de couplage J_{ij}^{RKKY} oscille entre des valeurs positives et négatives suivant la position relative de i et j . Le couplage premier voisin est ferromagnétique; ces aspects sont discutés plus avant

alors que le mécanisme de Héritier, à deux corps, est antiferromagnétique (soit $J_{ij}^{Hér} > 0$ également pour nos notations).

Ces deux mécanismes peuvent être incorporés dans l'Hamiltonien d'échange multiple en modifiant les termes J_P correspondant à l'échange de deux corps J_{ij} , à l'aide d'un couplage indirect $J_{ij}^{Ind} = -J_{ij}^{Hér} + J_{ij}^{RKKY}$. On a simplement $J_{ij}^{total} = J_{ij} - J_{ij}^{Ind}$ avec nos conventions. Leur importance pour l'³He-2D est discuté dans la suite, et commenté sur la base de nos résultats (chapitre 8).

7.6 Hamiltonien de l'³He-2D solide

Faisant la synthèse des deux sections précédentes, nous écrivons l'Hamiltonien d'échange multiple pour l'³He-2D solide sous la forme :

$$\mathcal{H}_{interaction} = -\left(\sum_{\mathcal{P}_2} (-1)^{J_P^{eff}} k_B \mathcal{P}_\sigma + \sum_{\mathcal{P}_{x>3}} \varepsilon_P J_P k_B \mathcal{P}_\sigma\right)$$

où $\sum_{\mathcal{P}_2}$ représente la somme sur tous les processus d'échanges possibles à deux corps, la constante J_P^{eff} faisant intervenir à la fois les processus à trois corps et les processus d'échange indirects J^{Ind} . La somme $\sum_{\mathcal{P}_{x>3}}$ ne prend en compte que les échanges à plus de trois corps strictement.

Cette écriture est complètement générale, mais peut être restreinte à certains échanges particuliers. Différents calculs ont été réalisés pour les échanges dans l'³He-2D solide, en utilisant des techniques semi-classiques (Delrieu et al. [24] 1980 et Roger [32] 1984), et des simulations numériques QPIMC (Bernu et al. [33] 1992 et Bernu et Ceperley [34] 1999). L'échange indirect a lui été évalué par les auteurs précédemment cités en section 7.5 (Tasaki [29] 1988, Guyer [31] 1990), mais les résultats ne font pas l'unanimité.

Les points clés ressortant de ces études sont les suivants :

- Roger [32] 1984 montre que l'échange, dans la limite semi-classique s'écrit $J_P \propto \exp(-\int_{X_c} \sqrt{2m(V - E_0)}/\hbar dx)$, où E_0 est l'énergie du fondamental et m la masse d'un atome d'³He. Le terme V représente le potentiel sur le chemin d'intégration classique X_c joignant les configurations entre elles. Ils sont tous deux reliés de façon complexe au processus $\mathcal{P}$ étudié, mais l'on s'attend intuitivement à ce que $|V|$ et la longueur du trajet X_c augmentent avec le nombre de particules impliquées. Même

dans la section suivante.

si la hiérarchie exacte des premiers échanges n'est pas évidente¹⁹, la dépendance exponentielle assure que les permutations à plusieurs atomes vont très rapidement devenir négligeables. Néanmoins, en accord avec les résultats de Roger [32] 1984, Bernu et al. [34] 1999 calcule que pour les solides d'³He-2D les moins denses, les termes jusqu'à six corps sont à prendre en compte.

- Seuls les échanges les moins anguleux sont réalisés. On peut s'en donner une image en se représentant les atomes sous forme de sphères dures (voir à ce titre les illustrations de Roger [32] 1984) : bouger l'un d'entre eux demande de déplacer légèrement tout les autres, ce qui se traduit par un coût énergétique élevé, et donc une augmentation notable de $|V|$.
- De la même façon, seuls les atomes proches voisins ont des probabilités raisonnablement grandes de s'échanger. En effet, plus les particules sont éloignées, plus la longueur du trajet tunnel X_c est grande. De plus, leurs permutations nécessitent de grands déplacements chez les atomes se trouvant entre elles, ce qui augmente de façon prohibitive la barrière de potentiel $|V|$ (Roger [32] 1984).
- Enfin, l'évaluation de l'échange indirect est également une tâche éminemment difficile, qui demande de connaître les états du solide et du liquide. Les résultats diffèrent suivant les auteurs, mais il semble admis actuellement que le mécanisme prédominant est l'échange RKKY. Son importance est faible (au plus quelques 0,1 mK), il est ferromagnétique, mais Tasaki [29] 1988 rapporte une petite modulation ferro-anti-ferromagnétique suivant la position relative des atomes i et j couplés. Aussi, il montre que l'échange indirect est limité aux premiers et seconds plus proches voisins.

Pour résumer ces résultats, nous ne comptons que les processus d'échanges les plus compacts, à moins de sept corps. Sur le réseau triangulaire, structure de l'³He-2D (voir section 7.8), ces échanges sont les échanges cycliques à deux et trois corps, que nous avons déjà regroupés²⁰ sous $J_2^{eff} = -(J_2 - 2J_3 - J^{Ind})$, J^{Ind} étant également un couplage (indirect) entre proches voisins, et à quatre, cinq, et six corps. Nous écrivons donc :

$$\mathcal{H}_{interaction} = -J_2^{eff} k_B \sum_{\text{---}} \mathcal{P}_2 + J_4 k_B \sum_{\text{---}} \mathcal{P}_4 - J_5 k_B \sum_{\text{---}} \mathcal{P}_5 + J_6 k_B \sum_{\text{---}} \mathcal{P}_6 \quad (7.3)$$

où les permutations se font, par définition, sur les états de spin σ . Nous avons utilisé les

¹⁹Ce point délicat fait l'objet de discussions en section 7.8, et chapitre 8 ; la hiérarchie des échanges dépend de la densité ρ du film 2D.

²⁰Nous définissons ici l'échange J_2^{eff} avec une convention de signe, déjà fournie en section 7.4, qui a le mérite d'être cohérente avec l'écriture usuelle de l'Hamiltonien de Heisenberg (c'est-à-dire que J_2^{eff} est positif pour le ferromagnétisme). Attention, la littérature consacrée à l'échange multiple utilise la convention contraire.

Echange cyclique	Représentation graphique
2 corps	
3 corps	
4 corps	
5 corps	
6 corps	

TAB. 7.1: Représentation graphique des cycles d'échange sur le réseau triangulaire. Cette écriture compacte se retrouve dans la littérature.

représentations standards trouvées dans la littérature, désignant les échanges cycliques sur le réseau triangulaire. Nous en donnons la liste en tableau 7.1. L'importance de cette réécriture de l'Hamiltonien est le fait que toute la physique du système est contenue dans les trois paramètres sans dimensions : J_2^{eff}/J_4 , J_5/J_4 et J_6/J_4 .

La seule condition imposée à ce modèle est de vérifier $k_B J_P \ll |E_0|$, sachant de plus qu'il ne sera valable que pour les basses températures. Pour l'³He-2D, les énergies structurales qui conditionnent la valeur de $|E_0|/k_B$ sont de l'ordre du Kelvin (section 7.8), alors que les énergies d'échange J_P sont de l'ordre du mK (sous-section 8.2.2). La condition est largement vérifiée.

En revanche, la justification de la limite basse température est moins claire. En premier lieu, on peut dire que dès lors que le système se comporte comme un solide paramagnétique, les spins sont indépendants et la seule échelle d'énergie importante pour les degrés de liberté magnétiques est $k_B T$. La forme explicite de l'Hamiltonien magnétique perd son importance. Pour l'³He-2D solide, les spins sont pratiquement paramagnétiques dès 40 mK environ (sous-section 8.2.2). Or, les propriétés RMN montrent, en section 4.3, que les excursions dans le spectre énergétique vers les niveaux plus élevés, qui ne sont a priori pas reproduits par l'Hamiltonien d'échange multiple, n'apparaissent qu'aux alentours de 50 mK environ. Elles sont détectées par un rétrécissement de la raie, qui correspond à une augmentation du mouvement des atomes²¹. Aussi, cette limite se trouvant au-dessus de 40 mK, l'Hamiltonien décrit ci-dessus peut, sans danger pour les prévisions sur l'aimantation du système²², être considéré comme exact.

²¹Ce chiffre de 50 mK est une borne inférieure, obtenue en assignant l'ensemble de cet effet de rétrécissement aux excursions. Voir la discussion en section 4.3 à ce sujet.

²²Ce n'est pas vrai pour les autres propriétés du système, entre autre la chaleur spécifique, qui dépend de tous les degrés de liberté. Et précisément, la contribution des phonons de la première couche solide

A cet Hamiltonien modèle (7.3), il faut cependant ajouter des termes perturbatifs, très faibles, dus aux spins nucléaires $S = 1/2$ des atomes d' ^3He . En effet, comme pour le moment cinétique orbital ou le spin de l'électron, le spin $\vec{S}$ de chaque noyau d' ^3He correspond à un moment magnétique nucléaire colinéaire que nous écrivons $g_N\mu_N\vec{S}$.

D'après les tables (Handbook [209] et annexe A), il vaut $g_N\mu_N S = -2,1274\mu_N$ où $\mu_N = 5,050824 \cdot 10^{-27}$ Joule/T est le magnéton nucléaire.

Nous discutons ci-dessous les différentes énergies magnétiques en résultant.

En premier lieu, la technique de RMN impose un champ statique $\vec{B}$ sur l'échantillon, ainsi qu'un faible champ radiofréquence $2\vec{H}_1 \cos(\omega t)$ de détection (voir le chapitre 4). En se couplant à chaque moment magnétique nucléaire, ils donnent lieu à deux Hamiltoniens perturbatifs :

$$\mathcal{H}_{\text{Zeeman}} = - \sum_i^N g_N\mu_N \vec{S}_i \vec{B} \quad (7.4)$$

$$\mathcal{H}_{\text{RF}} = - \sum_i^N g_N\mu_N \vec{S}_i 2\vec{H}_1 \cos(\omega t)$$

où N est le nombre de spins de l'assemblée. D'après le chapitre 3, on calcule que $2|\vec{H}_1|$ est de l'ordre de $1 \cdot 10^{-7}$ Tesla au maximum. Traduit en échelle énergétique, on obtient $|g_N\mu_N S| |\vec{H}_1|/k_B \approx 3,7 \cdot 10^{-11}$ Kelvins, chiffre extrêmement faible.

Les champs magnétiques expérimentaux $|\vec{B}|$ utilisés se trouvent usuellement²³ dans la gamme 10 mT à 120 mT environ. On obtient ainsi la borne supérieure $|g_N\mu_N S| |\vec{B}|/k_B \approx 9,5 \cdot 10^{-5}$ Kelvins, soit 100 μK . Cette valeur est effectivement raisonnablement plus faible que les énergies d'échange de 1 mK, mais est comparable aux températures les plus basses que l'on atteint expérimentalement. L'influence du champ magnétique aux ultra-basses températures n'est donc pas évidente a priori, et mérite une discussion en chapitre 8.

Enfin, on peut remarquer que chaque moment magnétique nucléaire $g_N\mu_N\vec{S}_i$ rayonne un champ magnétique qui se couple aux autres atomes j du réseau. C'est le champ dipolaire (sections 4.1 et 4.3), dont l'Hamiltonien s'écrit en mécanique quantique²⁴ :

$$\mathcal{H}_{\text{dipolaire}} = \sum_{i < j} \mu_0 \frac{(g_N\mu_N)^2}{4\pi} \frac{(\vec{S}_i \vec{S}_j - 3(\vec{S}_i \hat{r}_{ij})(\vec{S}_j \hat{r}_{ij}))}{|\vec{r}_{ij}|^3} \quad (7.5)$$

apparaît dans cette gamme de température (section 7.8).

²³Le groupe de Los Angeles réalise cependant des expériences dans la gamme du mT (Bozler et al. [104] 2000). Leurs résultats sont discutés en chapitre 8.

²⁴On déduit cette forme de l'expression classique, en appliquant le principe de correspondance. Cette formule est donnée dans Abragam [228], exprimée en unités CGS.

où $\mu_0 = 4\pi 10^{-7}$ dans le système international d'unités. La somme $\sum_{i<j}$ s'effectue sur toutes les paires ij , en ne comptant chaque couple qu'une seule fois. Le vecteur $\vec{r}_{ij}$ joint les spins situés en i et j , et $\hat{r}_{ij}$ en représente la direction.

Il s'agit d'une interaction à longue distance, qui couple degrés de libertés orbitaux et de spin, dont l'importance dépend de la densité du solide ρ et de sa polarisation macroscopique P . Nous montrons en section 4.3 qu'au premier ordre, cet Hamiltonien est équivalent à un champ magnétique moyen dont l'ordre de grandeur est $2\frac{3}{2}(6\mu_0|g_N\mu_N S|)/(4\pi d^3)P$, avec d la distance interatomique. Si l'on considère le solide d' ^3He -2D le plus dense que l'on puisse former (première couche pleine avec $d = 3,23\text{\AA}$ et $\rho = 11,10\text{at/nm}^2$, d'après la section 7.8), et que l'on suppose que le système est complètement polarisé (soit $P = 1$), la valeur maximale obtenue pour ce terme correspond à un champ local par spin de $5,5 \cdot 10^{-4}$ Tesla, soit 0,6 mT environ. Traduit en échelle énergétique, il s'agit de $7,4 \cdot 10^{-8}$ Kelvins, soit moins de $0,5 \mu\text{K}$.

Pour les caractéristiques macroscopiques, ce terme est évidemment négligeable²⁵. En revanche, du fait des propriétés de l'Hamiltonien $H_{\text{dipolaire}}$, des effets sont observés sur la forme des raies de résonance RMN²⁶. Ce point est spécialement discuté en section 4.3.

Pour déterminer les propriétés magnétiques macroscopiques, les paramètres d'échange J_i notés J_2^{eff} , J_4 , J_5 , et J_6 , ainsi que le champ magnétique $|\vec{B}|$ éventuellement, sont les seules grandeurs nécessaires. Elles contiennent toute la physique du système, dont il faut également se rappeler qu'il est bidimensionnel et limité en dimension par la taille des plaquettes de graphite. C'est avec cette approche que nous appréhendons les résultats expérimentaux.

7.7 Echelle de couverture

La connaissance de la densité et de la structure des phases adsorbées est essentielle si l'on veut obtenir des informations quantitatives sur le système.

Aussi, pour pouvoir comparer des résultats obtenus par différents groupes, dans diverses situations et sur différentes cellules expérimentales, il est indispensable d'avoir une échelle de couverture commune.

Si le substrat était idéal, et s'il n'autorisait qu'une seule phase adsorbée quelque soit la quantité d'Hélium utilisée, alors ce problème aurait une solution triviale; il suffirait de

²⁵Nous discutons néanmoins son importance en chapitre 8 dans le cas particulier où le champ magnétique de mesure $|\vec{B}|$ est lui-même de l'ordre de quelques mT (expériences du groupe de Los Angeles).

²⁶Du fait de son caractère résonant, cette technique est très sensible aux champs locaux. Des champs de l'ordre de $0,5 \cdot 10^{-3}$ mT sont détectables (section 4.2).

définir une seule surface $\mathcal{S}$ pour l'échantillon. En réalité, le substrat dont nous avons vanté les qualités en section 7.2, est néanmoins loin d'être parfait :

- En premier lieu, la surface de l'échantillon $\mathcal{S}$ change légèrement avec la quantité d'Hélium adsorbée. En effet, il est possible de décrire le substrat à l'aide de deux surfaces, l'une obtenue en première couche à basse densité, lorsque le solide est commensurable (nous la notons $\mathcal{S}_{com}$), et l'autre lorsque la première couche est à son maximum de densité, dans le régime incommensurable (nous écrivons $\mathcal{S}_{incom}$). Cet effet, mis en évidence par les mesures de diffraction de neutrons (Lauter et al. [36] 1990), est de l'ordre de 10% (section 7.8). Ceci s'interprète simplement en disant que des zones du substrat, où le potentiel d'adsorption est légèrement plus faible, ne sont pas capables de retenir les atomes d'Hélium à basse densité, mais finissent par être couvertes lorsque l'interaction entre atomes est suffisamment forte pour les y pousser. Ce sont les défauts concaves de la fig. 7.1 (image STM) présentée en section 7.2.
- De la même façon, les défauts convexes présentés en fig. 7.1 augmentent localement le potentiel d'adsorption, et donnent lieu à des sites de forte adsorption. Par exemple en RMN, même à des densités où l' ^3He forme un film liquide en première couche, on mesure une faible fraction d'atomes localisés (de l'ordre de 1 % à 4 % de la couche pleine), formant un solide presque paramagnétique aux plus basses températures (voir Morhard [200] 1995 et Bäuerle [201] 1996). En chaleur spécifique, Greywall [39] 1990 mesure également une contribution constante en température, d'origine inconnue. Il estime qu'elle correspond à quelques atomes par zone homogène de substrat. Le groupe de Tokyo interprète ce fait, adapté à leurs propres résultats (Ikegami et al. [40] 2000), par le modèle de " solide vitreux " proposé par Golov (Golov et Pobell [11] 1995). Nous discutons ce point en chapitre 8.
- Enfin, certaines zones du diagramme de phases (section 7.8) ne sont certainement pas constituées de solide homogène. Il s'agit soit de solide possédant des défauts, soit de coexistence de phases. La définition d'une seule densité perd alors son sens.

Si le critère choisi pour mesurer la couverture est mal adapté, ou peu précis, on peut facilement obtenir des écarts de l'ordre de 10 %. Pour résoudre ce problème, on utilise le fait que la phase commensurable $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ de la première couche a une densité bien connue : $\rho = 6,366 \text{ at/nm}^2$ (voir section 7.8). Les taux de couverture sont donc ramenés à la surface commensurable²⁷ de l'échantillon $\mathcal{S}_{com}$, obtenue en première couche à basse densité. La précision absolue de l'échelle de couverture ainsi obtenue sur l'ensemble des

²⁷D'autres critères peuvent, et sont utilisés en pratique pour déterminer l'échelle de couverture. Cette discussion vise simplement à expliquer comment l'on construit l'échelle dite commensurable.

expériences réalisées est de l'ordre de 2 % (voir Bäuerle [201] 1996, et de Carvalho et al. [37] 2000).

Usuellement, on mesure les quantités d'atomes en physique des surfaces à l'aide de volumes de gaz, en cm^3 , en condition standard²⁸ de température (0°C , soit $273,15\text{K}$) et de pression (une Atmosphère, soit $1013,25 \cdot 10^2$ Pascals), notés ccSTP. La position de cette phase idéale est donc obtenue sous la forme d'un volume commensurable V_{com} en ccSTP, et ce à l'aide des différentes techniques utilisées dans l'étude de l' ^3He -2D :

- Diffraction de neutrons : Lors de ces expériences, on mesure le nombre de neutrons diffractés en fonction de leur vecteur d'onde. On obtient une courbe piquée autour d'un vecteur particulier (pic de Bragg), qui définit la maille du solide (Godfrin et Lauter [10] 1995). La signature d'une phase commensurable est que la position du pic est indépendante de la quantité d'Hélium adsorbée : la maille du réseau est fixée par le graphite. Seule la forme du pic varie, et mesure la qualité du cristal. On prend alors pour définition de la phase commensurable " parfaite " en première couche, la position en couverture ccSTP du pic de neutrons le plus grand.
- Chaleur spécifique : On mesure le pic de chaleur spécifique qui apparaît lors de la fusion de la première couche, aux alentours de 3K (Bretz et al. [41] 1973, voir section 7.8). La largeur du pic obtenu en température est une signature de la qualité de la phase solide. On définit donc de la même façon la phase commensurable " parfaite " comme étant la position, en ccSTP, du pic le plus étroit.
- Isotherme RMN : Comme nous le voyons en section 7.8, à basse température la susceptibilité magnétique d'un solide paramagnétique (loi de Curie) est beaucoup plus grande que la susceptibilité magnétique d'un fluide de Fermi dégénéré (loi de Pauli). Aussi, aux températures intermédiaires de l'ordre de 10mK , une mesure isotherme de l'aimantation représente simplement une mesure du nombre d'atomes dans la phase solide (Morhard [200] 1995), par rapport au nombre de spins dans le liquide. On définit alors la phase commensurable " parfaite " par le point où l'ensemble de la contribution du liquide a disparu (Morhard [200] 1995, et Bäuerle [201] 1996).

La comparaison entre expériences se fait de façon indirecte à l'aide d'isothermes d'adsorption d' ^3He ou d' ^4He . On introduit des quantités étalonnées de gaz (en ccSTP) et l'on mesure la pression dans la cellule expérimentale, à une température donnée (dans notre

²⁸A température ambiante, l'Hélium est un gaz parfait. Aussi, en pratique on utilise un volume calibré V_{cal} dans lequel on impose une pression P . Ceci correspond à un nombre d'atomes via l'expression $N = PV_{\text{cal}}/(k_B T)$, que l'on peut réexprimer par un volume dans les conditions standard STP.

cas, 4,2 K pour des raisons de commodité). On obtient des courbes en forme de marche (fig. 7.9), caractéristiques de l'adsorption du gaz. Cette technique est discutée dans divers ouvrages (pour le cas du graphite, liste des références par Godfrin et Lauter [10] 1995, et de Carvalho et al. [37] 2000). Elle permet également d'assigner aux échantillons une surface spécifique (méthode²⁹ BET), mais le résultat est moins précis que la technique discutée dans cette section.

En recalant ces isothermes les unes sur les autres, on obtient simplement des facteurs d'échelles mesurant les surfaces spécifiques des différents échantillons³⁰.

En fig. 7.9 nous montrons, pour notre cellule C_5 (thèse Bäuerle [201] 1996), le recalage sur

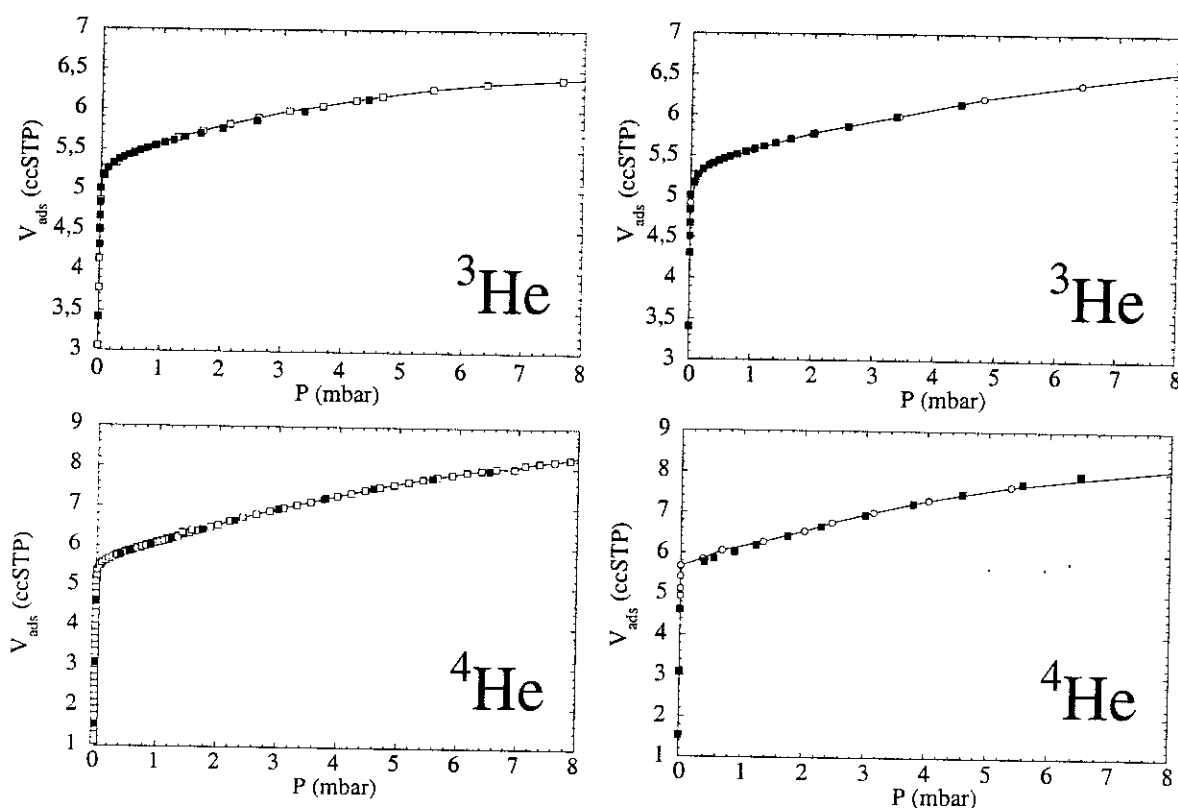


FIG. 7.9: Recalage des isothermes d'adsorption ^3He et ^4He à 4,2 K de la cellule C_5 (symboles ■, thèse Bäuerle [201] 1996). À gauche, nous montrons les isothermes rattachée à la cellule de Schildberg et al. [35] (□). À droite, les isothermes de l'expérience de Bretz et al. [41] 1973 (○). Les facteurs d'échelle et les V_{com} qui s'en déduisent sont donnés dans le tableau 7.2. En toute rigueur, l'isotherme ^3He de Schildberg [197] 1988 est mesurée à 4,0 K, et recalée à 4,2 K.

les isothermes de l'expérience de diffractions de neutrons de Schildberg [197] 1988, ainsi

²⁹Basée sur l'équation obtenue par Brunauer, Emmet et Teller. Se référer à la section 11.1.

³⁰En toute rigueur, la nature du substrat (Grafoil, Papyex, ZYX, etc...) pourrait influencer la forme des isothermes, car la proportion de surfaces parfaites et de défauts y est différente (section 7.2). En pratique, de telles différences n'ont jamais été observées (dans des barres d'erreur de l'ordre du %). Nous revenons sur ce point en chapitre 8.

Technique	Facteur	V_{com}
Neutrons	4,60	3,120 ccSTP
Chaleur spécifique	19,80	3,222 ccSTP
RMN(*)	1,00	3,160 ccSTP

TAB. 7.2: Volumes commensurables V_{com} obtenus pour notre cellule expérimentale C_5 à l'aide des superpositions de la fig. 7.9, sauf pour (*) qui est une mesure directe (voir texte).

que le recalage sur les isothermes de l'expérience de chaleur spécifique de Bretz et al. [41] 1973. Pour cette cellule expérimentale, nous obtenons les volumes commensurables V_{com} du tableau 7.2. Les caractéristiques générales de cette cellule sont présentées en chapitre 3.

Dans la suite de cette thèse, tous les taux de couverture, en tant que référence de quantité d'Hélium, sont donnés en utilisant le volume commensurable déterminé par RMN. On écrit $\rho = (6,366/V_{com}^{RMN}) V$ avec V en ccSTP et ρ en at/nm². Les densités réelles des couches seront spécifiquement commentées.

7.8 Diagramme de phases

Les premières informations précises concernant les diagrammes de phases de l'³He et de l'⁴He adsorbé sur graphite furent obtenues à l'aide de mesures de chaleur spécifique par le groupe de Seattle (Bretz et al. [41] 1973, Hering et al. [42] 1976). Portant surtout sur les propriétés de la première couche à des températures de l'ordre du Kelvin, ces résultats n'en restent pas moins d'une importance capitale pour la physique de l'Hélium à deux dimensions : la mesure du pic de fusion délimite des phases solides et une phase fluide³¹. Les mesures de chaleur spécifique furent ensuite étendues pour l'³He aux plus basses températures (de l'ordre du mK) par Greywall et Busch [38] 1989 et Greywall [39] 1990. Il s'agit d'un travail important, référence incontournable, qui s'étend de la complétion de la monocouche à la promotion en cinquième couche liquide. Différentes contributions peuvent être distinguées dans ces mesures, de signature très différentes (voir par exemple Greywall

³¹Pour l'³He à deux dimensions, il n'y a pas de condensation (Miller et Nosanow [43] 1978). Au-dessous de la température de désorption, et au-dessus de la température de fusion, il n'existe qu'une phase fluide, que nous appellerons souvent dans la suite phase liquide.

[39] 1990) :

$$C_{V \text{ liquide}}(T) = \frac{\pi^2}{3} N k_B \frac{T}{T_F^*} \quad T \ll T_F^*$$

$$C_{V \text{ phonon}}(T) = 28,848 N k_B \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^2 \quad T \ll \theta_D$$

$$C_{V \text{ solide}}(T) = \frac{9}{4} N k_B \left(\frac{J_C}{T} \right)^2 \quad T \gg J_C$$

où $C_{V \text{ liquide}}(T)$, $C_{V \text{ phonon}}(T)$ et $C_{V \text{ solide}}(T)$ sont respectivement les contributions du liquide de Fermi, des phonons (mouvement physique des atomes solides de la couche), et des spins du solide magnétique à la chaleur spécifique. N indique à chaque fois le nombre de particules impliquées dans le degré de liberté concerné (dépendant évidemment du taux de couverture). A ces contributions, il faut également ajouter la chaleur spécifique du substrat lui-même, qui malheureusement est loin d'être négligeable (voir par exemple Godfrin et Lauter [10] 1995). De plus, il est fait mention par Greywall [39] 1990 d'une contribution, constante en température, attribuée aux atomes localisés dans les hétérogénéités du substrat. Nous revenons en chapitre 8 sur ce point.

θ_D est la température de Debye, et correspond approximativement à la hauteur du potentiel d'adsorption (variant grossièrement comme ρ^3 , si ρ est la densité du film). Pour une densité en première couche d'environ 7,85 at/nm², la contribution des phonons devient dominante au-dessus de 40 mK (Greywall [39] 1990).

T_F^* est la température de Fermi effective (dite étoile), et chiffre les interactions entre spins dans le liquide, tels qu'elles sont mesurées en chaleur spécifique³².

J_C est l'échange (tiré de la chaleur spécifique), notion introduite dans les sections précédentes, et mesure les interactions entre spins de la phase solide. Nous revenons brièvement sur cette relation³³ $C_{V \text{ solide}}(T)$ en section 8.1.

Typiquement, θ_D est de l'ordre de 10 K, T_F^* de l'ordre de 100 mK et J_C de 1 mK. Il est donc possible de séparer les différentes contributions par des mesures allant du mK à la centaine de mK, et de dresser un diagramme de phases.

Les propriétés magnétiques de ces films d'³He ont été étudiées par différents groupes,

³²Nous renvoyons aux cours élémentaires, par exemple Kittel [212] pour le calcul des propriétés thermodynamiques des Fermions sans interactions. Pour une introduction à la théorie de Landau des liquides de Fermi, nous renvoyons à Pines et Nozières [220], et à Wilks [221], Vollhardt et Wölfle [222] et Halperin et al. [223] pour son application à l'³He. Quelques morceaux choisis de cette théorie sont fournis en sous-section 10.1.1.

³³Cette expression se déduit d'un développement haute température de l'Hamiltonien magnétique (de Heisenberg ou d'Ising) pour des spins $S = 1/2$ sur réseau triangulaire, à l'aide de l'approche en champ moyen ou d'une méthode dérivée d'elle comme celle de Bethe (voir par exemple Pathria [216], et la discussion de Diu et al. [215]). Les coefficients en préfacteur du J dépendent du réseau et des spins S considérés.

dont l'équipe de Grenoble, en résonance magnétique nucléaire (RMN, chapitre 4). Usuellement, ce que l'on appelle l'aimantation $\mathcal{M}(T)$ d'une assemblée de moments magnétiques est le rapport du moment magnétique total $|\vec{M}|$ au volume V de l'échantillon³⁴. Dans le cas du solide bidimensionnel, cette définition perd sa pertinence, et nous confondrons, par abus de langage, l'aimantation $\mathcal{M}(T)$ et le moment magnétique total $M(T) = |\vec{M}|$.

En RMN, les différentes phases ont également des signatures bien identifiées. L'avantage certain de cette technique sur la chaleur spécifique, est de ne sonder spécifiquement que les atomes d'³He, sélectionnés par la fréquence de résonance utilisée. Il n'y a pas de contribution provenant du substrat. Au premier ordre, pour un faible champ magnétique $|\vec{B}|$:

$$M_{\text{liquide}}(T) = N \frac{(g_N \mu_N)^2 S^2 |\vec{B}|}{k_B} \frac{1}{T_F^{**}} \quad T \ll T_F^{**}$$

$$M_{\text{solide}}(T) = N \frac{(g_N \mu_N)^2 S(S+1) |\vec{B}|}{3 k_B} \frac{1}{T - 3J_\chi} \quad T \gg J_\chi$$

où les conventions sont les mêmes que précédemment. Rappelons qu'à haute température, lorsque $k_B T$ dépasse toutes les énergies d'interaction, toute loi d'aimantation se réduit au développement au premier ordre de la loi de Brillouin³⁴, obtenue pour des spins S paramagnétiques, s'écrivant simplement C/T où C , la constante de Curie, mesure le nombre de spins impliqués.

T_F^{**} est la température de Fermi effective (dite double étoile), et mesure les interactions entre spins dans le liquide, telles qu'elles sont obtenues par l'aimantation. Cette aimantation est constante en température, c'est l'expression dite de Pauli pour des Fermions³² à basse température. Dyugaev [51] 1990 a proposé, sur la base d'arguments de symétrie, une expression phénoménologique pour $M_{\text{liquide}}(T)$, reliant la loi haute température (de Curie) des spins libres, à l'aimantation constante (de Pauli) basse température : $M_{\text{liquide}}(T) = C/\sqrt{T^2 + T_F^{**2}}$. Poursuivant le protocole des travaux antérieurs, nous utilisons dans la suite cette expression pour ajuster nos résultats expérimentaux.

J_χ est la constante d'échange (tirée de l'aimantation), et mesure les interactions entre spins de la phase solide. Cette expression $M_{\text{solide}}(T)$ est appelée loi de Curie-Weiss³³. Nous revenons sur cette relation en section 8.1, et apportons quelques commentaires ci-dessous. Les ordres de grandeur ont déjà été cités dans le paragraphe précédent, et l'on voit que la RMN permet également de dresser le diagramme de phases (travail extensif et synthèse de Bäuerle [201] 1996).

La seule source directe d'information sur la structure cristalline des phases solides est

³⁴Se référer aux cours élémentaires, par exemple Diu et al. [215].

due aux mesures de diffractions de neutrons. La majeure partie de ce travail a été réalisée à Grenoble (se référer à Schildberg [197] 1988, Godfrin et Rapp [9] 1995 et Godfrin et Lauter [10] 1995). Les résultats de ces études sont abordés brièvement ci-dessous. Pour résumer, les solides formés sont commensurables à basse densité, et incommensurables à plus forte densité. La seule structure rapportée dans les publications est celle de phases triangulaires. Ainsi, le paramètre de maille d est relié à la densité du film ρ simplement par :

$$\rho = \frac{2}{d^2\sqrt{3}}$$

Nous utilisons cette relation à plusieurs reprises dans ce manuscrit.

Les sections suivantes présentent une brève synthèse de l'ensemble de ces mesures (inspirée de Bäuerle [201] 1996). Des explications plus détaillées, et nombre de références, peuvent être trouvées dans les articles Godfrin et Rapp [9] 1995 et Godfrin et Lauter [10] 1995. Cette description est à la base du travail réalisé en chapitre 8.

7.8.1 Première couche

La première couche d'Hélium sur graphite est la plus extensivement étudiée et la mieux connue. Nous présentons en fig. 7.10 le diagramme de phases pour l' ^3He tel qu'il est admis à l'heure actuelle.

A basse densité, le film reste fluide. Pour les températures inférieures au Kelvin, aux alentours de $4,3 \text{ at/nm}^2$, la solidification en une phase commensurable (phase $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ notée R_{1a} , notation de Greywall [39] 1990) prend place. S'en suit une zone de coexistence liquide-solide en première couche, qui prend fin aux alentours de $6,4 \text{ at/nm}^2$.

En augmentant la densité, le film perd sa commensurabilité, et l'on entre dans une zone du diagramme de phases encore controversée. Deux hypothèses s'affrontent pour expliquer les propriétés thermodynamiques et les résultats des expériences de neutrons : la coexistence de phases solides, et la présence de défauts dans ces solides.

Aux densités les plus élevées, au delà de $8,0 \text{ at/nm}^2$, le film devient incommensurable (phase $1C_1$). Il faut alors environ $11,0 \text{ at/nm}^2$ pour commencer à peupler la seconde couche.

Le magnétisme de l' ^3He adsorbé se comprend à l'aide de l'Hamiltonien d'échange multiple déjà introduit dans les sections précédentes. Sur toute la gamme de densité solide, les échanges J_i restent faibles, du fait du fort potentiel d'adsorption ressenti par les atomes en première couche³⁵. Bernu et al. [33] 1992 rapportent en simulations numériques à

³⁵Les paramètres d'échanges varient grossièrement exponentiellement avec la hauteur du potentiel (sec-

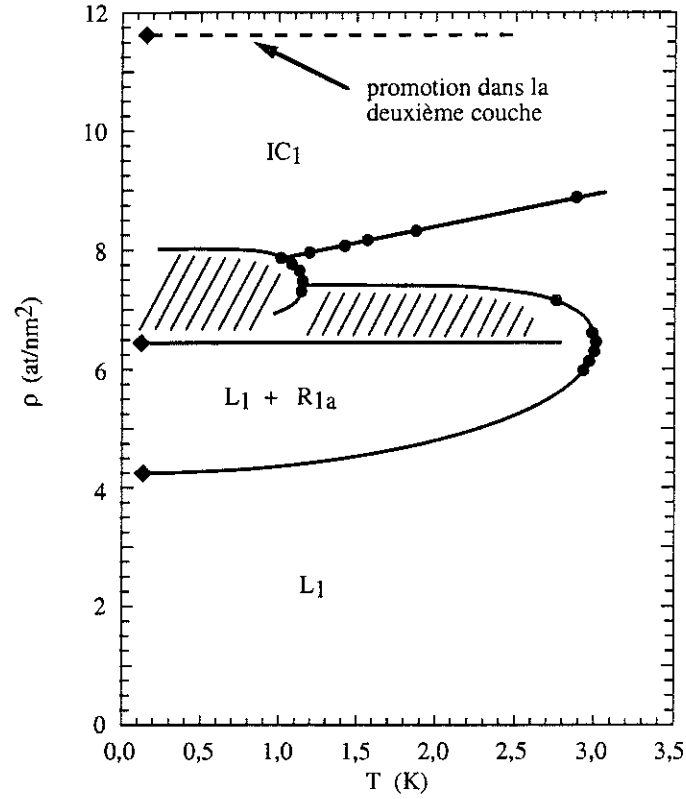


FIG. 7.10: Diagramme de phases de l' ^3He adsorbé sur graphite en première couche (dessin de Bäuerle [201]; d'après les données de Seattle (●), et de Bell labs et Grenoble (◆) aux plus basses températures). On y distingue une phase fluide (L_1), une phase solide commensurable à basse densité (R_{1a}) et une phase solide incommensurable à forte densité (IC_1). La zone de transition entre ces deux régimes est encore aujourd'hui controversée (hachures). Les lignes pleines sont des guides pour les yeux. Au alentours de $11,6 \text{ at/nm}^2$ la seconde couche commence à être peuplée (horizontale pointillée).

$7,85 \text{ at/nm}^2$ des échanges dans la gamme des $50 \mu\text{K}$. A plus forte densité, Schiffer et al. [87] 1994 donnent la borne supérieure expérimentale de quelques μK , en accord avec les résultats antérieurs de Rapp et Godfrin [45] 1993. Ces résultats sont confirmés par Bäuerle [201] 1996, puis Ikegami et al. [44] 1998, ainsi que par nos mesures (section 5.3).

En fig. 7.11 nous présentons les mesures de densité ρ de films solides d' ^3He et d' ^4He , obtenues en diffraction de neutrons par Schildberg [197] 1988.

Aux plus bas taux de couverture, exprimés dans ce graphique par ρ_{total} en at/nm^2 (section 7.7), la densité du solide est constante ($6,366 \text{ at/nm}^2$), marquant la commensuration. L'échelle de densité que l'on peut en déduire, basée sur la surface dite commensurable du substrat $\mathcal{S}_{\text{com}}$, est représentée par la droite pleine.

Lorsque la densité augmente et que l'on s'éloigne de la commensuration, l'échelle com-

tion 7.6).

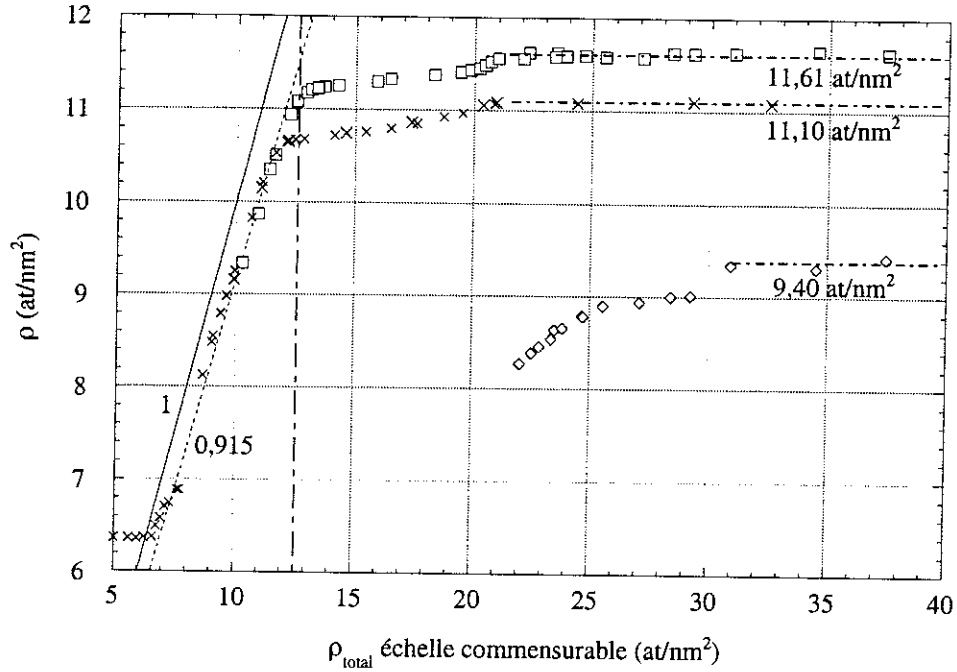


FIG. 7.11: Mesures de diffraction de neutrons obtenues par Schildberg [197] 1988. L'échelle de taux de couverture ρ_{total} est fournie en échelle commensurable. En première couche : $\times$ pour l' ^3He , et $\square$ pour l' ^4He . Les droites pleines et pointillées, passant par l'origine, distinguent la surface commensurable S_{com} de la surface incommensurable S_{incom} . Leurs pentes sont indiquées sur le graphique. Verticale tiretée : elle marque la quantité nécessaire à la complétion de la première couche d' ^4He . Egaleme nt représenté, mesure en seconde couche : $\diamond$ pour l' ^4He . Ces derniers points sont discutés en sous-section 7.8.2 suivante.

commensurable ne mesure plus directement la densité du solide. En revanche, il est possible de retrouver cette densité en décrivant le substrat à l'aide d'une nouvelle surface, dite incommensurable S_{incom} , que nous représentons par la droite pointillée en fig. 7.11. Ce phénomène est explicité en section 7.7, en invoquant les inhomogénéités du potentiel d'adsorption.

Lorsque la couche approche son maximum de densité (distincts pour ^3He et ^4He , conformément à la discussion de la section 7.3), l'évolution est lente, mais l'on note une densification attribuée à la pression exercée par les couches supérieures.

Sur ce graphique de la fig. 7.11, trois paramètres caractérisant les premières couches ^3He et ^4He denses vont être nécessaires aux discussions du chapitre 8. En premier lieu, la densité maximale de la première couche d' ^3He , qui est de 11,10 at/nm², et la densité maximale de la première couche d' ^4He , qui elle vaut 11,61 at/nm².

Enfin, il nous faut connaître le nombre d'atomes contenu dans ces couches. Nous le déduisons pour l' ^4He à l'aide de la verticale tiretée, c'est-à-dire à l'aide de la densité maximale et de S_{incom} . Nous obtenons pour la cellule C_5 utilisée au cours de cette thèse

6,22 ccSTP.

Nous n'avons pas fait figurer sur le diagramme de phases de la fig. 7.10, pour des raisons de clarté, la contribution attribuée aux spins localisés dans les hétérogénéités. Ils sont détectés non seulement en chaleur spécifique comme nous l'avons déjà dit, mais aussi en RMN sous la forme de contributions solides presque paramagnétiques (Morhard et al. [200] 1995, Bäuerle [201] 1996). En revanche, ils ne sont pas détectés en diffraction de neutrons, ce qui conforte l'idée qu'ils forment un solide piégé, sans réelle structure cristallographique. Ces atomes fortement localisés font l'objet d'une attention toute particulière, dans l'analyse quantitative de nos résultats (chapitre 8).

7.8.2 Deuxième couche

Toujours aux basses températures, aux alentours de 11,0 at/nm², les atomes d'³He sont promus en seconde couche. Le diagramme de phases de l'³He en seconde couche est très similaire à celui de la première, et nous le présentons, tel qu'il est connu à l'heure actuelle, en fig. 7.12 à droite.

A basse densité (moins de 18,0 at/nm² environ), le film en seconde couche est fluide. Au delà, il solidifie en une phase commensurable (la phase $\sqrt{7} \times \sqrt{7}$ également appelée phase $\frac{4}{7}$ du fait de son rapport de densité à la première couche, et notée R_{2a} par Greywall [39] 1990), qui coexiste avec le liquide jusqu'à environ 18,6 at/nm².

En augmentant encore la densité, on entre dans une région du diagramme de phases encore controversée, qui sépare le régime commensurable du régime incommensurable atteint aux densités les plus fortes (environ 20 at/nm²). Dans cette plage, différentes hypothèses s'affrontent : coexistence de phases, stabilité de nouvelles phases commensurables, présence de défauts (zone hachurée, fig. 7.12). Aux alentours de 19,0 at/nm², les atomes d'³He commencent à peupler la troisième couche.

En fig. 7.12 sur la gauche, nous présentons une isotherme d'aimantation, obtenue originellement par Franco et al. [50] 1986, qui illustre les propriétés magnétiques extraordinaires de ce système.

L'aimantation du liquide est faible, et la solidification s'accompagne d'une augmentation brutale du signal magnétique. Dans le régime commensurable, le comportement est à tendance antiferromagnétique, c'est-à-dire qu'un ajustement des données $M(T)$ par une loi de Curie-Weiss fournit un échange J_x négatif. Alors que l'on augmente la densité et que l'on va vers l'incommensurabilité, le signal croît de façon gigantesque. Un ajustement de Curie-

Weiss donne évidemment un échange J_x positif, c'est le ferromagnétisme de l' ^3He -2D, qui passe par un maximum aux alentours de 24 at/nm² (appelé communément " anomalie ferromagnétique ").

Ce comportement spectaculaire a été expliqué par Delrieu et al. [24] 1980 et Roger [32] 1984 sur la base de l'Hamiltonien d'échange multiple (section 7.6). A basse densité, les différents échanges J_i dans le solide sont du même ordre, et donnent lieu à un comportement globalement antiferromagnétique. Cependant, cet antiferromagnétisme est très particulier, et ne justifie ce nom que par la déviation à haute température de son aimantation par rapport à la loi de Curie des spins libres. A plus forte densité, l'échange à trois corps proche voisin J_3 devient prédominant, avant de décroître également à son tour³⁶, et le solide tend vers un comportement d'aimant de Heisenberg ferromagnétique aux plus fortes densités (Bäuerle et al. [60] 2000). Nous revenons en détail, en chapitre 8, sur ces arguments qui sont au cœur de la compréhension actuelle de l' ^3He -2D solide.

Il n'existe malheureusement de données de diffraction de neutrons que dans la gamme des fortes densités, dans le régime incommensurable (représentée en fig. 7.11). En effet, à plus basse densité le signal est masqué par un pic de diffraction, dû au substrat de graphite lui-même.

On obtient par exemple pour la seconde couche d' ^4He sur graphite, une phase incommensurable de densité maximale $\rho = 9,40$ at/nm². Nous utilisons cette valeur en chapitre 8 dans notre discussion.

Aux densités solides les plus basses, la commensurabilité ne fait cependant aucun doute : le solide formé est trop peu dense pour solidifier " de lui même " (Roger et al. [49] 1987), et le rapport des quantités d' ^3He en première et seconde couche correspond précisément à $\frac{4}{7}$.

Notons que la densité du film solide a une signature en RMN sur le décalage et l'élargissement des raies avec la polarisation (champ dipolaire, voir la section 4.3). Malheureusement, le travail quantitatif réalisé sur ce point n'est pas arrivé, à l'heure actuelle, à un niveau utilisable.

Un important travail de synthèse, tant expérimental que théorique, a été réalisé par Roger et al. [18] 1998 concernant l'aspect structural des premières et secondes couches d'Hélium sur graphite.

³⁶Encore une fois sous l'action de la dépendance exponentielle au potentiel d'interaction (section 7.6). Au terme dépendant du substrat $V_{\text{He-Gr}}$ s'ajoute le terme $V_{\text{He-He}}$ caractéristique des interactions entre atomes. Ce terme contient une répulsion de type cœur dur, qui empêche les atomes de s'interpénétrer (section 7.3) et qui augmente avec la densité. Le cas est radicalement différent pour un système d'électrons bidimensionnel, par exemple, qui n'ont pas de cœur dur : l'interaction est d'origine coulombienne, en $1/r$ (voir par exemple Roger [32] 1984).

Remarquons qu'il est a priori possible que la seconde couche adsorbée, comme la première, possède des hétérogénéités localisant fortement les atomes. Nous nous attendrions à ce que ce phénomène soit "lissé" par la sous-couche, mais il n'existait pas à l'heure actuelle d'estimation disponible. En effet, tous les signaux magnétiques se superposant en une raie de RMN unique, il est difficile de séparer les contributions solides ayant différentes origines.

Néanmoins, nous montrons en chapitre 8, que le système $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$ nous permet de mettre en évidence ces spins localisés. Nous obtenons que leur caractéristiques magnétiques

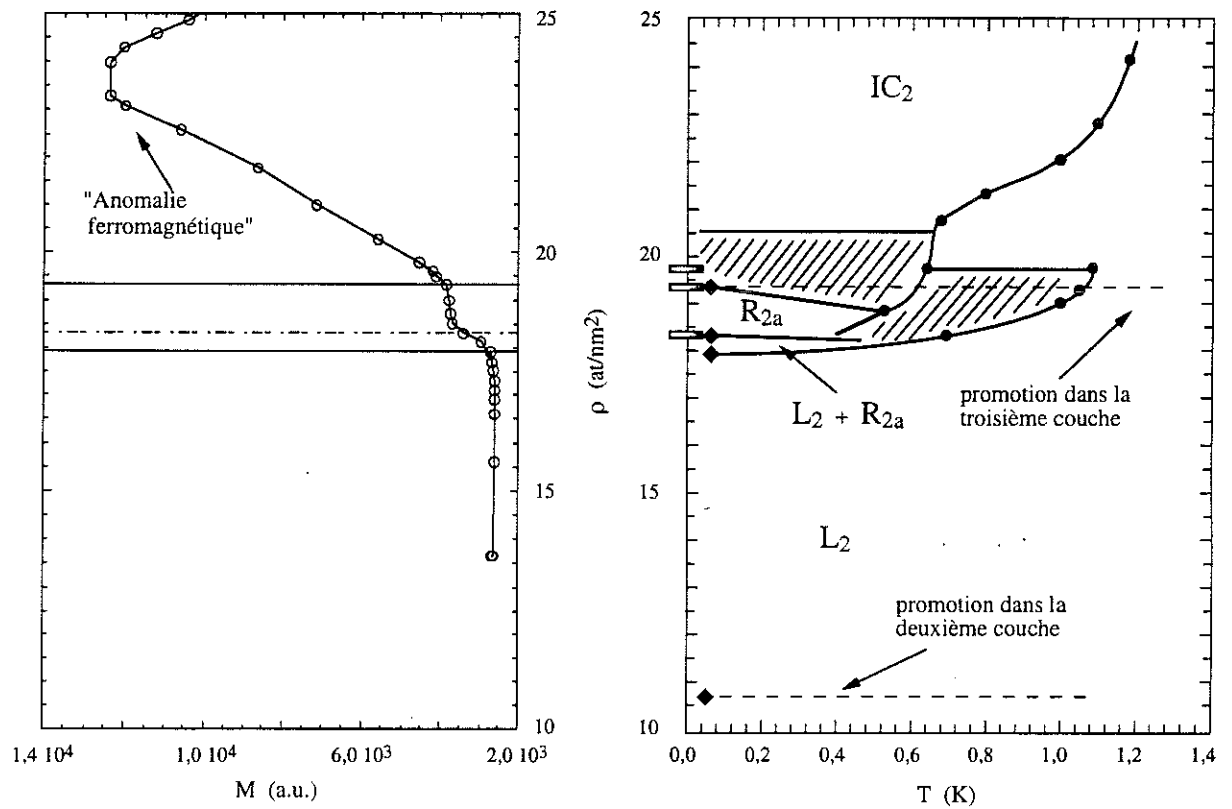


FIG. 7.12: A droite : diagramme de phases de l' ^3He adsorbé sur graphite en seconde couche (d'après le dessin de Bäuerle [201], utilisant les données de Seattle (●), et de Bell labs et Grenoble (◆) aux plus basses températures). On y distingue une phase fluide (L_2), une phase solide commensurable à basse densité (R_{2a}) et une phase solide incommensurable à forte densité (IC_2). La zone de transition entre ces deux régimes est encore aujourd'hui controversée (hachures). Nous avons représenté la position des phases commensurables possibles (barres horizontales sur les ordonnées, rapport de densités $\frac{4}{7}$, $\frac{12}{19}$ et $\frac{13}{19}$, d'après Roger et al. [18] 1998). Les lignes pleines sont des guides pour les yeux. Au alentours de 19,0 at/nm^2 la troisième couche commence à être peuplée (horizontale pointillée). A gauche : isotherme d'aimantation obtenue par Morhard [200] 1995 à 4,5 mK. On y note la solidification de la couche (entre la première barre pleine et la ligne tiretée), et la brusque augmentation du signal marquant l'apparition du ferromagnétisme (coïncidant avec la promotion en troisième couche, deuxième ligne pleine). Dans cette gamme, l'aimantation passe par un maximum nommé "anomalie ferromagnétique", vers 24 at/nm^2 .

sont grossièrement les mêmes que celle des atomes piégés en première couche.

Enfin, l'ensemble de ce diagramme de phases se transpose au cas où la première couche d' ^3He est remplacée par de l' ^4He , ou remplacée par deux couches³⁷ d'HD (de densité 9,20 at/nm², selon Ikegami et al. [40] 2000). La différence, outre la qualité cristalline des couches, se situe au niveau de la densité des solides formés, et de la distance entre la couche et le substrat de graphite, ce qui évidemment modifie les échanges J_i . Nous discutons en détail ces différents systèmes en chapitre 8.

Au cours de cette thèse, nous avons étudié en seconde couche le régime commensurable, et nous avons cherché à clarifier la zone de transition, encore controversée, entre antiferromagnétisme et ferromagnétisme (chapitre 8).

7.8.3 Multicouches, mélanges $^3\text{He}/^4\text{He}$ et superfluidité à 2D

L'ensemble des données acquises à l'heure actuelle sur les deux premières couches dans leur régime fluide, montrent un comportement universel du paramètre d'interaction T_F^{**} avec la densité du film liquide ρ_{liquide} (synthèse de Bäuerle [201] 1996).

Cette constatation appelle à de nouvelles expériences systématiques sur le liquide présent en troisième couche. Cette promotion des atomes prend place au delà de 19,0 at/nm². Une revue des expériences réalisées sur les multicouches peut être trouvée dans Godfrin et Rapp [9] 1995.

Jusqu'à présent, il était admis qu'au delà de la seconde couche, les couches demeurent fluides, les promotions étant marquées par des oscillations dans les propriétés thermodynamiques (Greywall [39] 1990, Saunders et al. [52] 1991). Cette constatation, qui demande pour des films d' ^3He purs, où de nombreuses contributions se superposent, une analyse de données lourde, est remise en cause en chapitre 8 par des mesures réalisées par Bäuerle [201] 1996 sur deux couches d' ^4He (section 8.5). Ces résultats, demandent à être complétés par de nouvelles mesures systématiques sur ce système.

Lorsqu'on étudie les couches magnétiques d' ^3He supérieures à la première couche, il est possible de s'affranchir de la contribution des spins situés dans les couches sous-jacentes par adjonction d' ^4He (sans spin, et d'énergie de point zéro plus basse, section 7.3). Ce phénomène de remplacement a été largement utilisé (par exemple Ahonen et al. [4] 1976, et Godfrin et al. [6] 1978), mais les mesures systématiques pour les mélanges d' $^3\text{He}/^4\text{He}$ adsorbés sur graphite sont bien moins abondantes que celles obtenues pour le système pur.

³⁷Molécule Hydrogène-Deutérium, le Deutérium est un isotope stable de l'Hydrogène. Une étude en diffraction de Neutrons des couches H₂, HD et D₂ peut être trouvée dans Wiechert [58] 1991.

Le cas des solides $^3\text{He}/^4\text{He}$ fait l'objet de l'étude présentée en chapitre 8. Nous revenons donc dans la suite sur cette notion de mélange ; l'ensemble de nos résultats penchant dans le sens d'une séparation de phases solides.

Les mélanges $^3\text{He}/^4\text{He}$ fluides à deux dimensions sont également étudiés sur ce système (voir la revue de Hallock [53] 2000, par exemple). Il est accepté actuellement que l' ^3He " flotte " sur l' ^4He sous-jacent.

Enfin, les superfluidités de l' ^3He et de l' ^4He massifs ont conduit à la recherche de superfluidités à deux dimensions. Dans le cas de l' ^4He , la superfluidité de couches atomiques a été observée. Nous renvoyons à la discussion sur le site de Chan [150] pour les aspects expérimentaux, et également aux articles de Csathy et al. [47] 1998 et Nyéki et al. [48] 1998. Brièvement, disons simplement que cette transition correspond au modèle développé originellement par Kosterlitz et Thouless (Kosterlitz et Thouless [46] 1973), nous renvoyons également à la discussion de Lévy [217]. Le paramètre d'ordre de l' ^4He superfluide est la fonction d'onde du condensat, soit une amplitude et une phase. Lorsque la transition est supprimée, la valeur moyenne de ce paramètre d'ordre demeure nulle, du fait des fluctuations de sa phase. En revanche, il autorise la formation de défauts topologiques, des vortex, c'est-à-dire d'une distribution (à 2D) de cette phase portant une charge topologique (comme un tourbillon, en mécanique des fluides, correspond à une composante non nulle du rotationnel de la vitesse locale du fluide). C'est l'appariement de ces vortex qui donne lieu à la transition. Nous discutons plus avant la notion de défaut topologique en section 10.1.2. En pratique, du fait du potentiel d'adsorption qui maintient les atomes à 2D, on observe une " couche inerte ", dépendant du substrat, au-delà de laquelle le phénomène est observé.

Le cas de la possible superfluidité de l' ^3He à deux dimensions est bien plus complexe, tout comme d'ailleurs la superfluidité de l' ^3He massif est plus complexe que celle de l' ^4He . Les mesures effectuées jusqu'à présent montrent des désaccords surprenants. Pour des films d' ^3He purs d'une épaisseur de l'ordre de la longueur de cohérence ξ_0 superfluide, remontant le long de capillaires, Sachrajda et al. [54] 1985 font état d'une transition superfluide à 3,5 mK (soit au-dessus de la transition de l' ^3He massif), alors que Shirahama et Pobell [55] 1994 ne rapportent aucune transition au-dessus de $900\mu\text{K}$ pour des sous-monocouches adsorbées sur de la poudre d'argent recouverte d' ^4He .

Les prévisions théoriques pour des films d'épaisseur atomique varient tout autant d'un auteur à l'autre, entre quelques mK (encore une fois au-dessus des températures de transition de l' ^3He massif) et la centaine de μK (voir par exemple Chubukov [56] 1993 et Takahashi et Hirashima [57] 2000). Les calculs et simulations numériques sont d'ailleurs

en prise avec le problème non trivial de rendre compte du potentiel de corrugation du substrat, et des réflexions des excitations du liquide aux bords de l'échantillon. Le type de cette superfluidité n'est d'ailleurs pas clair : il est cependant accepté à l'heure actuelle qu'il devrait s'agir d'une superfluidité de type *p* à basse densité, et de type *d* à plus forte densité³⁸.

Une brève revue sur les possibilités de superfluidité 2D, pour des films d'³He obtenus par mélanges ³He/⁴He, peut être également trouvée dans l'article de Hallock [53] 2000.

Aussi, nous présentons en section 8.5 une tentative expérimentale de détection de superfluidité de l'³He à deux dimensions, en champ magnétique faible. Elle s'est avérée négative au-dessus de 120 μ K.

³⁸*p* et *d* se réfèrent à la nature de l'appariement en paires de Cooper des Fermions. Un supraconducteur classique a un appariement de type *s*, et l'³He superfluide un appariement de type *p* (sous-section 10.1.2). Cette classification, basée sur le moment orbital de ces paires, utilise la même terminologie que celle utilisée pour les niveaux d'énergie de l'atome d'hydrogène.

8.1 ^3He -2D solide en deuxième couche

La section 7.8 précédente a montré que la seconde couche de l' ^3He -2D solide possède des propriétés magnétiques très riches, passant de l'antiferromagnétisme au ferromagnétisme. Ce système est décrit par l'Hamiltonien (7.3) d'échange multiple à 2D, présenté en section 7.6. Des termes magnétiques faibles, $\mathcal{H}_{\text{Zeeman}}$ (7.4) et $\mathcal{H}_{\text{dipolaire}}$ (7.5) peuvent également y être incorporés. Enfin, rappelons que le système est de taille finie, au mieux la taille des plaquettes de graphite.

Ce système est un véritable système modèle, permettant d'atteindre directement les principes de base de la mécanique quantique, et d'étudier les propriétés des systèmes de basse dimensionnalité. Aussi, il est directement relié à d'autres sujets d'actualités en physique, comme les isolants de Mott, la supraconductivité à haute température critique et les échelles de spin.

Delrieu et al. [24] 1980 et Roger [32] 1984 ont montré que l'échange à trois corps proches voisins J_3 est dominant pour des films d' ^3He denses. Mais Roger [59] 1990 le premier proposa qu'aux densités plus basses, l'échange à quatre spins J_4 , et les échanges supérieurs, sont importants et donnent lieu à un système magnétique frustré.

Nous nommons cette frustration " frustration quantique ", pour la distinguer de la frustration géométrique (voir Ramirez [63] 1994 et Ramirez [62] 1999) provenant de l'incompatibilité de l'ordre antiferromagnétique avec le réseau de certains cristaux (fig. 8.1).

Cette frustration quantique est toute particulière. En premier lieu, l'alternance de signe dû à la parité $\varepsilon_{\mathcal{P}}$ des permutations $\mathcal{P}$ amène une compétition entre processus d'échange, au niveau du terme $\vec{S}_i \vec{S}_j$ de leur décomposition en opérateur de spin : les permutations paires favorisent des orientations parallèles (ferromagnétisme), alors que les termes impairs favorisent les orientations antiparallèles (antiferromagnétisme). De plus, chaque processus d'échange a sa propre symétrie. On s'attend par exemple à ce que l'échange cyclique à six

spins soit privilégié par rapport à l'échange à cinq spins sur réseau triangulaire, du fait de sa compatibilité avec la symétrie du réseau. Enfin, les opérateurs produits à plus de deux spins, comme $(\vec{S}_i \vec{S}_j)(\vec{S}_k \vec{S}_l)$ intervenant dans l'Hamiltonien, vont vouloir imposer de nouvelles propriétés toutes particulières, face au premier ordre $\vec{S}_i \vec{S}_j$ de Heisenberg. Nous revenons dans la suite sur ces considérations, extensivement étudiées dans le travail de thèse de Misguich [203] 1999.

L'évolution de ces échanges en fonction de la densité (voir Bäuerle et al. [60] 2000), donne une vision unifiée du magnétisme de la deuxième couche solide (section 7.8). Elle explique le passage de l'antiferromagnétisme particulier de l' ^3He -2D solide (décrit par l'ensemble des échanges J_i), au ferromagnétisme de Heisenberg (caractérisé par une seule constante $J^{\text{Heis}} \approx 2J_3$).

A basse densité, la phase dite antiferromagnétique est commensurable (Roger et Delrieu [49] 1987). Elser [64] 1989 le premier proposa la structure $\sqrt{7} \times \sqrt{7}$, phase triangulaire dont la densité est $\frac{4}{7}$ de la densité de la première couche. Bien qu'il n'existe pas de mesures de diffraction de neutrons (voir section 7.8), connaissant la densité de la première couche, les taux de couverture définissent sans ambiguïté la seule phase commensurable acceptable dans cette gamme de densité.

Notons que la proposition initiale d'Elser [64] 1989 était de distinguer deux types de sites en deuxième couche pour les atomes d' ^3He . Un réseau Kagomé d'atomes A possédant une forte constante d'échange J_{AA} entre premiers voisins, antiferromagnétique, et un réseau triangulaire d'atomes B paramagnétiques, qui de surcroît ne s'échangent pas avec les atomes A . Cette structure devait rendre compte, par frustration géométrique, des propriétés magnétiques particulières de la seconde couche solide. Cependant, des travaux de simulation Monte-Carlo par Bernu [65] ont montré que les constantes d'échanges étaient en réalité indépendantes du site considéré.

A forte densité, la phase ferromagnétique est incommensurable. Les quelques mesures de diffraction de neutrons nous confirment qu'elle est également triangulaire, ce que l'on attendait d'après les résultats obtenus sur la première couche (voir section 7.8).

La structure triangulaire est donc suffisante pour décrire le magnétisme de la seconde couche solide. Seul le paramètre de maille varie, et pilote la force des échanges J_i . En revanche, le mécanisme de transition entre l'antiferromagnétisme et le ferromagnétisme est à l'heure actuelle encore un sujet de controverse. Nous revenons sur ce point dans la suite. Aussi, pour tirer des informations quantitatives sur ces échanges, nous utilisons, jusqu'à des températures de l'ordre de 2 mK, des séries hautes températures pour l'aimantation

sur réseau triangulaire que nous ajustons à nos données. La philosophie générale du calcul théorique de ces séries peut être trouvée dans Domb et al. vol. 3 [226]. Grossièrement, on développe la fonction de partition en puissances de J_i/T . On obtient ainsi, pour chaque propriété thermodynamique (aimantation, chaleur spécifique, etc...) un polynôme en J_i/T dont le calcul des coefficients, uniques, se ramène à un problème de dénombrement.

Pour la série $Heis(J^{Heis}, T)$ déduite de l'Hamiltonien de Heisenberg, nous utilisons le travail de Oitmaa et Bornilla [66] 1996.

L'obtention des coefficients d'échange multiple se fait à l'aide de la série haute température obtenue par Roger [67] 1997.

Afin d'augmenter la qualité des résultats, nous avons utilisé la technique des approximants de Padé, appliquée à cette série (Roger [68]). Les bases théoriques nécessaires à leur construction sont exposées dans Barker [227]. En guise d'introduction, rappelons qu'un approximant de Padé $[L, M]$ est un rapport de polynômes, nommé fraction rationnelle, $P_L(x)/Q_M(x)$. La variable x est la variable d'expansion J_i/T de la série haute température. On montre que si la série est d'ordre n , les coefficients L et M vérifient $L + M = n$. Si l'approximant de Padé existe et que l'on fixe à 1 le coefficient constant de $Q_M(x)$, on montre que tous les autres coefficients sont uniques, et se déduisent des coefficients de la série haute température. Bien évidemment, les approximants de Padé reproduisent la série originale jusqu'à des températures de l'ordre de $J_i/T \approx 1$. Pour l'expérimentateur, leur grand intérêt est de repousser les divergences de ces séries au-dessous de $J_i/T \approx 1$, lorsqu'elles sont mathématiques et non physiques. Cette réécriture en fraction rationnelle revient à faire ce que l'on nomme une transformation Eulerienne sur les fonctions étudiées (changement de variable $y \leftarrow \frac{ax+b}{cx+d}$, a, b, c et d réels donnés). Si l'on connaît grossièrement l'allure de la propriété thermodynamique étudiée (continuité, monotonie, etc..), on réalise ainsi un prolongement analytique en gommant la singularité. Dans notre cas, les Padés $[2, 3]$ et $[3, 2]$ s'avèrent équivalents et satisfont à nos exigences. Nous écrivons $Padé_{[3,2]}(J_i, T)$ et $Padé_{[2,3]}(J_i, T)$ dans la suite de ce manuscrit.

Enfin, si on se limite aux termes produits à deux opérateurs de spin $\vec{S}_i \vec{S}_j$, l'Hamiltonien d'échange multiple fournit évidemment les mêmes corrections, au premier ordre, aux grandeurs thermodynamiques que l'Hamiltonien de Heisenberg :

$$C_V(T) \approx Nk_B \frac{9}{4} \left(\frac{J_C^{eff}}{T} \right)^2 \quad (8.1)$$

$$\chi(T) \approx N \frac{(g_N \mu_N)^2 S(S+1)/(3k_B)}{T} \left(1 + \frac{3J_X^{eff}}{T} \right) \quad (8.2)$$

où C_V représente la chaleur spécifique et χ la susceptibilité magnétique¹. Les autres gran-

¹Ici, la susceptibilité est définie par $\vec{M} = \chi \vec{B}$, où $\vec{M}$ est le moment magnétique total et $\vec{B}$ le champ

deurs ont été définies précédemment, et J_C^{eff} , J_χ^{eff} représentent des constantes d'échanges effectives. Le point important est que les différents cycles d'échanges ne contribuent pas de la même façon à J_C^{eff} et J_χ^{eff} , et l'on obtient² (voir Bernu et al. [33] 1992) :

$$(J_C^{eff})^2 = \left(J_2 - 2J_3 + \frac{5}{2}J_4 - \frac{7}{2}J_5 + \frac{1}{4}J_6 \right)^2 + 2 \left(J_4 - 2J_5 + \frac{1}{16}J_6 \right)^2 + 46 \left(\frac{1}{4}J_5 - \frac{1}{23}J_6 \right)^2 + \frac{7489}{8832}J_6^2$$

$$J_\chi^{eff} = -(J_2 - 2J_3 + 3J_4 - 5J_5 + \frac{5}{8}J_6)$$

Les relations ci-dessus sont obtenues pour des spins $S = 1/2$ sur le réseau triangulaire. Ces deux échanges effectifs sont a priori distincts. Cette caractéristique très forte est une signature de l'importance des échanges à plus de trois corps. Par définition, J_C^{eff} est positif, alors que J_χ^{eff} peut changer de signe ; on parle encore de ferromagnétisme ou d'antiferromagnétisme. De la même façon, on distingue par abus de langage deux cas de figure pour la chaleur spécifique C_V , suivant l'amplitude de son maximum en température : une chaleur spécifique élevée est alors nommée ferromagnétisme, alors qu'une chaleur spécifique plus faible est désignée par antiferromagnétisme. Dans ces conditions, il est possible d'obtenir une signature ferromagnétique sur l'une des propriétés thermodynamiques, et une signature antiferromagnétique sur l'autre. Ces caractéristiques propres à l'échange multiple ont été observées par Siqueira et al. [69] 1997.

Notons que si J_χ^{eff} est négatif, en plus de la frustration quantique, nous avons la frustration géométrique du réseau triangulaire, qui est incompatible avec l'ordre antiferromagnétique (fig. 8.1).

De plus, si les échanges à plus de trois corps sont suffisamment importants, les opérateurs produits à plus de deux spins $(\vec{S}_i \vec{S}_j)(\vec{S}_k \vec{S}_l)$ intervenant dans l'Hamiltonien sont du même ordre, voire même supérieurs, aux simples termes de Heisenberg $\vec{S}_i \vec{S}_j$, où les différents cycles d'échanges se compensent l'un l'autre. Dans ces conditions, un tel développement ne sera jamais valide, et si l'on connaît les constantes d'échanges J_i , le terme J_χ^{eff} calculé sera a coup sûr différent du J_χ^{Heis} ajusté par une série de Heisenberg pure. Ce fait est en quelque sorte une mesure de la frustration quantique introduite par les opérateurs produits à plus de deux spins. Nous discutons ce point dans la suite à l'aide de nos résultats.

Aux plus basses températures, les propriétés de ce système sont tout à fait particulières. Selon Mermin et Wagner [70] 1966, un solide cristallin à une ou deux dimensions, décrit

magnétique. Nous conservons les mêmes conventions dans toute cette partie du manuscrit, et $M(T) = |\vec{M}|$ sera pour nous l'aimantation. Cette forme (8.2) se réécrit encore $C/(T - 3J_\chi^{eff})$: c'est la loi de Curie-Weiss (section 7.8), C étant la constante de Curie.

²Il suffit d'étendre la démarche présentée en section 7.4 pour les échanges proches voisins à toutes les permutations autorisées. Voir Godfrin et Osheroff [22] 1988 pour la décomposition des opérateurs de permutation $\mathcal{P}$ en produits d'opérateurs de spin $\vec{S}_i \vec{S}_j$.

par un Hamiltonien de Heisenberg sous faible champ magnétique $|\vec{B}|$, ne peut pas avoir de transitions de phases magnétiques à $T \neq 0$, caractérisées par des aimantations macroscopiques, suivant une direction $\vec{u}$ sur des sous-réseaux R multiples de la maille cristalline. Ce résultat, qui élimine les ordres ferromagnétique, antiferromagnétique et Néel usuels (fig. 8.1), découle d'une inégalité de mécanique quantique, qui montre que toute aimantation macroscopique M_u^R de ce type est bornée par, à 2D : $|M_u^R| < Cste/\sqrt{T} |\ln |\vec{B}||$. Elle ne peut donc pas diverger comme N , ce que l'on interprète comme la destruction de l'ordre par fluctuation quantique : le système admet trop d'excitations de basse énergie. Nous ne connaissons pas, à l'heure actuelle, de démonstration de ce théorème dans le cas de l'échange multiple. En revanche, de tels résultats sont obtenus pour d'autres systèmes possédant les mêmes caractéristiques de symétrie (voir la discussion de Domb et al. vol. 1 [225]). C'est pourquoi nous ne doutons pas que la même propriété se retrouve dans l' ^3He -2D. Seuls, aux plus basses températures, les termes perturbatifs de l'Hamiltonien décrit en section 7.6 pourraient lever cette restriction, et provoquer une transition magnétique. C'est ce qui est vu, par exemple, dans les cristaux où le magnétisme frustré des électrons à 2D subit malgré tout une transition, dû soit aux faibles couplages entre plans 2D, soit aux termes d'anisotropie cristalline (Ramirez [62] 1999). Ce point est discuté pour nos résultats en section 8.4.

Considérons des spins $S = 1/2$ sur réseau triangulaire, en champ magnétique $\vec{B}$ nul. Que l'on s'intéresse à l'Hamiltonien de Heisenberg ou d'échange multiple, les symétries du système sont engendrées par le groupe ponctuel du réseau triangulaire³, C_{3v} , et le groupe des rotations continues à trois dimensions $SO(3)_S$ agissant sur les spins.

Pour sa part, l'Hamiltonien de Heisenberg ferromagnétique possède une transition de phase à $T = 0$ vers un état complètement polarisé $S_{total} = NS = N/2$ (se référer à la discussion de Mouhanna [199] 1994). Le fondamental de l'Hamiltonien de Heisenberg antiferromagnétique est moins évident, car l'ordre antiferromagnétique est frustré par la structure triangulaire (fig. 8.1). Originellement, Anderson [72] 1973 proposa pour cet Hamiltonien un état fondamental à $T = 0$ exotique : du type " liquide de spins ", dont nous discutons, pour l'un d'entre eux, quelques caractéristiques dans la suite. Cependant actuellement, après quelques rebondissements dans la littérature il est admis qu'il possède un ordre de Néel à $T = 0$ (voir Jolicœur et Le Guillou [73] 1989, Bernu et al. [74] 1992 et Bernu et al. [75] 1994).

Les récents travaux théoriques de Misguich [203] 1999 penchent pour l'Hamiltonien

³Il s'agit de l'Identité, des Rotations planes d'angle $2\pi/3$ et $4\pi/3$, et des Réflexions suivant les trois médiatrices.

d'échange multiple sur réseau triangulaire dans le sens d'une transition à $T = 0$. Ils ont montré qu'il n'admettait, dans la gamme de paramètres adaptés à l' $^3\text{He-2D}$, que deux types d'états fondamentaux : ferromagnétique à $S_{total} = N/2$ et " liquide de spins " à $S_{total} = 0$ (Misguich et al. [71] 1998). Ces résultats, obtenus en diagonalisation exacte, comparés aux approches semi-classiques de Momoi et al. [76] 1997 et Kubo et Momoi [77] 1997, prouvent que les fluctuations quantiques sont si fortes pour ce système qu'elles détruisent tous les ordres standards obtenus classiquement (Kubo et Momoi [77] 1997), du type $uuud$, etc... (fig. 8.1). Seul l'état " liquide de spins " survit, avec des propriétés toutes particulières, discutées plus avant en section 8.3, comme de ne pas posséder d'ordre à longue distance (c'est-à-dire que la corrélation spin-spin $\langle \vec{S}_i \vec{S}_j \rangle$ est extrêmement faible, et décroît très rapidement avec la distance entre sites i et j).

Il est possible de dériver les propriétés basses températures de l'Hamiltonien, si l'on connaît son état fondamental, à l'aide d'un formalisme simple. Il s'agit de la technique des ondes de spin (voir à ce sujet l'excellente introduction de la thèse de Mouhanna [199] 1994). L'idée est de dire que l'on peut décrire les excitations du fondamental, que l'on s'est fixé, en termes de particules élémentaires. Dans notre cas, ces excitations sont des Bosons, et se représentent au premier ordre par des ondes planes délocalisées sur l'ensemble de l'échantillon, caractérisées par un vecteur d'onde $\vec{k}$ et une énergie $\mathcal{E}(\vec{k}) = \hbar\omega(\vec{k})$. En mécanique quantique, ces énergies $\mathcal{E}(\vec{k})$ diagonalisent l'Hamiltonien dans l'espace des $\vec{k}$, au premier ordre en $n(\vec{k})/S$ si $n(\vec{k})$ représente le nombre d'excitations de vecteur d'onde $\vec{k}$ (développement en $1/S$).

Les propriétés thermodynamiques se déduisent simplement de cette réécriture. Aussi, pour l'Hamiltonien de Heisenberg (ferromagnétique aussi bien qu'antiferromagnétique), du fait des propriétés de la symétrie brisée par l'ordre à $T = 0$, ces excitations obéissent au théorème de Goldstone : l'énergie des excitations $\mathcal{E}(\vec{k})$ s'annule en $|\vec{k}| = 0$ (voir par exemple la discussion de Strocchi [78] 1985).

La situation du " liquide de spins " est quelque peu différente. Même si l'état fondamental est bien défini, le fait qu'il n'admette pas de corrélations spin-spin à longue distance, fait que la description des propriétés basse énergie en terme d'ondes planes n'est pas nécessairement pertinente. La nature elle-même de ces excitations n'est pas définie. Elles peuvent briser le théorème de Goldstone ; on a alors un gap d'énergie Δ entre le fondamental et les états excités. Si ces premiers états sont caractérisés par un spin, on parlera de " gap de spin ".

En revanche, il reste possible de raisonner sur l'Hamiltonien dans l'espace des $\vec{k}$, pour tenter de tirer des informations sur la nature de ces excitations de basse énergie (Misguich

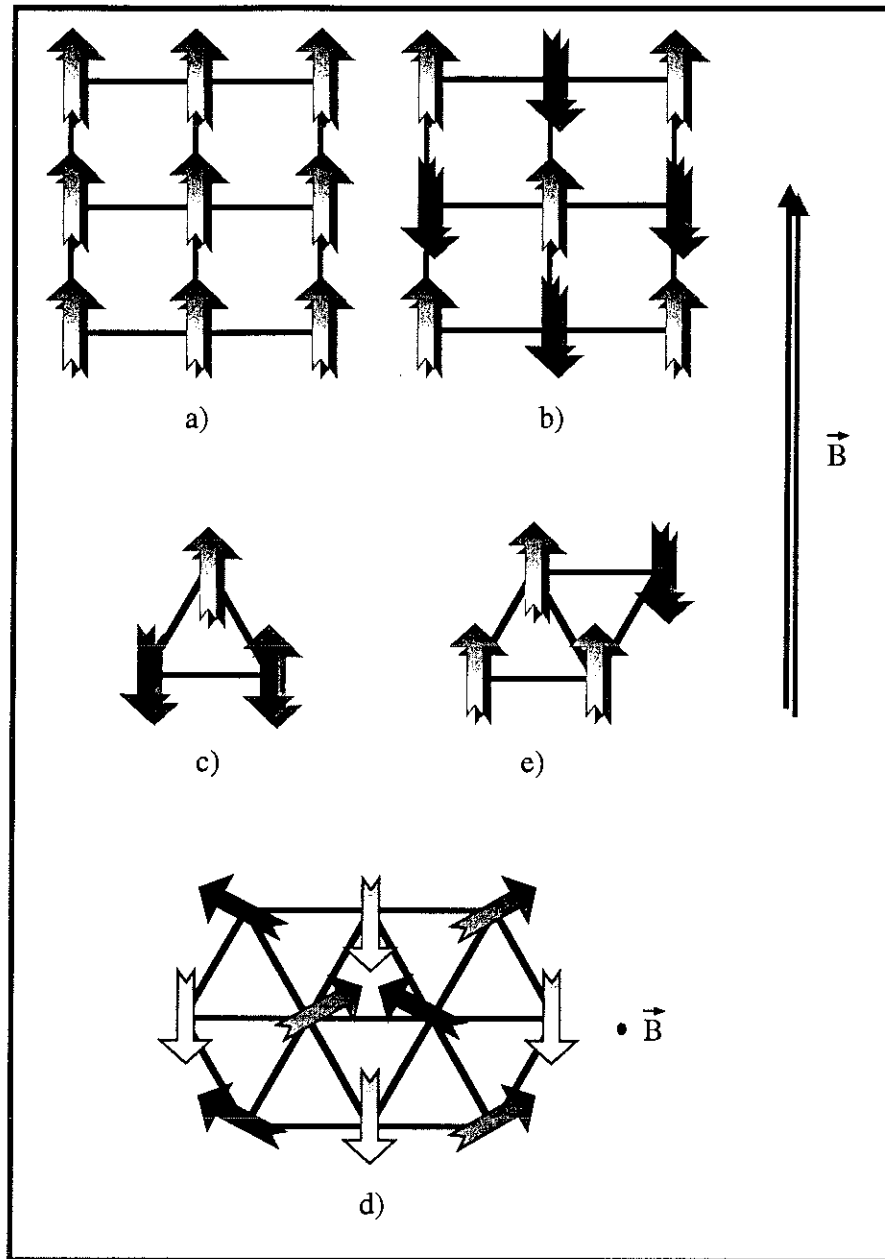


FIG. 8.1: Quelques ordres magnétiques à deux dimensions, pour des spins S sous faible champ magnétique $\vec{B}$ (représenté par la flèche noire sur la droite). Les flèches colorées représentent les différents états de spin, une ombre portée signifiant qu'ils ne sont pas nécessairement dans le plan de la couche. a) Ferromagnétisme sur le réseau carré : tous les spins sont dans le même état de polarisation. Ils pointent dans la même direction que le champ magnétique $\vec{B}$, qui définit ainsi l'axe de quantification. On parle alors de phase colinéaire. La polarisation totale est simplement $S_{total} = NS$. b) Antiferromagnétisme sur réseau carré : les spins sont alternativement dans leur deux états de polarisation, formant deux sous-réseaux polarisés à $NS/2$. L'axe de quantification est encore parallèle au champ, et la phase est dite colinéaire. c) Incompatibilité de l'ordre antiferromagnétique avec le réseau triangulaire : lorsque deux spins se soumettent à l'ordre antiferromagnétique, le troisième ne peut plus satisfaire simultanément les deux liens. Il est géométriquement frustré. d) Ordre de Néel : solution coplanaire, et non colinéaire, pour satisfaire l'Hamiltonien de Heisenberg antiferromagnétique sur réseau triangulaire. Les spins pointent à 120° les uns des autres, formant trois sous-réseaux polarisés à $NS/3$. Chaque sous-réseau a son propre axe de quantification, qui n'est a priori plus parallèle au champ $\vec{B}$. e) Ordre uudd : une solution proposée pour l'Hamiltonien d'échange multiple sur réseau triangulaire avec des spins $S = 1/2$ (Kubo et Momoi [77] 1997). Les spins forment deux sous-réseaux polarisés l'un à $3NS/4$, et l'autre à $NS/4$.

[203] 1999). Nous essayons à l'aide d'une approche semi-empirique de ce type, de définir l'analogie des ondes de spin dans ce cas.

Ces techniques basses températures sont utilisées dans ce chapitre, afin d'obtenir des informations quantitatives sur le système.

Ainsi, la physique de l' ^3He -2D connaît un intérêt croissant lorsqu'on progresse vers les plus basses températures. Cependant, pour pouvoir remonter sans ambiguïté aux aspects fondamentaux présentés ci-dessus, encore faut-il maîtriser les imperfections du système expérimental. Quelle est l'importance des défauts du potentiel d'adsorption du substrat de graphite, et de la taille finie de ses plaquettes ? Sommes-nous réellement dans la limite des champs magnétiques faibles ? Peut-on clarifier la transition entre antiferromagnétisme et ferromagnétisme ?

Ces quelques questions sont la raison d'être de l'expérience détaillée ci-après.

8.2 Mélanges $^3\text{He}/^4\text{He}$

8.2.1 Motivations

L'étude de la seconde couche d' ^3He -2D sur graphite se heurte à un premier problème évident : son signal magnétique est masqué par la forte contribution paramagnétique de la première couche dense (section 7.8).

Pour s'en affranchir, on utilise les propriétés des isotopes ^3He et ^4He exposées en section 7.3 : l' ^4He a une énergie de point zéro plus faible que l' ^3He , et n'est pas magnétique. Par conséquent, si l'on ajoute au système de l' ^4He , ces atomes auront tendance à remplacer les atomes d' ^3He situés dans les puits de potentiel les plus profonds, et ainsi en supprimer le signal magnétique. Cette procédure de remplacement a été largement étudiée depuis les premières expériences sur l'Hélium adsorbé (voir par exemple Ahonen et al. [4] 1976, et Godfrin et al. [6] 1978).

Dans cette thèse, nous nous sommes donc intéressés à l'étude de l' ^3He en seconde couche, où la première couche est une couche d' ^4He . Nous notons ce système $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$, par opposition au système d' ^3He pur que nous notons $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$.

L'autre intérêt de cette adjonction d' ^4He , est que l'on va a priori remplacer tous les atomes d' ^3He "coincés" dans des sites de forte adsorption. Nous montrons que l'on peut ainsi discriminer leur contribution magnétique, et l'éliminer.

Enfin, la densité de la première couche d' ^4He est légèrement plus grande que celle de la première couche d' ^3He (discussion de la section 7.3, et section 7.8). On s'attend donc à ce que la seconde couche soit elle-même légèrement plus dense dans notre cas. Ceci nous permet de surcroît d'étudier la hiérarchie des échanges multiples J_i dans le cadre d'un système légèrement différent du cas ^3He pur.

Nous comparons alors nos résultats à ceux obtenus par Lusher et al. [82] 1991 sur $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$, aux expériences sur $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ (réanalysées dans Bäuerle et al. [60] 2000), et également aux mesures des groupes de Londres et Tokyo sur de l' ^3He adsorbé sur graphite recouvert de deux couches d'HD (Casey et al. [81] 1999 et Ikegami et al. [40] 2000). Nous notons dans la suite ce système sous la forme compacte $^3\text{He}/2\times\text{HD}/\text{Gr}$.

La procédure que nous avons adoptée est de fixer la quantité d' ^3He , et de régler le taux de couverture en ajoutant de l' ^4He . Nous montrons que cette technique nous permet de résoudre les différentes contributions magnétiques : combien d'atomes d' ^3He sont dans une phase liquide, dans une phase solide, et quelle est la nature de cette phase solide.

L'ensemble de nos résultats conforte l'idée d'une séparation de phases entre atomes d' ^3He et d' ^4He à deux dimensions. Précisons toutefois que ceci n'exclut pas que l'on puisse engendrer des défauts au sein des phases solides étudiées. En effet, on pourrait imaginer qu'une certaine proportion d'atomes d' ^4He reste soluble dans la phase d' ^3He solide, et se comporte par exemple comme des lacunes (voir par exemple Héritier et Lederer [83] 1979 pour les propriétés de telles entités), ou vice versa⁴. Ces considérations ont donné lieu récemment à de nouvelles expériences par le groupe de Londres (Patel et al. [84] 2001 et Ziouzia et al. [85] 2001). Nous commentons spécialement ce point dans la suite.

8.2.2 Expérience

L'ensemble de ce travail de thèse a été réalisé sur la cellule C_5 (Bäuerle [201] 1996). Elle est faite à base de Papyex, feuilles parallèles au champ magnétique, et ses caractéristiques sont exposées en chapitre 3. La fréquence RMN de travail est 989,6 kHz, soit 30,51 mT. La qualité du contact thermique entre les couches d' ^3He et les thermomètres installés sur le dispositif expérimental a été soigneusement vérifiée, à l'aide d'une monocouche d' ^3He -2D (4,6089 ccSTP, soit 9,283 at/nm²). Son caractère paramagnétique, et nous écrivons pour

⁴Pour l'hélium massif liquide, aux plus basses températures l' ^3He a une solubilité de l'ordre de 6% dans l' ^4He , alors que l' ^4He est exclu de l' ^3He (solubilité décroissant exponentiellement avec la température, de l'ordre de 200 ppm à 100 mK et 0 bar, He et al. [80] 2000). On trouve également une littérature consacrée aux mélanges fluides à deux dimensions (voir par exemple Hallock [53] 2000 pour une introduction). En revanche, il existe pour l'hélium massif solide des expériences sur les deux types d'inclusions (^3He dans l' ^4He solide, et ^4He dans l' ^3He solide, Rudavskii [79] 2001).

son aimantation $M(T) = C_{mono}/T$, en fait un excellent thermomètre, dans toute la gamme allant de $120\ \mu\text{K}$ à $400\ \text{mK}$.

Elle nous a permis de vérifier notre thermométrie basse température, obtenue par RMN pulsée du platine entre $120\ \mu\text{K}$ et $10\ \text{mK}$ environ. A plus haute température, nous avons utilisé une résistance de carbone calibrée (Speer $100\ \Omega$, nommée R21). Nous avons également vérifié la justesse de son étalonnage, et ce dès $7\ \text{mK}$. Notons également que cette monocouche nous fixe l'échelle d'aimantation via C_{mono} , constante de Curie proportionnelle au nombre de spins présents et au gain de l'amplificateur RMN.

La monocouche nous a également permis de calibrer le niveau critique d'injection RMN. En effet, au-delà d'un certain seuil, le champ radiofréquence chauffe le graphite par courant de Foucault. Enfin, nous avons à plusieurs reprises étalonné le champ magnétique de la RMN continue, et vérifié son homogénéité (les raies les plus fines obtenues ont une largeur δ_0 à $10\ \text{mK}$ de l'ordre de $0,015\ \text{mT}$, comparables aux raies les plus étroites mesurées sur ce système, Rapp et Godfrin [45] 1993).

Les détails expérimentaux concernant ces procédures sont exposés en section 4.2.

A la suite de ces étalonnages préliminaires, nous avons réchauffé l'ensemble du cryostat au-delà de $30\ \text{K}$. Après avoir extrait le gaz correspondant à la monocouche⁵, nous avons en premier lieu introduit $6,3704\ \text{ccSTP}$ d' ^4He , puis $2,9731\ \text{ccSTP}$ d' ^3He dans la cellule expérimentale. Le système est resté toute une nuit à $9\ \text{K}$ environ, puis a été refroidi jusqu'au alentours de $10\ \text{mK}$ en plus de deux jours. Cette procédure nous garantit la qualité cristalline des couches, ainsi que le bon remplacement des atomes d' ^3He par des atomes d' ^4He (Godfrin et al. [6] 1978).

Le taux de couverture a été ensuite ajusté en augmentant la quantité d' ^4He par pas de $0,5\ \text{ccSTP}$ environ. Chaque nouveau taux de couverture a bénéficié d'un recuit à $4\ \text{K}$, et a été refroidi lentement autour de $10\ \text{mK}$ en une journée.

L'acquisition des résultats, via une carte numérique DAQ, s'est faite par une série de désaimantations nucléaires adiabatiques (voir chapitre 2). Pour valider la reproductibilité des résultats, certains taux de couverture ont bénéficié de deux désaimantations consécutives. Chaque point en température a été obtenu en régulant la température de l'étage à désaimantation nucléaire, et en moyennant plusieurs raies de RMN (de 2 à 100 suivant les conditions). Nous obtenons des barres d'erreur d'environ 3% sur toute la gamme pour $M(T)$, avec une légère perte de résolution aux plus hautes températures. Les détails de cette procédure sont discutés en section 4.2.

⁵Nous avons vérifié, en désorption, que l'ensemble du gaz introduit est ressorti de la cellule expérimentale.

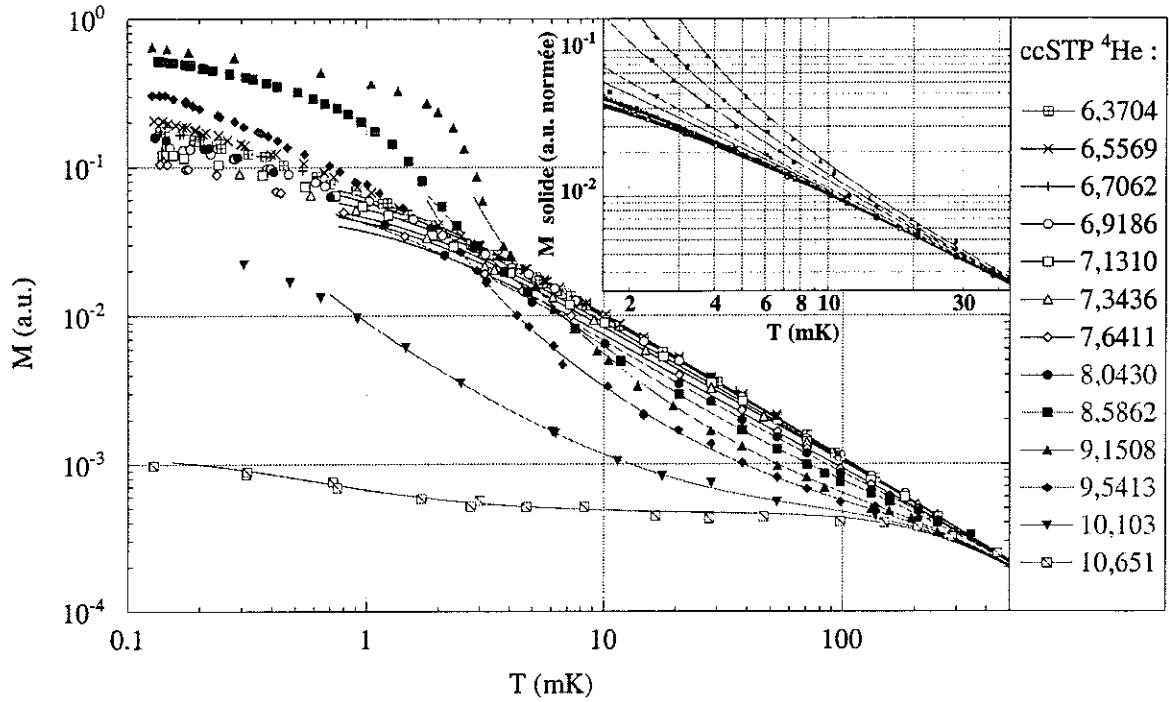


FIG. 8.2: Données brutes $M(T)$ mesurées pour l' $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$ (cellule C_5 , 30,51 mT). A haute température, nous retrouvons pour tous les taux de couverture la même loi de Curie, signature que le nombre total de spins est fixe. Aux températures intermédiaires, on note une oscillation de l'aimantation, produite par la promotion des atomes du solide vers le liquide, d'aimantation plus faible. Encart : le liquide a été soustrait, et l'aimantation a été normalisée à la quantité de spins présents dans la phase solide. Au-dessus de 40 mK environ (non représenté sur ce graphique), tous les taux de couverture sont paramagnétiques avec la même constante de Curie normée. Les ajustements décrits dans le texte sont les traits pleins. Les barres d'erreur, non représentée, sont de l'ordre de $\pm 3\%$ sur les deux axes.

L'expérience s'étend approximativement de la solidification de la seconde couche $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$, à la complétion de la seconde couche d' $^4\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$, l' ^3He se trouvant alors dans la troisième couche liquide. La gamme de température étudiée va de 120 μK à 400 mK, soit près de 3,5 ordres de grandeur.

En fig. 8.2, nous montrons l'ensemble des mesures d'aimantation $M(T)$ réalisées au cours de cette thèse sur la deuxième couche solide d' ^3He -2D. Donnons-en les premières caractéristiques :

- A haute température (plus de 100 mK), toutes les courbes correspondent à la même loi de Curie en C/T . En effet, dans cette gamme tous les ^3He se comportent comme des spins libres, paramagnétiques, et la constante C (dite de Curie) en mesure la quantité. Cette quantité étant constante dans notre expérience, nous retrouvons simplement la même fonction pour tous les taux de couverture.
- Aux températures intermédiaires (entre 5 mK et 100 mK), on note une oscillation dans

l'aimantation. Elle est simplement due à la superposition d'une contribution solide, reproduite par une série haute température de Heisenberg notée $Heis(J_\chi^{Heis}, T)$ dans la suite, et d'une contribution liquide que l'on ajuste par la loi de Dyugaev [51] 1990 en $1/\sqrt{T^2 + T_F^{**2}}$ (section 7.8). Cette superposition suppose une coexistence simple entre les phases solides et liquides, ce qui a toujours été observé pour ce système (voir Bäuerle [201] 1996, et Saunders et al. [86] 1990). Dans ces conditions, les interactions indirectes, du type exposé en section 7.5, n'ont d'influence que sur les paramètres d'interaction J_χ^{Heis} et T_F^{**} .

- Aux plus basses températures (au-dessous de 5 mK), le comportement est complexe, et toute interprétation nécessite une compréhension profonde des deux précédents points.

Dans une première approche, il est donc préférable de se limiter aux températures supérieures à quelques mK, et d'ajuster les quantités respectives de liquide et de solide. Nous utilisons la loi :

$$M(T) = C \left[\frac{n_{solide}}{n_{total}} Heis(J_\chi^{Heis}, T) + \frac{(1 - \frac{n_{solide}}{n_{total}})}{\sqrt{T^2 + T_F^{**2}}} \right]$$

où n_{total} est la quantité totale d'atomes d' ^3He introduits (soit 2,9731 ccSTP), et C la constante de Curie déduite des mesures en monocouche⁶ par $C = C_{mono} 2,9731/4,6089$. Une telle expression suppose que le champ magnétique peut être considéré comme nul et n'influence pas les propriétés magnétiques. Nous justifions ce point dans la suite. Nous avons donc trois paramètres : une quantité n_{solide} d'atomes, l'échange effectif de Heisenberg J_χ^{Heis} dans le solide et l'interaction T_F^{**} dans le liquide.

Notons que ces deux échelles d'énergie sont bien séparées, J_χ^{Heis} étant de l'ordre du mK, et la température de Fermi T_F^{**} de l'ordre de 100 mK. Nous nommons l'échange J_χ^{Heis} échange effectif, car pour le moment son seul rôle est de reproduire les données expérimentales, sans considération sur la nature de, ou des phases solides en présence.

Ces ajustements sont montrés en fig. 8.2, dans la figure et dans l'encart, sous la forme de traits pleins.

En fig. 8.3 nous montrons le paramètre n_{solide} obtenu par ces ajustements, et son corollaire $n_{liquide} = n_{total} - n_{solide}$. Globalement, nous estimons la borne supérieure de nos barres d'erreur à $\pm 2\%$ d'une seconde couche solide pleine (soit 0,06 ccSTP).

La quantité d' ^4He présente en seconde couche est représentée en fig. 8.4. L'obtention de ce

⁶Dans cette expérience, $C_{mono} = 0,172 \text{ Volt}^2\text{mK}$ (se référer au chapitre 4.2), et par conséquent $C = 0,111 \text{ Volt}^2\text{mK}$.

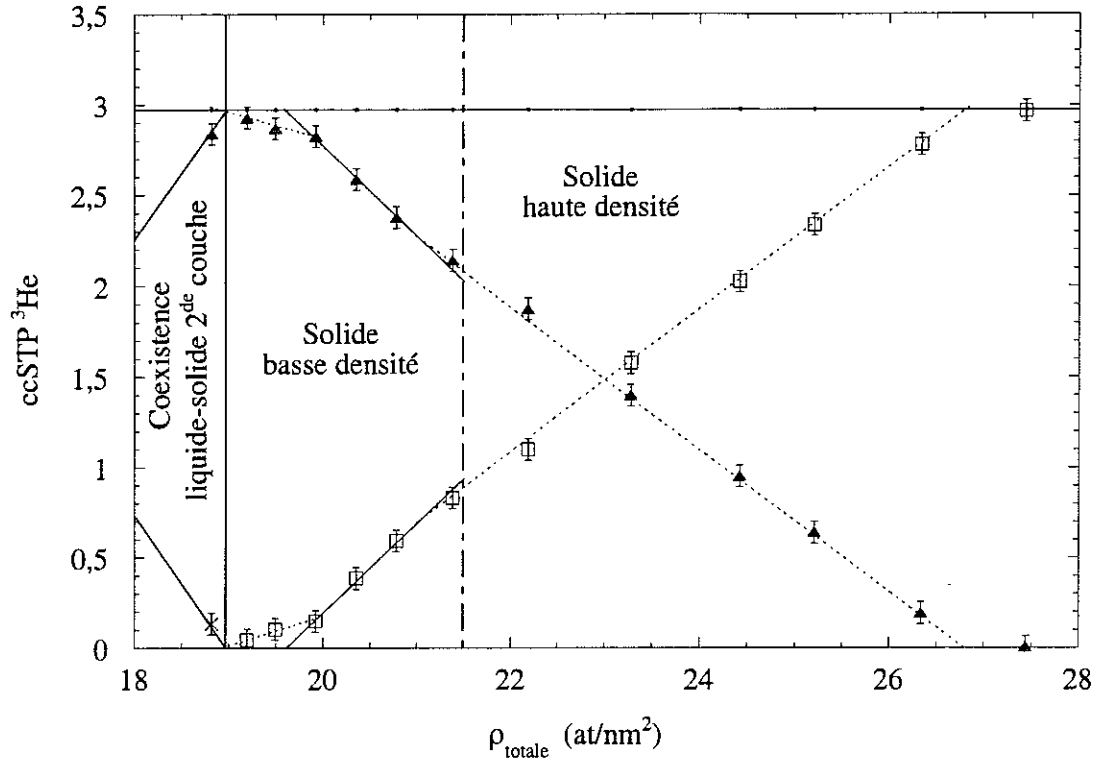


FIG. 8.3: Quantités d'atomes n_{solide} ($\blacktriangle$) et n_{liquide} ($\times$ en seconde couche, $\square$ en troisième couche) tirées des ajustements, en ccSTP, en fonction du taux de couverture ρ_{totale} . La ligne horizontale représente la quantité totale n_{total} ($\bullet$) d' ^3He utilisée. La ligne verticale pleine marque la fin de la coexistence liquide-solide en seconde couche, représentée schématiquement par les droites tiretées. Au-delà, nous distinguons deux zones : celle du solide basse densité, correspondant à l'antiferromagnétisme en fig. 8.5, et celle du solide haute densité marquant l'apparition du ferromagnétisme, séparées par la verticale tiretée. Les droites pleines et pointillées distinguent les pentes de ces courbes, propres à chaque zone. Le passage de l'une à l'autre correspond à la compression de la seconde couche solide (de l'ordre de 21 %, ces ajustements sont discutés dans les sections 8.3 et 8.4 suivantes). Les barres d'erreur sont indicatives et représentent environ $\pm 2\%$ d'une seconde couche solide pleine.

graphique part de la constatation que la première couche est à son maximum de densité, et contient tout au long de notre expérience environ $6,22 \text{ ccSTP d}'^4\text{He}$. Ce chiffre est calculé à l'aide du volume commensurable de la cellule C_5 cité en section 7.7, et des mesures de neutrons de la section 7.8. Nous tirons de ces données la surface incommensurable S_{incom} de l'échantillon (sections 7.7 et 7.8), qui représente l'évolution de cette surface avec le taux de couverture. De la connaissance de la densité de cette couche ($11,61 \text{ at}/\text{nm}^2$), nous déduisons directement la quantité d'atomes impliqués. Aussi, le remplacement des atomes d' ^3He par des atomes d' ^4He assure que, pour les taux de couvertures utilisés, tout atome d' ^4He ajouté se loge en seconde couche.

Nous comparons en fig. 8.5 les données J_x^{Heis} ajustées dans notre expérience, avec les résultats tirés des mesures sur $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ (Bäuerle [201] 1996).

Pour tous les graphiques de cette section, l'échelle de taux de couverture ρ_{totale} en at/nm^2

est simplement calculée en ajoutant les quantités ccSTP d' ^3He et d' ^4He . Pour de plus amples explications sur ce point, se référer à la section 7.7. En revanche, dans les sections suivantes, nous ferons extensivement référence aux quantités ccSTP d' ^4He ajouté. Nous les notons simplement en ccSTP, en omettant d'écrire qu'il s'agit d' ^4He , puisqu'il n'y a pas de confusion possible (dans notre expérience la quantité d' ^3He est fixe à 2,9731 ccSTP).

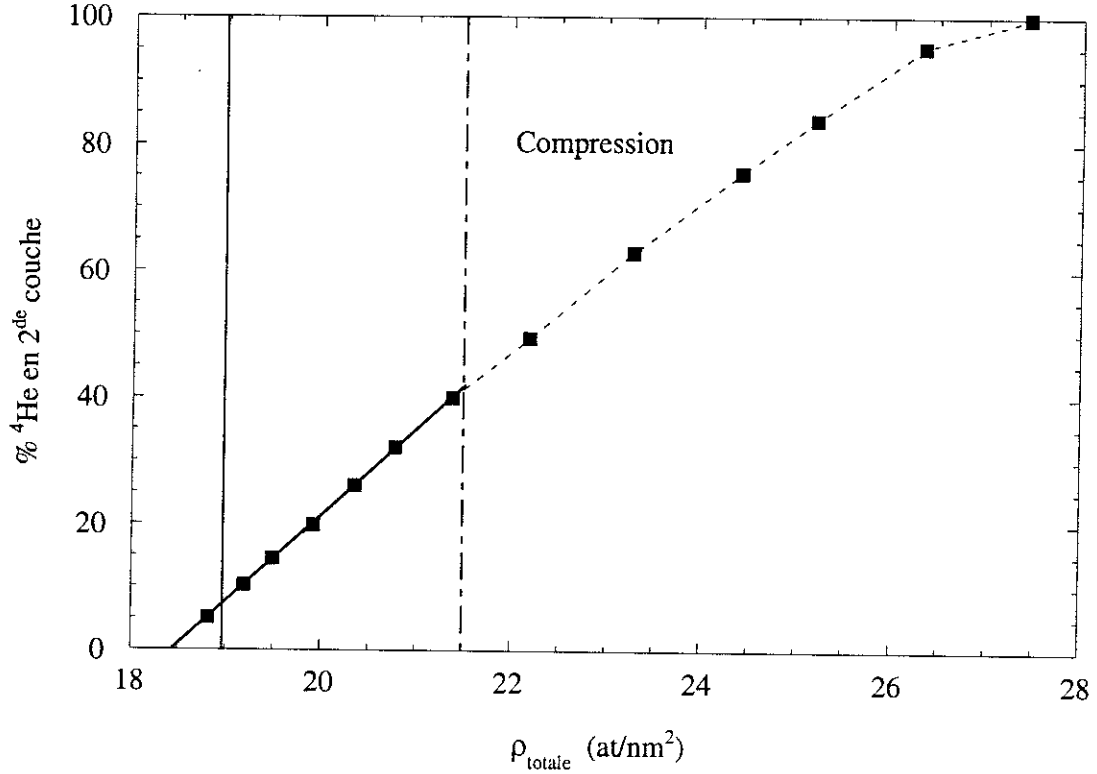


FIG. 8.4: Pourcentage d' ^4He présent en seconde couche, ramené à la quantité totale d'atomes d'Hélium de la couche, en fonction du taux de couverture ρ_{totale} . A nouveau la verticale pleine marque la fin de la coexistence liquide-solide en seconde couche. Ce graphique est obtenu en considérant que 6,22 ccSTP d' ^4He sont en première couche (voir texte). De la même façon qu'en fig. 8.3, nous distinguons deux zones (verticale tiretée). Le changement de pente marque encore la compression de la seconde couche solide.

Le premier point ($\times$) obtenu sur la fig. 8.3 se trouve dans le régime de coexistence liquide-solide en deuxième couche (couverture de $18,80 \text{ at}/\text{nm}^2$ en accord, à 1,5 % près, avec les résultats sur $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ de la section 7.8). Elle se termine environ au niveau de la ligne verticale pleine. Par la suite, on observe une promotion continue des atomes du solide vers le liquide présent en troisième couche.

Sur les trois graphiques 8.3, 8.4 et 8.5, on distingue deux régions, séparées par une ligne tiretée verticale.

A basse densité, la promotion des atomes vers le liquide (fig. 8.3) a une structure complexe qu'il va falloir expliquer. Cette gamme correspond, en fig. 8.5 à l'antiferromagnétisme.

Le passage au travers de la ligne de délimitation tiretée se caractérise sur les fig. 8.3 et fig. 8.4 par une brisure de pente. Il s'agit d'une signature claire de la compression de la couche solide (d'environ 21 %, droite pointillée), que l'on retrouve en fig. 8.5 avec l'apparition du ferromagnétisme. Dans la gamme que nous nommons " ferromagnétique ", se trouvent cependant deux points (les extrêmes 22,19at/nm² et 27,44at/nm²) de couplages J_x^{Heis} négatifs. Ils font l'objet de discussions particulières en sections 8.3 et 8.4.

On remarque que le plateau antiferromagnétique est beaucoup plus large (plus de quatre fois environ) pour nos mesures sur $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$ que pour $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$. Ceci est une signature claire de la stabilité de la phase commensurable : le fait de mélanger ^3He et ^4He donne une nouvelle possibilité au système, qui est de remplacer les atomes d' ^3He de la seconde couche solide par des ^4He , sans compression, conservant ainsi la commensurabilité. Ce phénomène est évidemment inexistant chez Lusher et al. [82] 1991 : le système étudié dans cette publication est également l' $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$, mais le taux de couverture est varié via l' ^3He . Il n'y a donc aucune contradiction ici. Nous discutons ce mécanisme de remplacement d'atomes dans la suite.

En fig. 8.5, l'échange J_x^{Heis} possède un maximum dans le régime ferromagnétique (" anomalie ferromagnétique ") au alentours de 24at/nm², aussi bien pour $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ (Franco et al. [50] 1986) que pour $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$ (Lusher et al. [82] 1991, non représenté ici).

On retrouve ce passage de l'antiferromagnétisme au ferromagnétisme avec $^3\text{He}/2\times\text{HD}/\text{Gr}$ (Casey et al. [81] 1999, Ikegami et al. [40] 2000). Dans ce système, le paramètre de maille est beaucoup plus grand, ce qui d'après ce que nous avons déjà expliqué en section 7.8 augmente les échanges J_i . Les constantes $|J_x^{\text{Heis}}|$ sont ainsi très grandes dans le régime antiferromagnétique, alors que la forte compétition entre échanges à deux et trois corps à basse densité réduit J_x^{Heis} dans le régime ferromagnétique.

Dans notre cas sur $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$, la densité plus élevée réduit les constantes d'échange J_i , et nos valeurs pour $|J_x^{\text{Heis}}|$ sont plus faibles que celles rapportées par Lusher et al. [82] 1991 et Bäuerle [201] 1996 sur toute la gamme. Une analyse plus poussée est cependant nécessaire, et fournie dans les sections suivantes.

Enfin, nous montrons en fig. 8.6 les températures de Fermi T_F^{**} extraites de nos ajustements. Ce paramètre est beaucoup plus bruité que les précédents⁷, car on perd en résolution à haute température. Cependant, on voit que T_F^{**} augmente globalement avec le taux de

⁷L'ajustement des T_F^{**} est très corrélé à celui des quantités de liquide n_{liquide} . Il est possible de commettre des erreurs importantes sur ce paramètre lorsqu'on n'a que très peu d'atomes dans la phase liquide. Aussi, les barres d'erreur de la fig. 8.6 sont données en supposant que les quantités d' ^3He ajustées sont exactes. Tout changement dans ces valeurs peut modifier l'allure de la courbe donnée en fig. 8.6. La discussion sur les anomalies obtenues doit donc être prise avec précaution.

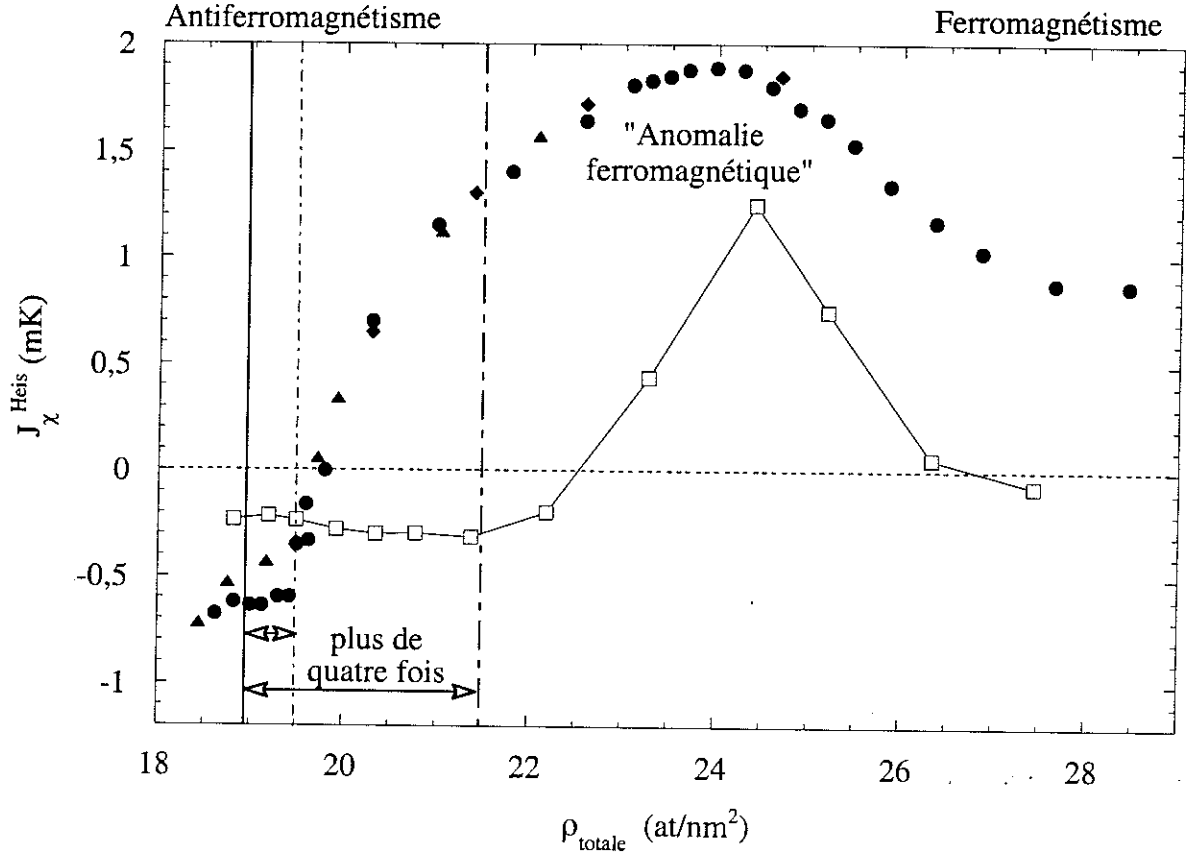


FIG. 8.5: Echanges de Heisenberg effectifs J_{χ}^{Heis} en fonction du taux de couverture ρ_{totale} , ajustés sur les données $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ des groupes de Standford ($\blacklozenge$), de Londres ($\blacktriangle$) et de Grenoble ($\bullet$) (synthèse de Bäuerle [201] 1996), et ajustés sur nos données $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$ ($\square$). Pour les deux systèmes, nous obtenons un maximum, nommé "anomalie ferromagnétique", au alentours de 24 at/nm^2 . La verticale pleine est la fin de la coexistence liquide-solide en seconde couche. La ligne verticale à gros tirets délimite les zones antiferromagnétique et ferromagnétique de nos résultats, celle à tirets fins marque la même séparation dans $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$. Le point juste après la ligne de démarcation est, en toute rigueur, antiferromagnétique, mais il est déjà bien plus proche du ferromagnétisme que les précédents (taux $22,19 \text{ at/nm}^2$). Nous l'excluons donc, ce qui se justifiera en sections 8.3 et 8.4. De même, le dernier point à $27,44 \text{ at/nm}^2$, également légèrement antiferromagnétique, bénéficiera d'une discussion particulière en section 8.4. Les flèches horizontales délimitent le plateau où la phase antiferromagnétique est stable. Dans notre cas, cette zone est environ quatre fois plus large que pour les systèmes jusqu'à présent étudiés.

couverture.

Aussi, nous confirmons la valeur minimale d'environ 80 mK (mesures de Bäuerle [201] 1996), obtenue pour la coexistence liquide-solide en deuxième couche. La valeur de 240 mK environ atteinte aux taux de couverture les plus élevés conforte les résultats de Lusher et al. [82] 1991.

Les précédentes mesures de T_F^{**} sur différents substrats (se référer à Bäuerle [201] 1996), montrent que cette grandeur dépend de la densité du liquide ρ_{liquide} suivant une courbe universelle. Si on se recale sur ces résultats, on en déduit que, dans notre cas, la densité du liquide diminue avec le taux de couverture, ce qui signifie qu'en proportion, la quantité d' ^3He liquide augmente moins vite que la surface disponible en troisième couche.

Pour discuter ce point, il faut également faire mention de deux anomalies sur la courbe de la fig. 8.6. A basse densité, l'augmentation de T_F^{**} se fait de façon assez brusque⁷ aux alentours de 21 at/nm². Ce changement se fait avant la transition vers le ferromagnétisme, ce qui fait que même si le liquide y contribue via un mécanisme indirect (section 7.5), il ne

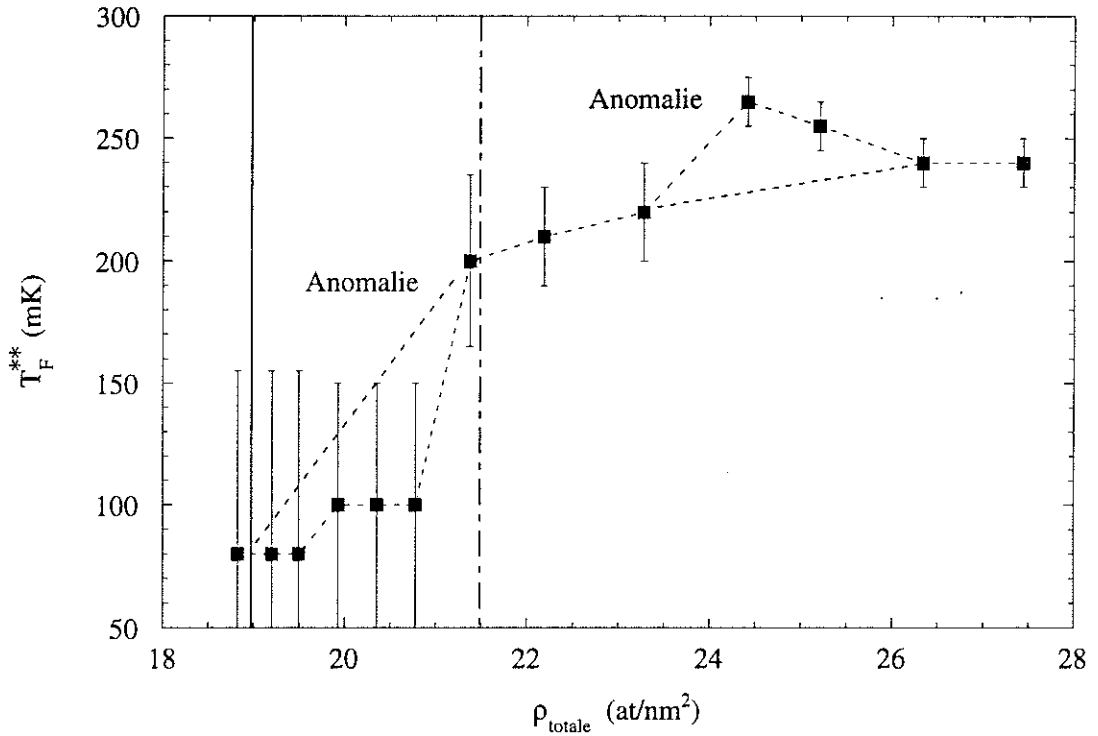


FIG. 8.6: Températures de Fermi T_F^{**} ajustées sur nos données, en fonction du taux de couverture ρ_{totale} . Les barres d'erreur sont indicatives, et proviennent de la perte de résolution à haute température. Globalement, T_F^{**} augmente avec ρ_{totale} , ce qui indique une diminution de la densité du liquide ρ_{liquide} . Les verticales pleine et tirée sont à nouveau respectivement la fin de la coexistence liquide-solide en seconde couche, et l'apparition du ferromagnétisme via la compression. Nous notons deux anomalies, à 21 at/nm² et 24 at/nm² environ. Elles sont commentées dans le texte. Les lignes pointillées sont des guides pour les yeux.

peut être tenu pour responsable de la transition elle-même. Ceci est impossible à discriminer dans le cas de l' $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$, car promotion dans la troisième couche et compression de la phase solide démarrent au même point ; il a pourtant été proposé un lien de causalité, mais nos résultats montrent qu'il ne peut s'agir d'une propriété profonde et générale de l' ^3He -2D.

A 24 at/nm² environ, nous notons un léger pic dans la température de Fermi T_F^{**} . Encore une fois, cette remontée semble hors de nos barres d'erreurs⁷.

La diminution de la densité suggère que l' ^3He liquide en troisième couche se situe, du moins au début de l'expérience, sur l' ^4He de la seconde couche. Une telle position est en effet privilégiée car les atomes d' ^4He ont une taille effective plus petite (section 7.3) que celle des atomes d' ^3He , et le potentiel d'adsorption pour le liquide se trouvant directement au-dessus est donc plus élevé.

Cependant, on ne peut rendre compte de l'évolution de ρ_{liquide} en faisant simplement le rapport de n_{liquide} sur la proportion d' ^4He présent en seconde couche.

Il est clair que le mécanisme d'évolution du liquide est complexe, et différentes explications sont possibles : signature dans le liquide de l'échange indirect avec le solide, changement de la répartition superficielle du liquide sur la deuxième couche, ou encore promotion dans les couches, ou disques de Fermi, supérieurs. Nous discutons à nouveau ces points dans la suite.

Il est à présent possible de pousser plus avant l'analyse, et de s'intéresser aux ultra-basses températures.

En section 8.3, nous discutons la première partie de nos données, correspondant à l'antiferromagnétisme. Nous montrons que nos résultats sont compatibles avec les avancées théoriques de Misguich (Misguich et al. [71] 1998, et Misguich [203] 1999), et amènent à la proposition d'un état " liquide de spins " pour l' ^3He -2D solide en deuxième couche.

Cet état, très proche dans l'espace des J_i de l'état ferromagnétique, est caractérisé par un très faible gap de spin Δ de l'ordre de 100 μK .

Dans une deuxième partie 8.4, nous nous intéressons au ferromagnétisme de l' ^3He -2D solide en deuxième couche. Nous montrons que la transition antiferromagnétisme-ferromagnétisme est compatible avec un scénario de coexistence de phases entre l'état " liquide de spins " et une phase plus dense.

Nous résolvons également une nouvelle contribution magnétique, jusqu'à présent jamais observée, que nous attribuons à la localisation d'atomes d' ^3He en troisième couche. Nous montrons que ces quantités d'atomes sont compatibles avec l'aimantation manquante des anciennes publications (Godfrin et al. [100] 1988, Schiffer et al. [87] 1994).

Cette analyse met en évidence que les atomes d' ^3He forment de petits îlots ferromagnétiques de quelques centaines de spins environ. Leur taille est donc presque comparable à la taille des systèmes théoriques étudiés actuellement en méthode numérique.

8.3 " Liquide de spins " dans l' ^3He -2D solide

Nous montrons en fig. 8.7 les aimantations $M(T)$ obtenues dans le régime antiferromagnétique au-delà de la coexistence liquide-solide en seconde couche, en incluant le taux de couverture suivant directement la ligne tiretée des graphiques précédents. Nous avons soustrait la contribution liquide et avons normalisé les courbes à la quantité de solide. Dans toute cette gamme, les raies d'absorption RMN mesurées sont presque parfaitement symétriques⁸. Comme pour l'encart de la fig. 8.2, au-dessus de 40 mK toutes les courbes sont pratiquement paramagnétiques avec la même constante de Curie normée.

Intéressons-nous aux températures inférieures à 1 mK. Nous observons initialement pour les trois premiers taux de couverture (6,5569 ccSTP, 6,7062 ccSTP et 6,9186 ccSTP) une diminution de l'aimantation. Puis, nous atteignons un régime où l'aimantation demeure remarquablement stable alors que nous augmentons le taux de couverture continûment (6,9186 ccSTP, 7,1310 ccSTP, 7,3436 ccSTP et 7,6411 ccSTP). Finalement, pour une quantité d' ^4He de 8,0430 ccSTP, le système change de nature, et l'augmentation soudaine de l'aimantation à basse température marque l'apparition du ferromagnétisme. C'est pourquoi nous avons exclu ce taux de couverture du régime antiferromagnétique dans la section précédente.

Nous pouvons interpréter ces résultats comme le réarrangement de la seconde couche solide alors que l'on ajoute de l' ^4He . Initialement, la couche contient des atomes d' ^3He dans la phase antiferromagnétique, que l'on nomme phase $\frac{4}{7}$ dans la suite, coexistant avec une faible fraction d'atomes situés dans les hétérogénéités du substrat. Ces derniers, logés dans les puits de potentiel les plus profonds, sont remplacés en premier lieu par les atomes d' ^4He .

L'aimantation de ces spins localisés a été étudiée à Grenoble, et a toujours montré un comportement que l'on pouvait reproduire par une simple loi de Curie-Weiss en $C_{loc}/(T - 3J_{loc})$ (Morhard [200] 1995, Bäuerle [201] 1996, Godfrin [88]). C_{loc} mesure le nombre de

⁸A l'ajustement de la phase près. En effet, la polarisation du solide n'atteint qu'à peine 3 % aux plus basses températures (environ 130 μK), ce qui est insuffisant pour déformer la raie par l'interaction dipolaire (section 4.3).

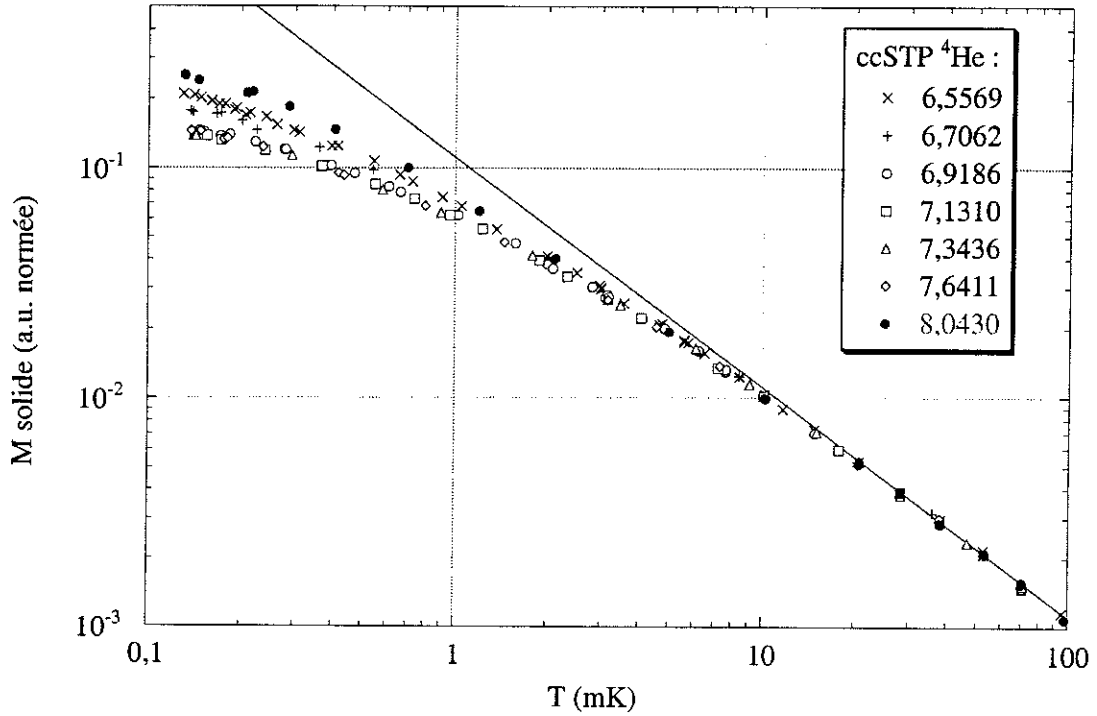


FIG. 8.7: Aimantation dans le régime antiferromagnétique, après soustraction du liquide et normalisation à la quantité de solide. Nous avons exclu, par souci de clarté, les mesures obtenues dans la région de coexistence liquide-solide en seconde couche. Le premier taux de couverture ferromagnétique est également représenté. Au-dessus de 40 mK toutes les courbes sont pratiquement paramagnétiques avec la même constante de Curie normée. Pour les taux de couverture les plus faibles, l'aimantation décroît alors que l'on ajoute de l' ^4He (différentes croix). Ensuite, l'aimantation du solide reste stable sur toute une gamme de taux de couvertures (symboles vides). Puis, le système change de nature et l'aimantation croît à nouveau, signe de l'apparition du ferromagnétisme (symbole plein ●, taux 8.0430 ccSTP). La diagonale représente la loi de Curie obtenue avec notre constante C (0,111 Volt²mK).

spins concernés, et J_{loc} est encore une fois un paramètre effectif dépendant des interactions. Expérimentalement, de l'ordre de 4% à 20% (augmentant avec la taux de couverture) d'une couche pleine peuvent être attribués à ces spins, J_{loc} est antiferromagnétique et compris entre $-105 \mu\text{K}$ dans les zones du diagramme de phases correspondant au liquide, et $-35 \mu\text{K}$ dans les zones correspondant au solide. Cette évolution de J_{loc} et de la quantité est cohérente avec une densification du solide piégé. Nous revenons sur ce point dans la suite. Les premières conjectures concernant ces atomes d' ^3He piégés sont dues à Elgin et al. [89] 1978, basée sur des mesures d'énergie d'adsorption et de chaleur spécifique. Golov et Pobell [11] 1995 et [12] 1996 ont proposé depuis un modèle de "solide vitreux" pour rendre compte des propriétés thermodynamiques et magnétiques de ces atomes fortement localisés. L'idée consiste à dire que les zones du potentiel d'adsorption considérées sont très inhomogènes, et donnent lieu pour les interactions à une distribution de J . Du fait de la dépendance approximativement exponentielle des échanges cycliques J_i avec la densité

du film, et de la tendance au ferromagnétisme à forte densité (sections 7.8 et 8.1), Golov propose que $\ln J$ soit à peu près uniforme, J étant positif. En superposant les comportements hautes températures sur une gamme bornée par $J_{\min}$ et $J_{\max}$, il obtient pour la chaleur spécifique C_V et la susceptibilité magnétique χ :

$$C_V(T) = Nk_B \ln 2 \frac{1}{\ln(J_{\max}/J_{\min})}$$

$$\chi(T) = N \frac{(g_N \mu_N)^2 S(S+1)/(3k_B)}{T} \frac{\ln(T/J_{\min})}{\ln(J_{\max}/J_{\min})}$$

où nous avons employé les mêmes conventions que dans les sections précédentes. L'intérêt de ce modèle est de rendre compte d'une chaleur spécifique constante en température, obtenue sur Vycor par Golov et Pobell [12] 1996 et sur argent fritté par Greywall et al. [90] 1988. Rappelons que Greywall [39] 1990 rapporte également une faible contribution constante dans ses mesures de C_V sur Grafoil. Les récents travaux de Morishita et al. [13] 1999 sont en accord qualitatif avec ces derniers, mais semblent mettre en évidence une légère dépendance en T à haute température.

En revanche, même si cette susceptibilité χ pourra toujours reproduire grossièrement une forme de type Curie-Weiss, il nous faut commenter les défauts de ce modèle simpliste :

- En toute rigueur, si l'on a réellement affaire à une large distribution de densités, il n'y a aucune raison de privilégier les fortes densités en se donnant un seul J positif. Bien au contraire, l'ajustement en Curie-Weiss des données de Grenoble donne un échange antiferromagnétique. Ainsi, il faudrait prendre en compte une distribution, peut-être constante en logarithme, mais au moins des deux échanges J_2 et J_3 .
- La superposition est faite en considérant que pour tous les échanges de la distribution, nous sommes dans la limite haute température $J \ll T$. Les ajustements par cette loi fournissent typiquement $J_{\min} \approx 100 \mu\text{K}$ et $J_{\max} \approx 100 \text{ mK}$ pour l' ^3He sur le Vycor (Golov et Pobell [11] 1995), ainsi que $J_{\min} \approx 10 \mu\text{K}$ et $J_{\max} \approx 30 \text{ mK}$ pour $^3\text{He}/2\times\text{HD}/\text{Gr}$ (Ikegami et al. [40] 2000). Il est clair qu'au-dessous de 10 mK la condition $J \ll T$ ne sera pas satisfaite pour une grande partie des spins considérés. Tout ajustement, obtenu par une loi pour χ du type cité ci-dessus, ne peut donc être que phénoménologique.
- La susceptibilité χ dépend de trois paramètres, et le nombre de spins N ajusté est directement corrélé aux interactions $J_{\min}$ et $J_{\max}$. Ce fait rend difficile toute analyse quantitative.

Quitte à utiliser une approche phénoménologique, nous préférons donc une loi de Curie-Weiss qui ne dépend que de deux paramètres, chacun ayant un rôle bien défini (quantité

d'atomes et interaction), plutôt que ce modèle à trois paramètres.

Nous ajustons donc, pour les taux de couverture 6,5569 ccSTP et 6,7062 ccSTP, la remontée de l'aimantation aux ultra-basses températures par $C \frac{n_{loc}}{n_{total}} / (T - 3J_{loc})$, avec $J_{loc} = -33,3 \mu\text{K}$. Le taux de couverture 6,3704 ccSTP correspondant à la coexistence liquide-solide en seconde couche, possède également une remontée de ce type, que nous ajustons de la même façon.

En fig. 8.8 nous donnons les quantités n_{loc} en ccSTP ajustées pour ces atomes d' ^3He localisés, et nous rappelons les nombres d'atomes $n_{liquide}$ présent dans la phase liquide. L'axe horizontal est cette fois en ccSTP également.

Le premier point est dans la zone de coexistence liquide-solide de la seconde couche, qui se termine par la ligne verticale pleine (point L, 6,46 ccSTP soit $19,0 \text{ at/nm}^2$). Notons qu'en ce point, nous obtenons le maximum de spins localisés. Ceci peut se comprendre en arguant que la solidification pousse davantage d'atomes dans les sites de forte adsorption. Il en résulte une augmentation de densité, visible par la baisse de $|J_{loc}|$ déjà mentionnée entre le régime liquide et le régime solide.

Par extrapolation linéaire, nous estimons le nombre de ces atomes piégés à environ 0,7 ccSTP, soit 23 % de la seconde couche pleine. Ce résultat est en accord avec les mesures de Ishida⁹ et al. [96] 1997 et Morishita et al. [13] 1999.

Originellement, l'idée proposée était que ces défauts du substrat ne sont rien d'autre que les bords et les jonctions des plaquettes de graphite (Elgin et al. [89] 1978, Morhard [200] 1995 ; voir la présentation du substrat de la section 7.2). Sur du Grafoil, pour un système fini d'un diamètre D d'environ $60 \text{ \AA}$, et un paramètre de maille d de $4 \text{ \AA}$, le rapport du nombre de spins sur la plaquette au nombre de spins sur le bord s'écrit : $(\frac{2}{\sqrt{3}d^2} \frac{\pi D^2}{4}) / (\frac{1}{d} \pi D) \approx 4,3$. Pour du Papyex, substrat de la cellule C_5 utilisée, on a plutôt des plaquettes d'un diamètre D d'environ $500 \text{ \AA}$. Cependant, nous avons vu en section 7.2 qu'il existe une forte proportion de petites plaquettes, qui pourraient expliquer que l'on retrouve les mêmes quantités de défauts quel que soit l'échantillon. Ceci expliquerait également l'homogénéité des échelles de couverture (section 7.7).

Notons également que le caractère commensurable de la phase $\frac{4}{7}$ pourrait la rendre intrinsèquement sensible aux défauts du potentiel de corrugation. Nous revenons sur cette notion de spins localisés dans la suite, et discutons le cas du régime incommensurable (section 8.4).

⁹Il est fait mention dans ce papier de 16 ccSTP de spins localisés. Leur cellule expérimentale, faite de Grafoil, est caractérisée par une surface spécifique de 450 m^2 environ, qu'il faut comparer aux $13,61 \text{ m}^2$ de notre cellule de Papyex C_5 (chapitre 3). Ramené à nos dimensions (si l'on oublie la nature différente du substrat), il s'agit donc de 0,5 ccSTP d'atomes piégés, soit 17 % de la couche environ.

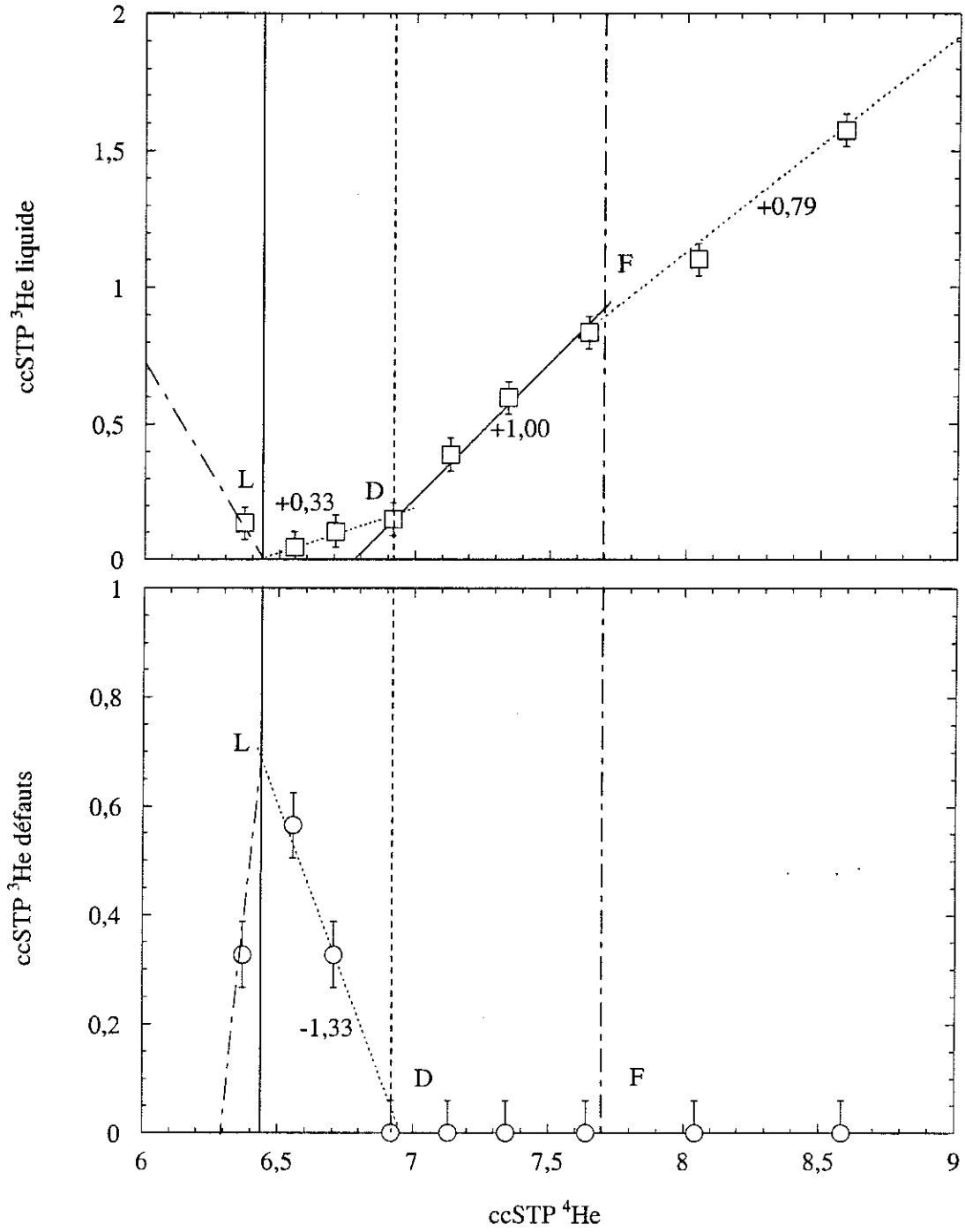


FIG. 8.8: Ajustement des quantités de spins localisés n_{loc} (figure du bas). La figure du haut rappelle les quantités de liquide $n_{liquide}$ obtenues. Le taux de couverture est cette fois mesuré en ccSTP d' ^4He ajouté. Utilisant les mêmes conventions que précédemment, la ligne verticale pleine marque la fin de la coexistence liquide-solide en seconde couche (point L), et la ligne tiretée le début du ferromagnétisme (point F). La ligne verticale pointillée indique elle la disparition des atomes piégés (point D). Les droites tiretées sont encore un guide pour les yeux. Les droites pleines et pointillées sont des ajustements commentés dans le texte, certains étant déjà représentés en fig. 8.3 (leur pentes sont indiquées sur la figure). Les barres d'erreur, indicatives, correspondent à $\pm 2\%$ d'une seconde couche solide pleine.

Du point L au point D, l'ajout d' ^4He supprime les spins localisés. Au cours de ce régime, chaque atome d' ^4He ajouté déloge 1,33 atomes d' ^3He , dont seul 33 % vont dans le liquide (ajustements pointillés en fig. 8.8). Il nous faut donc conclure qu'une partie de ces atomes restent en seconde couche, et viennent grossir la quantité d' ^3He présent dans la phase $\frac{4}{7}$. On pourrait par exemple imaginer, pour expliquer ces faits, que les sites de forte adsorption sont moins volumineux lorsqu'ils sont remplis par des atomes d' ^4He (suivant les idées développées en section 7.3), laissant la possibilité à la phase ^3He de s'étendre légèrement dans la couche, forçant d'autant plus les atomes d' ^3He piégés à sortir.

Du point D au point F, tous les atomes d' ^3He piégés ont été remplacés. Les courbes d'aimantation sont toutes identiques en fig. 8.7, et seule la quantité d'atomes dans la phase $\frac{4}{7}$ varie. En conséquence, tout ^4He ajouté remplace un ^3He de la seconde couche, qui passe dans le liquide ; nous obtenons un ajustement de pente 1 en fig. 8.8.

Enfin, au-delà du point F l'ajustement de la promotion en fig. 8.8 nous indique une compression de 21 % de la couche solide (ligne pointillée). Les propriétés de la seconde couche solide, ou du moins d'une partie de cette couche, changent et le ferromagnétisme apparaît (dernier taux de couverture de la fig. 8.7). Nous étudions ce régime en section 8.4 suivante.

Poursuivant cette analyse, nous soustrayons la contribution des spins localisés, et normalisons cette fois à la quantité d'atomes présents dans la phase $\frac{4}{7}$. Par construction, en fig. 8.9 toutes nos données d'aimantation, depuis la coexistence liquide-solide jusqu'au dernier point en zone D-F (fig. 8.8), se superposent sur une seule et même courbe universelle. Nous avons également appliqué cette analyse aux données de Bäuerle et al. [92] 1998. Cette expérience a été réalisée sur la même cellule expérimentale C_5 , avec 6,224 ccSTP d' ^4He et 3,556 ccSTP d' ^3He , dans 113,2 mT. En accord avec nos résultats, ces quantités d'atomes nous placent au niveau de la coexistence liquide-solide en deuxième couche, mais du fait des proportions, avec légèrement plus de liquide (11 % de la totalité d' ^3He), et de spins localisés (17 %). Les caractéristiques du liquide (T_F^{**}) et des atomes piégés (J_{loc}) sont les mêmes que celles de notre expérience. Ces ajustements superposent¹⁰ l'aimantation de Bäuerle et al. [92] 1998 sur nos données.

De l'ensemble de ces résultats, nous pouvons tirer les conclusions importantes suivantes :

- Alors que l'aimantation de la phase $\frac{4}{7}$ reste stable, nous avons vu que la température de Fermi T_F^{**} change, et plus important encore, la quantité de liquide présent augmente continûment de 3 % à 30 %. Il nous faut donc conclure que le liquide n'a aucune

¹⁰Cette superposition se fait moyennant le recalage des constantes de Curie, qui dépendent du gain de l'amplificateur utilisé. Dans l'expérience de Bäuerle [201] 1996, cette constante était de $C = 0,02813 \text{ Volt}^2\text{mK}$, déduite des mesures en monocouche, la nôtre étant $C = 0,1111 \text{ Volt}^2\text{mK}$.

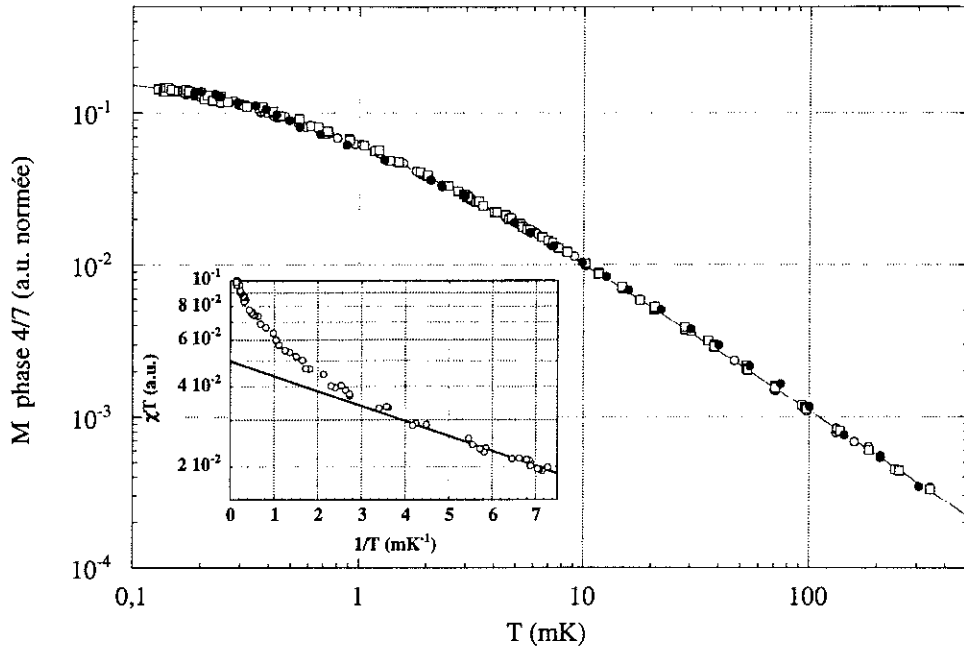


FIG. 8.9: Aimantation $M(T)$ obtenue pour nos données dans 30,51 mT après cette analyse, dans toute la gamme dite antiferromagnétique (symboles creux). Nos mesures dans le régime de disparition des spins localisés sont les $\square$, et le régime stable les $\circ$. Les données de Bäuerle et al. [92] 1998 dans 113,2 mT réanalysées suivant le même principe sont également représentées (symboles pleins $\bullet$). Toutes ces mesures se superposent suivant la même loi universelle. Le trait plein représente un ajustement purement empirique, obtenu par somme de deux lois de Curie-Weiss (discuté en section suivante). Son écart moyen aux mesures est de l'ordre de $\pm 3\%$ sur toute la gamme. On retrouve ce type d'ajustement expérimental dans de nombreux systèmes électroniques géométriquement frustrés (Ramirez [62] 1999, Schiffer et al. [93] 1997). La constante de Curie correspondant à cette courbe normée est $C = 0,111 \text{ Volt}^2\text{mK}$. Encart : produit de la susceptibilité magnétique par l'aimantation χT , fonction de l'inverse de la température $1/T$. Le trait plein représente une chute exponentielle $\exp(-\Delta/T)$, avec $\Delta = 130 \mu\text{K}$.

influence sur cette phase solide, et qu'il n'y a aucun échange indirect. La phase $\frac{4}{7}$ se décrit donc simplement à l'aide des échanges J_i dans le plan ; le système est bi-dimensionnel. Comme nous l'avons mentionné, il est possible de justifier ce point en proposant que l' ^3He liquide ne couvre que l' ^4He de la seconde couche.

- En changeant le taux de couverture, nous augmentons la proportion d' ^4He en seconde couche de 5 % à 40 %, sans avoir d'effet sur l'aimantation de la phase $\frac{4}{7}$. Il n'y a donc aucun effet de taille finie décelable dans cette gamme, et nous pouvons considérer le système comme étant infiniment grand (limite thermodynamique).
- Nous ne pouvons conclure quant à la présence de défauts induits au sein de la phase d' ^4He solide, par inclusion d' ^3He , ni même dans la phase d' ^3He , par l'ajout d' ^4He . Cependant, il est fort improbable que de tels défauts soient insensibles à l'évolution de la proportion d' ^4He en seconde couche citée ci-dessus.
- Entre notre expérience et l'expérience de Bäuerle et al. [92] 1998, nous avons diminué le champ magnétique d'un facteur 3,71 (voir le chapitre 3). Encore une fois, il n'y

a pas de signature sur l'aimantation de la fig. 8.9 associée à ce changement. Nous nous trouvons donc en champ magnétique suffisamment faible pour nous limiter à l'Hamiltonien en champ nul. Nos résultats confirment l'interprétation de Bäuerle et al. [92] 1998, notre réanalyse ne fait que modifier légèrement les paramètres extraits des données (sous-section 8.3.2).

L'aimantation montrée en fig. 8.9 est donc une propriété intrinsèque à la phase $\frac{4}{7}$, gouvernée uniquement par l'Hamiltonien (7.3) d'échange multiple à 2D. Nous estimons, d'après les mesures de neutrons sur la première couche dense (section 7.8), sa densité à $\rho_{\frac{4}{7}} = 6,64 \text{ at/nm}^2$. Ce point étant acquis, il est possible de tirer des informations quantitatives sur les échanges J_i et sur la nature du fondamental à $T = 0$ du système. Entre autres, nous pouvons chercher à justifier la chute visiblement exponentielle de la susceptibilité magnétique multipliée par la température (encart fig. 8.9), à l'aide d'un faible gap de spin Δ .

8.3.1 Analyse " de Heisenberg "

Il est connu expérimentalement que les systèmes magnétiques géométriquement frustrés suivent la loi de Curie-Weiss jusqu'à des températures $T \leq |J_x^{Heis}|$ (Ramirez [62] 1999). Schiffer et al. [93] 1997 ont proposés un ajustement pour ces systèmes électroniques à l'aide de deux lois de Curie-Weiss. Leur justification est la présence de deux populations de spins de propriétés distinctes. Nous revenons sur ce point ci-dessous.

Nous montrons une telle loi¹¹ obtenue pour reproduire nos données en fig. 8.9. La qualité de cet ajustement est effectivement surprenante (de l'ordre de $\pm 3\%$ sur toute la gamme, dans les barres d'erreur expérimentales), et elle nous incite à tenter une première analyse de nos mesures en nous limitant à la partie Heisenberg de l'Hamiltonien d'échange multiple.

Nous montrons en fig. 8.10 un ajustement (en trait plein) obtenu par la série haute température $Heis(J_x^{Heis}, T)$ avec $J_x^{Heis} = -0,26 \text{ mK}$. L'erreur quadratique moyenne de cet ajustement, des plus hautes températures jusqu'à environ $1,5 \text{ mK}$ est de 3% , comparable aux barres d'erreur expérimentales. Il est possible également de forcer une loi de Curie-Weiss $C/(T - 3J_x^{eff})$ au travers de l'ensemble des données ($J_x^{eff} = -0,215 \text{ mK}$, trait pointillé).

Jolicœur et Le Guillou [73] 1989 ont obtenu l'expression en ondes de spin de l'Hamil-

¹¹Nous utilisons $M(T) = 0.11115[(1 - 0.57562)/(T + 2.1783) + (0.57562)/(T + 0.38261)]$ avec M en Volt² et T en mK.

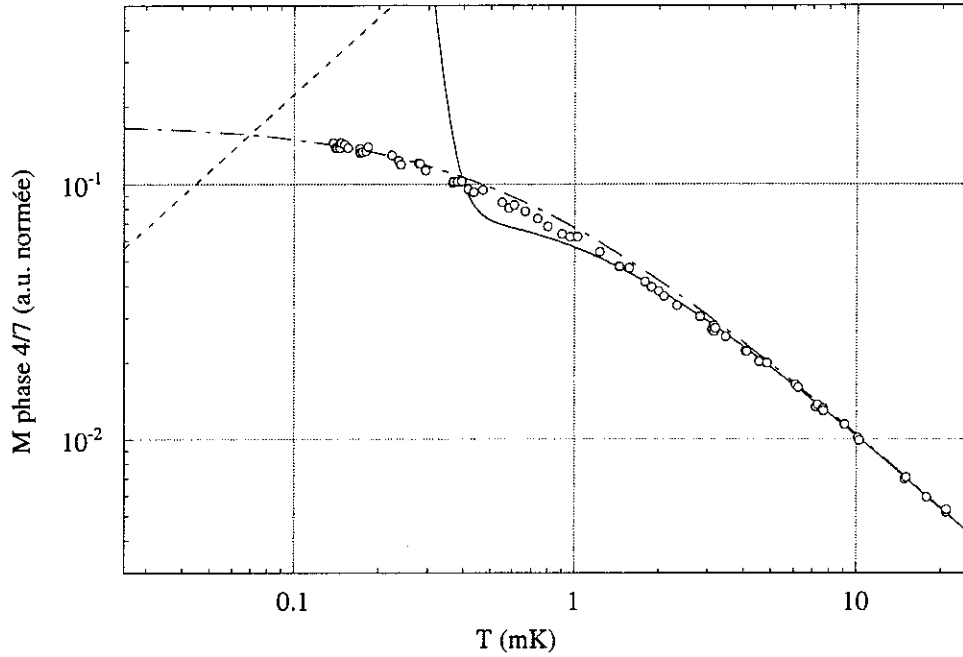


FIG. 8.10: Ajustement haute température (trait plein) des données $M(T)$ de la phase $\frac{4}{7}$ à l'aide d'une loi de Heisenberg pure $Heis(J_\chi^{Heis}, T)$. $J_\chi^{Heis} = -0,26$ mK, et l'écart quadratique est de l'ordre de 3 % jusqu'à 1,5 mK environ. Un ajustement forcé par une loi de Curie-Weiss est également montré en tirets (avec $J_\chi^{eff} = -0,215$ mK). A basse température (trait pointillé), nous représentons l'aimantation obtenue par l'approche en ondes de spin en fixant l'échange à J_χ^{eff} (loi linéaire en température, voir texte). Cette comparaison, indicative, n'est valide que dans la limite $T \ll |J_\chi^{eff}|$ et ne montre pas d'incompatibilité avec nos données.

tonien de Heisenberg sur réseau triangulaire, en champ nul. A l'aide d'arguments simples, basés sur d'autres résultats (Bernu et al. [75] 1994), nous en proposons une expression en champ faible, et calculons l'aimantation basse température (fig. 8.10). Pour les excitations de basse énergie¹², et de grande longueur d'onde (faible $|\vec{k}|$), la relation de dispersion est :

$$\mathcal{E}(\vec{k})_{\sigma=\pm 1} = 3\sqrt{\frac{3}{2}}|J_\chi^{Heis}|k_B S|\vec{k}d| - g_N\mu_N\sigma|\vec{B}_\parallel|$$

où d représente le paramètre de maille, les autres grandeurs étant déjà définies. Le magnon $\vec{k} = \vec{0}$ doit être exclu. Ce sont des Bosons de spin $\sigma = \pm 1$. Ce développement fait intervenir le champ magnétique $|\vec{B}|$, ou plus précisément sa projection dans le plan de la couche $|\vec{B}_\parallel|$, et la constante d'échange J_χ^{Heis} mesurée dans notre cas soit par l'ajustement de Heisenberg, J_χ^{Heis} , soit par l'ajustement de Curie-Weiss, J_χ^{eff} . Supposons que toutes les plaquettes sont parallèles au champ, et de suffisamment grande dimension¹³. L'expression

¹²En toute rigueur, du fait de la nature tripartite du réseau magnétique, il existe trois branches d'excitations basse énergie, correspondant à des Bosons $S = 1$. Deux branches sont identiques, et correspondent aux états de projections $\sigma = \pm 1$. L'énergie de la dernière se déduit via un facteur multiplicatif $\sqrt{2}$, et correspond au mode $\sigma = 0$, non magnétique, que nous avons omis par souci de clarté.

¹³Pour la cellule C_5 les feuilles de Papyex sont parallèles au champ (chapitre 3). Ceci revient donc à négliger la distribution en orientation et en taille des plaquettes de graphite (section 7.2).

de l'aimantation basse température est alors linéaire en T , et si nous prenons J_x^{eff} comme mesure de l'interaction entre spins, elle s'écrit simplement :

$$M(T) = \frac{C}{J_x^{eff}} \frac{1,645}{9\pi\sqrt{3}S^4} \left(\frac{T}{J_x^{eff}} \right)$$

où toutes les variables ont déjà été définies. Nous nous bornons à une simple comparaison. Aussi, la cohérence physique de ce résultat est suffisante pour une telle approche. Le point à retenir est que cette loi, indicative, qui ne peut être valide que dans la limite $T \ll |J_x^{eff}|$, n'est pas a priori incompatible avec nos données.

Bien que cette analyse semble attrayante au premier abord, il nous faut la critiquer vivement. En effet :

- La loi en double Curie-Weiss est justifiée par Schiffer et al. [93] 1997 en invoquant la présence de deux types de spin. Dans notre cas, les proportions seraient de 57,6 % soit presque moitié-moitié, ce qui dans le cadre du régime commensurable, a priori le plus homogène, est difficile à croire. De même, invoquer la commensuration de la phase $\frac{4}{7}$ pour justifier que la moitié de la couche solide est constituée de défauts, nous semble une exagération en contradiction avec la qualité de l'ensemble des résultats obtenus jusqu'ici en RMN, mais également en chaleur spécifique (section 7.8). De surcroît, ce ratio est fixe pour tous nos taux de couverture antiferromagnétiques ; encore une fois, il est difficile d'imaginer que ce rapport de population soit insensible à un changement d'un facteur 10 de la quantité d' ^4He en seconde couche.
- L'ajustement de Heisenberg est raisonnable, mais le Curie-Weiss forcé montre un écart de 10 % aux données expérimentales aux alentours du mK, ce qui compte tenu de notre résolution est inacceptable.
- L'aimantation calculée en ondes de spin n'est pas en désaccord avec nos mesures. Cependant, on tire également du modèle de Heisenberg une chaleur spécifique $C_V(T) \propto T^2$ à basse température, la courbe $C_V(T)$ ayant un maximum, et un seul, en $T \sim |J^{Heis}|$. Ceci est en désaccord avec les mesures de Ishida et al. [96] 1997, réalisées jusqu'à 90 μK . Nous commentons ces résultats expérimentaux en section suivante.

Enfin, nous excluons cette analyse sur la base des résultats théoriques déjà cités de Roger [59] 1990 et Bernu et al. [33] 1992, seuls à rendre compte de l'évolution du magnétisme en fonction de la densité.

8.3.2 Analyse en échange multiple

Delrieu et al. [24] 1980 les premiers proposèrent l'Hamiltonien d'échange multiple pour expliquer les propriétés magnétiques de l' ^3He -2D. Depuis, de nombreux travaux sont allés dans cette direction, et Bäuerle et al. [60] 2000 donnent sur cette base une description cohérente du magnétisme de la seconde couche solide (sections 7.8 et 8.1).

Nous appliquons cette analyse à nos données $M(T)$ obtenues pour la phase $\frac{4}{7}$. A haute température, nous utilisons un approximant de Padé tiré de la série haute température de l'Hamiltonien d'échange multiple (Roger [68]). L'ajustement sur nos mesures, réalisé entre 2 mK et 200 mK, fait intervenir quatre paramètres (J_2^{eff} , J_4 , J_5 et J_6), la constante de Curie C étant fixée. Pour faciliter leur obtention, nous limitons l'espace des J_i comme suit :

- Les estimations semi-classiques de Roger [32] 1984 à forte densité donnent la hiérarchie $J_3 > J_4 \sim J_6 > J_2 \gg J_5$. En première couche, pour $\rho = 7,85 \text{ at/nm}^2$, Bernu et al. [33] 1992 rapportent en simulation Monte-Carlo la hiérarchie $J_2^{\text{eff}} > J_3 > J_2 > J_4 > J_6 > J_5$. Nous extrapolons ces résultats, en accord avec les ajustements obtenus sur $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ par Bäuerle et al. [60] 2000, pour la seconde couche peu dense d' $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$ par :
 $J_2^{\text{eff}} > J_4 \gtrsim J_6 > J_5$.
- Considérant que nos résultats sur une première couche d' ^4He ne peuvent être très différents de ceux de Bäuerle et al. [60] 2000 sur ^3He pur, nous bornons l'espace des J_i en nous basant sur leurs valeurs :
 $J_2^{\text{eff}} \in [2, 15 ; 3, 45] \text{ mK}$
 $J_4, J_5, J_6 \in [0, 45 ; 2, 45] \text{ mK}$
- Les mesures d'aimantation et de chaleur spécifique donnent également des bornes à J_x^{eff} et J_C^{eff} . En restant assez large, nous choisissons :
 $J_x^{\text{eff}} \in [-1 ; 1] \text{ mK}$
 $J_C^{\text{eff}} \in [1 ; 3] \text{ mK}$

Même sous ces hypothèses, l'ajustement reste difficile. Ainsi, l'espace des J_i à quatre dimensions est découpé par pas de $(50 \mu\text{K})^4$, et pour chaque point nous calculons l'écart quadratique $\sqrt{\chi^2}$ entre la courbe expérimentale et les $\text{Padé}_{[3,2]}(J_i, T)$ et $\text{Padé}_{[2,3]}(J_i, T)$ que nous avons générés. En minimisant l'écart $\sqrt{\chi^2}$, nous cherchons la solution physique acceptable¹⁴. En fig. 8.11, nous représentons les ajustements obtenus (trait plein et poin-

¹⁴En toute rigueur, si nous ne limitons pas l'espace des J_i comme nous l'avons fait, d'autres minima sont possibles. Cette analyse choisit celui qui, d'après les résultats théoriques, nous semble le plus pertinent.

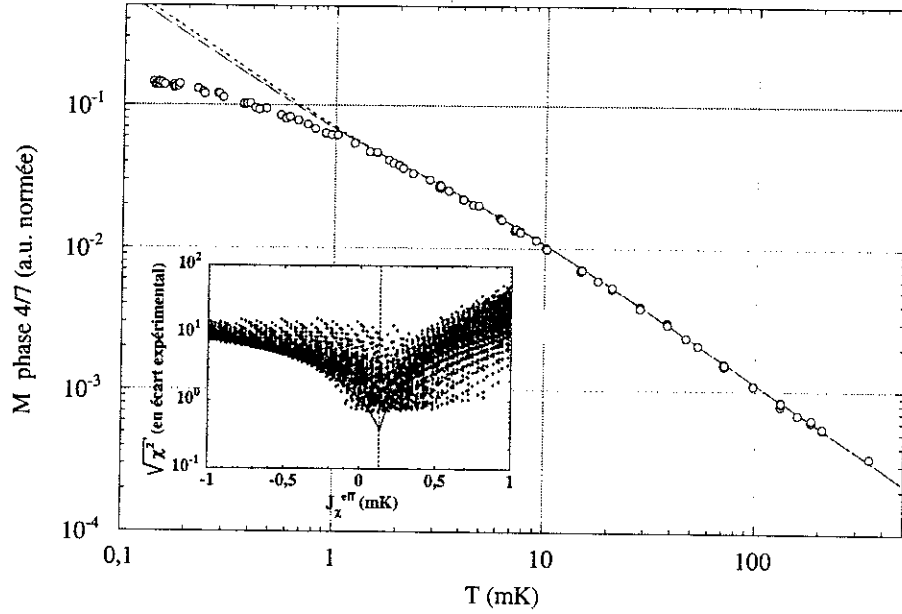


FIG. 8.11: Ajustement haute température de l'aimantation de la phase $\frac{4}{7}$, obtenu par l'Hamiltonien d'échange multiple ($Padé_{[3,2]}(J_i, T)$ trait plein, et $Padé_{[2,3]}(J_i, T)$ trait pointillé). L'écart quadratique moyen est de l'ordre du % jusqu'à 2 mK, et les paramètres sont : $J_2^{eff} = 2,80$ mK, $J_4 = 1,40$ mK, $J_5 = 0,45$ mK, $J_6 = 1,25$ mK. Encart : convergence de l'écart quadratique $\sqrt{\chi^2}$ pour le $Padé_{[3,2]}(J_i, T)$, suivant la direction de l'espace des J_i définie par J_χ^{eff} (normalisé à l'écart expérimental de 3 %). Les ligne courbe et la verticale pointillée sont des guides pour les yeux. Le minimum retenu vérifie $J_\chi^{eff} = +0,07$ mK et $J_C^{eff} = 1,57$ mK. Les barres d'erreur sur les échanges multiples sont de l'ordre du pas de calcul utilisé, soit $\pm 0,05$ mK.

tillé), et dans l'encart la convergence de $\sqrt{\chi^2}$.

Le jeu de paramètres retenu est :

$$J_2^{eff} = 2,80 \text{ mK}, J_4 = 1,40 \text{ mK}, J_5 = 0,45 \text{ mK}, J_6 = 1,25 \text{ mK}$$

avec $J_\chi^{eff} = +0,07$ mK et $J_C^{eff} = 1,57$ mK

à $\pm 0,05$ mK environ.

L'écart quadratique moyen correspondant est de l'ordre du %, de l'ordre de l'erreur expérimentale. Notons que, comme pour tous les autres ajustements haute température réalisés, la température au-dessous de laquelle la loi dévie est de l'ordre de 2 mK.

Nous confirmons les échanges rapportés par Bäuerle et al. [92] 1998 à 3 % près, sauf pour J_6 que nous réévaluons à la baisse¹⁵.

De plus, les valeurs que nous trouvons vérifient $J_5/J_4 = 0,32$, en accord avec les simulations numériques de Bernu et al. [33] 1992 et Bernu [94].

Nous pouvons remarquer que le J_χ^{eff} obtenu, $+0,07$ mK, est bien différent du $J_\chi^{Heis} =$

Nous considérons que les barres d'erreur sur nos paramètres sont au moins de l'ordre du pas de calcul, soit 0,05 mK.

¹⁵Dans cette publication, nous avons $J_2^{eff} = 2,72$ mK, $J_4 = 1,42$ mK, $J_5 = 0,50$ mK et $J_6 = 1,92$ mK. Notons que J_6 ne vérifiait pas la hiérarchie présentée dans cette section.

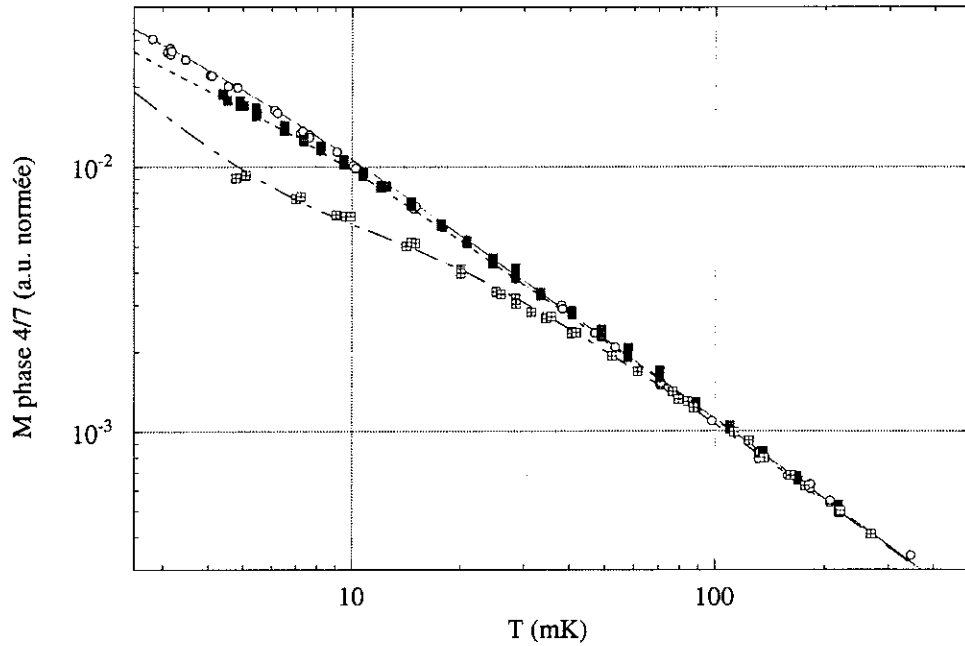


FIG. 8.12: Ajustement haute température de l'aimantation de la phase $\frac{4}{7}$, obtenu par le $Padé_{[3,2]}(J_i, T)$ de l'Hamiltonien d'échange multiple, pour les différents systèmes expérimentaux. Toutes ces mesures ont été normalisées à la même constante de Curie $C = 0,111 \text{ Volt}^2 \text{mK}$, les champs magnétiques étant suffisamment faibles. Par ordre de densité décroissante : (○) trait plein, $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$ (nos données, Papyex cellule C_5 dans 30,51 mT). (■) trait pointillé, $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ (données de Morhard [200] 1995, Grafoil dans 15,7 mT). (□) trait tireté, $^3\text{He}/2\times\text{HD}/\text{Gr}$ (données d'Ikegami et al. [40] 2000, Grade GTY Grafoil dans 19,1 mT). Les valeurs obtenues pour les différents échanges cycliques sont fournies dans le tableau 8.1. Les ajustements, de qualité comparable (écart moyen de quelques %), sont commentés dans le texte.

$-0,26 \text{ mK}$ ajusté en section précédente, et qu'il est même légèrement ferromagnétique. Ceci démontre l'annulation des termes en $\vec{S}_i \vec{S}_j$ dans l'Hamiltonien, du fait de la forte compétition entre les différents cycles d'échanges. Comme nous l'avons remarqué en section 8.1, il s'agit d'une signature directe de l'importance des opérateurs à plus de deux spins, comme $(\vec{S}_i \vec{S}_j)(\vec{S}_k \vec{S}_l)$, et dans ces conditions, l'ajustement de type Heisenberg obtenu en sous-section 8.3.1 ne peut être que phénoménologique.

Nous pouvons appliquer le même type d'analyse aux résultats obtenus sur $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ (données de Morhard [200] 1995 et ajustement de Bäuerle et al. [60] 2000, poursuivant l'analyse de Roger [59] 1990 et Bäuerle et al. [91] 1998), et aux mesures sur $^3\text{He}/2\times\text{HD}/\text{Gr}$. Il est reconnu actuellement, que pour toutes ces sous-couches, l' ^3He à basse densité solidifie dans une phase commensurable $\sqrt{7} \times \sqrt{7}$. En fig. 8.12, nous présentons les ajustements $Padé_{[3,2]}(J_i, T)$ haute température en échange multiple, obtenus pour les aimantations des trois différents systèmes. Leurs qualités sont comparables (de l'ordre de quelques % d'erreur dans la gamme considérée), et les paramètres obtenus sont listés dans le tableau 8.1. Nous estimons encore les barres d'erreur sur ces valeurs à $\pm 0,05 \text{ mK}$ environ. L'ajustement

Echange	$^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$	$^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$	$^3\text{He}/2\times\text{HD}/\text{Gr}$
J_2^{eff}	2,80 mK	3,00 mK	7,50 mK
J_4	1,40 mK	1,80 mK	5,40 mK
J_5	0,45 mK	0,62 mK	2,00 mK
J_6	1,25 mK	1,50 mK	4,20 mK
J_x^{eff}	+0,07 mK	-0,24 mK	-1,33 mK
J_C^{eff}	1,57 mK	1,79 mK	5,01 mK
$\rho_{\frac{4}{7}}$	6,64 at/nm ²	6,34 at/nm ²	5,25 at/nm ²

TAB. 8.1: Echanges ajustés sur les données d'aimantation des phases $\frac{4}{7}$ montrées en fig. 8.12. Les valeurs pour $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ sont tirées de Bäuerle et al. [60] 2000, les autres ont été ajustées par nos soins. Les barres d'erreur sont d'environ $\pm 0,05$ mK. Nous indiquons également dans la dernière ligne la densité de chacun de ces systèmes. Elle est calculée à l'aide de la densité de la sous-couche mesurée aux neutrons (section 7.8).

sur $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ est tiré de la publication de Bäuerle¹⁶ et al. [60] 2000, alors que nous avons réalisé spécialement celui de $^3\text{He}/2\times\text{HD}/\text{Gr}$ à partir des données d'Ikegami et al. [40] 2000. En effet, la façon dont les auteurs tirent eux-mêmes ces paramètres nous paraît trop restrictive¹⁷.

La première remarque évidente est que les échanges multiples sont d'autant plus faibles que la densité $\rho_{\frac{4}{7}}$ est plus grande, conformément à ce qui est discuté en section 7.8.

Une analyse plus poussée nous demande de nous intéresser aux trois paramètres normés qui pilotent la physique de ces systèmes : J_2^{eff}/J_4 , J_5/J_4 et J_6/J_4 . Nous les donnons dans le tableau 8.2. Les similitudes entre ces coefficients nous montrent à quel point ces systèmes se ressemblent, ce qui de surcroît (du moins pour les hautes températures) semble valider

¹⁶Cet ajustement est tiré d'une analyse de Roger, réalisée sur l'ensemble des données de Grenoble sur $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$. En effet, la présence de la première couche paramagnétique et de la contribution liquide rend l'extraction de l'information sur la seconde couche solide difficile. Cette étude soignée, fonction du taux de couverture, permet de séparer ces signaux.

¹⁷Pour faciliter la convergence, les auteurs imposent $J_4 = J_6$, $J_5 = 0,35 J_4$ ainsi que la valeur expérimentale de J_C^{eff} du groupe de Londres (Casey et al. [95] 1998). Nous présumons qu'il s'agit de $J_C^{\text{eff}} = 6,0$ mK. Ainsi, seul J_4/J_2^{eff} est un paramètre ajustable. De plus, la publication présente MT/C après soustraction d'une contribution attribuée aux spins localisés; la constante de Curie C que nous obtenons est 4,5 % plus faible que la leur. Ils trouvent $J_2^{\text{eff}} = 8,10$ mK et $J_4 = 5,40$ mK. Néanmoins, nous confirmons leurs valeurs à 10 % près, sauf pour J_6 que nous réévaluons à la baisse.

Echange	$^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$	$^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$	$^3\text{He}/2\times\text{HD}/\text{Gr}$
J_2^{eff}/J_4	2,00	1,67	1,39
J_5/J_4	0,32	0,34	0,37
J_6/J_4	0,89	0,83	0,78

TAB. 8.2: Liste des trois échanges normés qui définissent les propriétés physiques des phases $\frac{4}{7}$. Ces valeurs sont estimées à $\pm 10\%$, légèrement plus pour le rapport J_5/J_4 . Nous remarquons de fortes similitudes entre les différents systèmes. Comparés aux résultats de Misguich et al. [71] 1998 et Misguich [203] 1999, ils correspondent tous à un état fondamental " liquide de spins ", très proche de la transition vers le ferromagnétisme.

les différents résultats, obtenus par différents groupes, utilisant différentes techniques et différent substrats (les différents champs magnétiques sont tous dans la limite des champs faibles, démontrée par notre analyse). Nous voyons cependant une évolution monotone des amplitudes d'échange relatives avec la densité. Mais grossièrement, seule l'échelle d'énergie globale change. Nous l'interprétons comme une marque de la structure du réseau sur les échanges cycliques J_i . Notons que ces données sont très inférieures aux valeurs tirées de l'extrapolation vers les basses densités des échanges J_i obtenus dans le régime ferromagnétique incommensurable (Bäuerle et al. [60] 2000, Roger et al. [61] 1998), ce qui, à nouveau, montre l'importance de la corrugation du substrat.

Comparons ces valeurs aux résultats théoriques de Misguich et al. [71] 1998 et Misguich [203] 1999. Ces systèmes correspondent tous à un état fondamental " liquide de spins ", très proche de la transition vers le ferromagnétisme. La caractéristique première de cet état fondamental est que les corrélations spin-spin $\langle \vec{S}_i \vec{S}_j \rangle$ sont très faibles, et décroissent extrêmement rapidement avec la distance entre i et j . C'est pourquoi on parle souvent dans la littérature de " phase désordonnée ". Cependant, remarquons qu'il peut exister dans cette phase un ordre plus complexe que les structures standard (section 8.1, fig. 8.1). On peut tenter de le mettre théoriquement en évidence à l'aide de fonctions de corrélation plus complexes, à quatre spins (caractéristique de " plaquettes ") par exemple. La nature exacte du fondamental reste une question ouverte. Les analyses en diagonalisation exacte (Misguich [203] 1999) montrent qu'un faible $J_4 = 0,10 J_2^{\text{eff}}$ est suffisant pour déstabiliser l'ordre de Néel de l'Hamiltonien de Heisenberg antiferromagnétique sur réseau triangulaire. Son effet est de repousser plus haut dans le spectre énergétique l'ensemble des états qui, à la limite thermodynamique auraient dû constituer en son absence le fondamental de Néel. C'est pourquoi pour le " liquide de spins " la densité d'états est

élevée à basse énergie, au-dessus du fondamental. Ce point est mis en évidence dans les mesures de chaleur spécifique. Déjà Greywall et al. [38] en 1989 suggèrent qu'une fraction anormalement grande de la chaleur spécifique pourrait se trouver au-dessous de $T \sim J_C^{eff}$, donnant lieu à un nouveau pic de chaleur spécifique, encore non observé. Ce pic est mesuré par Ishida et al. [96] 1997 sur $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$. La structure obtenue en double-bosse est reproduite par l'Hamiltonien d'échange multiple dans une grande plage de paramètres J_i (Misguich [203] 1999, et originellement Roger [59] 1990).

Les premiers états excités sont de spin $S = 1$, et séparés du fondamental par un gap Δ . L'évaluation théorique de ce gap est un véritable défi, et la seule chose qui semble claire à l'heure actuelle est qu'il est piloté par J_4 principalement, et qu'il tend à s'annuler à la frontière avec le ferromagnétisme (Misguich [203] 1999).

La nature de ces excitations magnétiques, entre autres leur relation de dispersion $\mathcal{E}(\vec{k})$, est également une question difficile d'importance. Du fait des propriétés du fondamental, l'énergie $\mathcal{E}(\vec{k})$ au-dessus du gap semble s'annuler sur une couronne de la première zone de Brillouin, grossièrement de rayon k_0 moitié du rayon k_{max} de cette zone (Misguich [203] 1999).

Nous proposons d'essayer de bâtir une approche semi-empirique, à base de ces remarques, pour rendre compte de l'aimantation basse température. Entre autres, nous cherchons à expliquer la forme de la susceptibilité multipliée par la température χT de l'encart en fig. 8.9, qui suggère un gap de spin de $\Delta \approx 100 \mu\text{K}$.

Nous utilisons la démarche du calcul de l'aimantation en ondes de spin, obtenue pour les ordres standard. Le fondamental n'étant que deux fois dégénéré (Lhuillier [97]), nous supposons qu'il n'existe que deux types d'excitations de spin $S = 1$, de projections $\sigma = +1$ et $\sigma = -1$, l'axe de quantification étant simplement la direction du champ magnétique $\vec{B}$. Nous choisissons donc une relation de dispersion pour nos excitations basse énergie, que nous supposons être des Bosons ($S=1$), du type :

$$\mathcal{E}(\vec{k})_{\sigma=\pm 1} = \Delta + J^{excité} k_B S (|\vec{k}| - k_0) d^n - g_N \mu_N \sigma |\vec{B}|$$

où l'on a reproduit les conventions utilisées pour les fondamentaux standard. Le paramètre n correspond en quelque sorte à l'ordre de ces excitations, et $J^{excité}$ est une constante de couplage effective, qui comme Δ dépend des échanges cycliques J_i . Les autres constantes ont déjà été définies. Cette relation, qui pourrait choquer au premier abord, rappelle les résultats de Momoi et al. [98] 1999 obtenus en ondes de spin sur la phase uuud (fig. 8.1). Le calcul nous amène alors à écrire l'aimantation basse température sous la forme :

$$M(T) = \mathcal{A} \frac{C}{T} \left(\frac{T}{J^{excité} S} \right)^{1/n} e^{-\frac{\Delta}{T}}$$

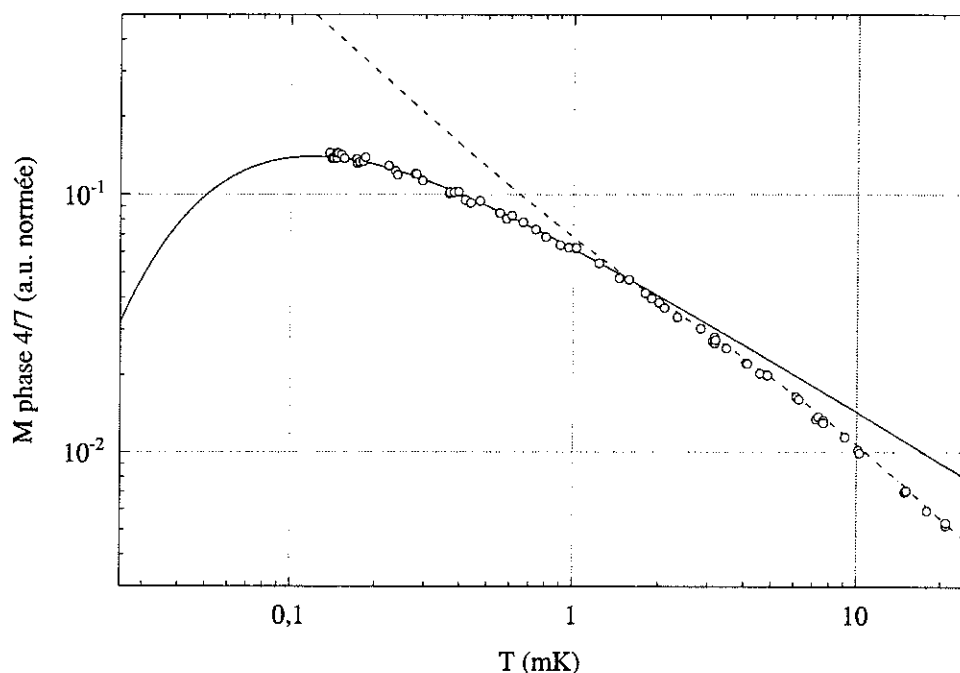


FIG. 8.13: Approche basse température semi-empirique appliquée à nos données. A l'aide d'une expression " raisonnable " de la relation de dispersion $\mathcal{E}(\vec{k})$ des excitations de basse énergie, nous obtenons une expression simplifiée de l'aimantation du système (voir texte). L'ajustement haute température est également reproduit sur ce graphique, pour mémoire.

Cette expression est représentée sur nos données en fig. 8.13. Les paramètres employés sont ici $\Delta = 80 \mu\text{K}$, $n = 3$ et $\mathcal{A}/(J^{\text{excité}}S)^{1/n} = 0,60 \text{ mK}^{-1/3}$.

Le point à retenir est qu'une telle démarche, malgré son manque de rigueur et son caractère hautement spéculatif, permet de rendre compte de la dépendance presque exponentielle de la susceptibilité multipliée par la température χT . Au moins pouvons-nous donner des limites à certains paramètres, comme la borne supérieure de $100 \mu\text{K}$ au gap de spin Δ .

Ce gap, s'il existe, est visiblement extrêmement faible. Au demeurant, seules nos mesures semblent le mettre en évidence. L'analyse d'Ikegami et al. [40] 2000 sur $^3\text{He}/2\times\text{HD}/\text{Gr}$ consiste à soustraire pour différents taux de couverture une contribution de " solide vitreux ". Nous avons déjà présenté les défauts de ce modèle, et nous ne serions pas étonnés qu'il donne lieu à certains artefacts numériques aux plus basses températures. De plus, les récents travaux de Masutomi et al. [99] 2001 consistent à ajouter de l' ^4He à l' $^3\text{He}/3\times\text{HD}/\text{Gr}$, l'idée étant encore une fois de supprimer les atomes fortement localisés. Aucun effet n'a été observé, ce qui peut être interprété (contrairement à l'analyse des auteurs) en disant que certains atomes d' ^3He piégés sur ce substrat ne peuvent jamais en être retirés. Il est d'ailleurs fort probable que les couches d'HD sont de qualité bien moins bonnes que celles d'Hélium, du fait de la taille des molécules (Godfrin [88]).

Nous espérons que des mesures à plus basses températures, et de nouveaux développements théoriques, permettront de clarifier la situation.

8.4 " Nanoclusters " ferromagnétiques dans l' ^3He -2D solide

La compression de la seconde couche solide (environ 21 % continûment) s'accompagne de l'apparition du ferromagnétisme (sous-section 8.2.2). Alors que le taux de couverture ρ_{total} augmente, le système, comme pour $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ et $^3\text{He}/2\times\text{HD}/\text{Gr}$, passe par une " anomalie ferromagnétique ". La particularité est qu'ici la quantité d'atomes d' ^3He dans la phase solide diminue au cours de la compression.

Au voisinage de cette " anomalie ferromagnétique ", nous obtenons aux plus basses températures une structure en double-pic dans les raies de résonance RMN (taux 9,1508 cc-STP, fig. 8.14). Ceci est la signature que les spins nucléaires se trouvent dans deux environnements différents et découplés.

Etudions de plus près cette forme de raie. Nous avons un premier pic décalé et distordu,

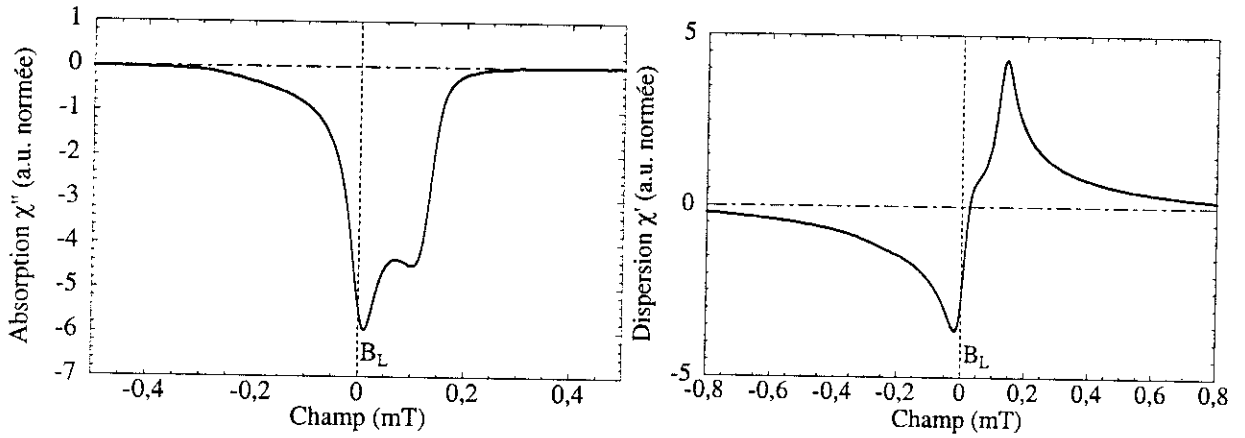


FIG. 8.14: Raie de RMN continue obtenue à $147\ \mu\text{K}$ pour le taux de couverture 9,1508 ccSTP, proche de " l'anomalie ferromagnétique " dans $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$. Le signal en absorption est appelé χ'' , et le signal en dispersion χ' ; tous deux sont normalisés à l'aire de la raie d'absorption. Nous distinguons une structure en double pic, signature de la présence de deux ensembles de spins distincts. La ligne pointillée verticale représente le champ de Larmor B_L , tel qu'il est mesuré par la position de la raie unique obtenue vers 10 mK.

sur lequel s'ajoute un petit pic étroit. Nous pouvons les résoudre en ajustant empiriquement¹⁸ une ligne de base en polynôme de degré cinq sous le petit pic. Le résultat de cette procédure est montré en fig. 8.15.

¹⁸Malheureusement, malgré le travail présenté en section 4.3 sur la forme des raies de RMN, il n'existe pas à l'heure actuelle de description exacte plus performante que cette procédure empirique.

Nous obtenons une raie fortement décalée par rapport au champ de Larmor B_L , très large et asymétrique. Cette forme est caractéristique pour l' ^3He -2D d'une assemblée solide de spins ferromagnétiques très polarisés (effet du champ dipolaire, voir la section 4.3). Le second pic est lui très proche du champ de Larmor (nous revenons sur ce point dans la suite), étroit et symétrique. Il est caractéristique d'une contribution solide (presque paramagnétique) où la polarisation est faible.

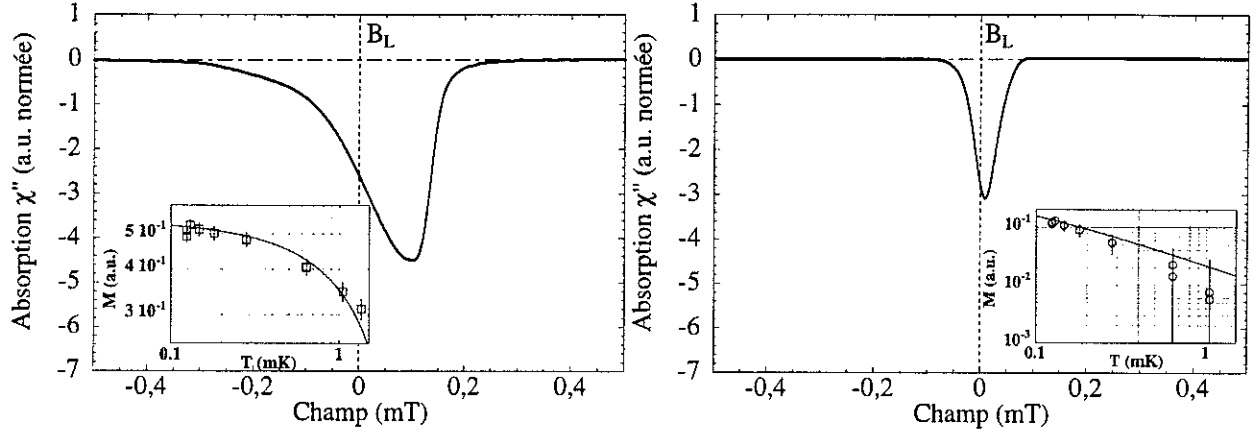


FIG. 8.15: Résolution des deux contributions présentes sur l'absorption χ'' du pic de résonance RMN de la fig. 8.14 ($147 \mu\text{K}$, $9,1508 \text{ ccSTP}$). A gauche, une contribution importante de forme très asymétrique, caractéristique d'une assemblée de spins fortement polarisée. A droite, une raie très symétrique, obtenue typiquement pour les solides peu polarisés. La ligne pointillée verticale représente le champ de Larmor B_L , position mesurée par la raie unique obtenue vers 10 mK . Les encarts de chacune de ces images représentent l'aimantation obtenue par intégration de ces raies résolues à différentes températures. Les barres d'erreur correspondent à $\pm 0,02$ unités arbitraires d'aimantation. Encart de gauche, ferromagnétisme : nous obtenons une aimantation d'évolution très lente. La ligne pleine correspond à un ajustement en ondes de spin commenté en sous-section 8.4.1. Encart de droite, quasi-paramagnétisme : l'aimantation, dans les barres d'erreur est presque paramagnétique. Nous ajustons (ligne pleine) la borne supérieure de ces barres d'erreur par : $M(T) = \frac{n_{\text{para}}}{n_{\text{total}}} C / (T - 3 J_{\chi}^{\text{eff}})$ avec $n_{\text{para}} = 0,607 \text{ ccSTP}$ et $J_{\chi}^{\text{eff}} = -0,015 \text{ mK}$.

Si nous procédons de même pour toutes les températures où les deux contributions peuvent être résolues (au-dessous de 1 mK), nous pouvons en intégrant chaque raie séparément remonter à l'aimantation $M(T)$ de chacun de ces sites. C'est ce que nous illustrons dans les encarts de la fig. 8.15, respectivement pour chaque pic. Les barres d'erreur mentionnées correspondent à $\pm 0,02$ unités arbitraires d'aimantation et marquent la limite de la procédure empirique utilisée.

Nous obtenons effectivement une aimantation typiquement ferromagnétique pour le pic asymétrique, c'est-à-dire évoluant très lentement et tendant vers une valeur finie à $T = 0$. La ligne pleine représente un ajustement en ondes de spin, sur lequel nous revenons dans la suite.

Le pic étroit possède une aimantation presque paramagnétique. Notre procédure empirique n'est visiblement pas optimale, et nous nous bornons à ajuster le haut des barres d'erreur

par une loi de Curie-Weiss.

Cette analyse apporte : $n_{para} = 0,607$ ccSTP atomes quasi-paramagnétiques, avec $J_x^{Heis} = -0,015$ mK. Connaissant la quantité d'atomes totale $n_{total} = 2,9731$ ccSTP et la quantité d'atomes promus dans le liquide $n_{liquide} = 2,0217$ ccSTP, nous déduisons facilement $n_{ferro} = 0,3444$ ccSTP pour le pic ferromagnétique. Nous revenons plus avant en sous-section 8.4.1 sur l'ajustement de nos données.

En toute rigueur, il faut mentionner que l'un des pics ainsi résolus contient la contribution du liquide présent en troisième couche. Son aimantation représente environ 2 % de l'aimantation du solide quasi-paramagnétique à 1 mK, ce qui nous autorise à l'oublier lors de la présente discussion.

Le pic asymétrique se déforme et s'élargit fortement avec la température, alors que le pic fin évolue plus faiblement. En effet, la polarisation maximale qu'atteint cet ensemble de spins presque paramagnétiques, obtenu par l'ajustement du nombre d'atomes n_{para} qu'il contient, n'est que de l'ordre de 16 % à 130 μ K. Ceci reste faible, et le champ dipolaire en résultant n'a qu'une influence modeste sur la forme de raie (faible élargissement et décalage de l'ordre de $5 \cdot 10^{-3}$ mT, voir fig. 8.16). Nous revoyons à la discussion de la section 4.3 pour de plus amples explications sur ce point.

Nous pouvons nous demander pourquoi cette contribution quasi-paramagnétique n'a jamais été rapportée dans les précédentes publications. Les raisons sont multiples :

- Sur $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$, le signal paramagnétique de la première couche solide donne un pic énorme placé tout à côté du champ de Larmor B_L . Il rend impossible la résolution de tout pic situé au même endroit du spectre. Il faut donc nécessairement travailler sur $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$.
- Si le champ magnétique n'est pas assez homogène, il est impossible de distinguer la structure fine résultant de la polarisation du film. L'expérimentateur ne mesure qu'une seule raie à peu près symétrique, dont la largeur est caractéristique de l'inhomogénéité du champ ; c'est la largeur inhomogène (chapitre 4). Dans notre expérience, la qualité des bobines de champ et de l'environnement magnétique nous permet d'obtenir des raies de résonance d'une largeur δ_0 à 10 mK d'environ 0,015 mT.
- Pour espérer résoudre deux contributions solides différentes, encore faut-il que les proportions d'atomes dans l'un et l'autre site magnétique soient favorables. D'autant plus que l'une des assemblée de spins exhibe des propriétés ferromagnétiques (alors que l'autre est légèrement antiferromagnétique), et pourrait donc tout simplement dominer le signal. Notre cas est presque à cet égard un cas idéal, étant donné que nous avons un nombre comparable de spins dans les deux ensembles, avec 70 % d'atomes

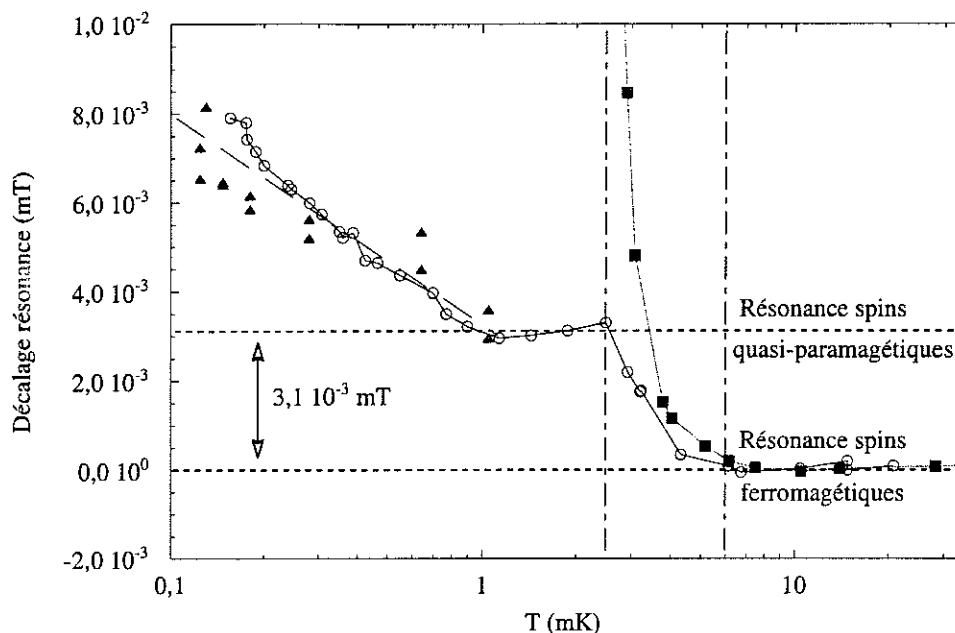


FIG. 8.16: Positions, en fonction de la température, du minimum de la raie d'absorption χ'' , pour le pic ferromagnétique (■) et le pic quasi-paramagnétique (▲) obtenues sur le taux de couverture 9,1508 ccSTP. Les symboles O indiquent la position du minimum de la raie unique obtenue pour 9,5413 ccSTP. Elle correspond au passage du pic ferromagnétique au pic presque paramagnétique, du fait de l'évolution des propriétés du système décrites en fig. 8.17 (entre 2,5 mK et 6 mK, lignes verticales tiretées).

de plus précisément dans le groupe d'aimantation le plus faible.

Aussi, dans notre propre expérience, les conditions favorables à la distinction des deux pics ne sont remplies que pour ce taux de couverture de 9,1508 ccSTP. Pour toutes les autres mesures, les différentes contributions solide et liquide se superposent en une seule raie de résonance. Nous n'obtenons qu'une seule raie RMN également lors de notre étude du " liquide de spins " (section 8.3).

En revanche, nous avons remarqué ci-dessus que cette nouvelle contribution au signal magnétique ne résonnait pas tout à fait au champ de Larmor B_L tel qu'il est mesuré à 10 mK, lorsque tous les signaux magnétiques ne forment qu'une seule raie, symétrique, de largeur δ_0 .

Aussi, pour nous convaincre de la présence de deux assemblée de spins, même lorsqu'on ne peut résoudre deux pics à l'œil, il est possible de mesurer simplement la position du minimum de la raie de résonance en fonction de la température. Si la hauteur de l'un des pics d'absorption χ'' vient à surpasser l'autre, nous devrions obtenir une anomalie dans cette courbe. Cette méthode est une illustration de la sensibilité de la RMN aux champs magnétiques locaux.

Nous montrons un tel résultat en fig. 8.16 pour le taux de couverture 9,5413 ccSTP. Sur ce graphique, nous rappelons également les positions, mesurée par le minimum les raies d'absorption χ'' , des pics quasi-paramagnétique et ferromagnétique du taux 9,1508 ccSTP déjà commenté.

Nous notons effectivement une anomalie dans la fréquence de résonance entre 2,5 mK et 6 mK environ, qui indique un décalage de l'ordre de $3 \cdot 10^{-3}$ mT entre les champs de Larmor des deux assemblée d'atomes. Elle correspond clairement au passage du pic ferromagnétique au pic quasi-paramagnétique tels qu'ils sont mesurés pour 9,1508 ccSTP. De plus, la raie unique se décale légèrement et progressivement alors que la température diminue, conformément à la faible polarisation des spins presque paramagnétiques.

En effet, la hauteur H d'un pic d'absorption est relié grossièrement à son aimantation M (son aire), via $H \propto M/\delta$, où δ est la largeur du pic à mi-hauteur (chapitre 4). Le fort décalage de la raie ferromagnétique, dû au champ dipolaire, s'accompagne comme nous l'avons déjà remarqué ci-dessus d'un élargissement comparable du pic. Ainsi, au-dessous de quelques mK, la contribution de ce groupe de spins est "étalée" dans le spectre RMN, et pour les proportions n_{para}/n_{ferro} du taux de couverture 9,5413 ccSTP, nous ne localisons plus que le pic dû aux spins presque paramagnétiques.

Cette argumentation est étayée par l'analyse chiffrée que nous effectuons dans la sous-section 8.4.1 suivante. En fig. 8.17, nous donnons l'évolution, en fonction de la température, de la largeur de raie δ du pic ferromagnétique résolu pour le taux de couverture de 9,1508 ccSTP, normée à la largeur du pic unique δ_0 obtenu vers 10 mK (ici 0,017 mT). Sur le même graphique, nous représentons le rapport $(M_{ferro}(T) + M_{liquide}(T))/M_{para}(T)$ que nous déduisons pour le taux 9,5413 ccSTP. Clairement, on s'aperçoit que l'aimantation des spins ferromagnétiques devient prépondérante au-dessous de 6 mK, mais que la largeur de raie dipolaire vient contre-balancer cette prédominance pour les températures inférieures à 2,5 mK. Au-dessus de quelques mK, toutes les contributions se superposent au liquide en une raie unique.

Cette analyse précise des raies de résonance nous montre la présence de ces deux types de spins, pour au moins deux taux de couverture (9,1508 ccSTP et 9,5413 ccSTP). Non seulement les atomes quasi-paramagnétiques sont dans un environnement différent de celui des ^3He ferromagnétiques, puisqu'ils n'ont pas les mêmes propriétés physiques, mais de surcroît leur champ local est différent puisqu'ils ne résonnent pas exactement au même champ de Larmor B_L . Notons qu'ils sont également insensibles au fort champ dipolaire rayonné par les atomes ferromagnétiques.

Force est donc de conclure qu'ils ne sont pas situés au même endroit de l'espace : ces spins

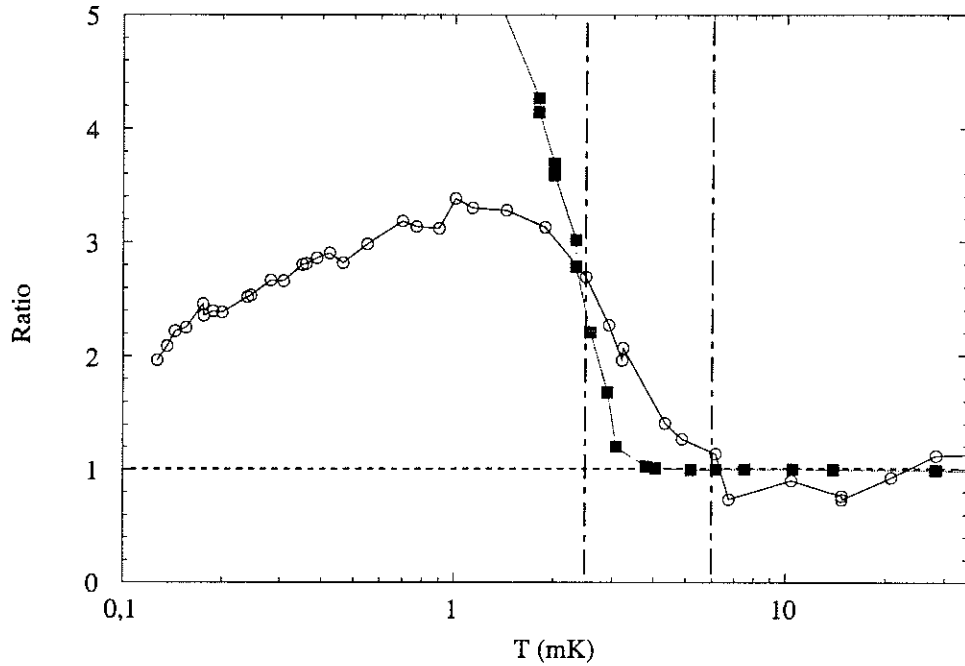


FIG. 8.17: Paramètres pilotant la hauteur H relative des deux pics de résonance χ'' (ferromagnétique et quasi-paramagnétique), en fonction de la température. Les $\blacksquare$ représentent la largeur de raie δ du pic ferromagnétique à 9,1508 ccSTP, normalisée à la largeur obtenue à 10 mK (δ/δ_0 , avec $\delta_0 = 0,017$ mT). Les $\circ$ sont le rapport $(M_{\text{ferro}}(T) + M_{\text{liquide}}(T))/M_{\text{para}}(T)$ tel qu'il est déduit, pour 9,5413 ccSTP, de l'analyse qui poursuit cette section (sous-section suivante 8.4.1). Au-dessous de 6 mK environ, l'aimantation des spins ferromagnétiques devient prépondérante, mais l'élargissement de la raie par le champ dipolaire contrebalance cet effet pour les températures inférieures à 2,5 mK. Au-dessus de quelques mK, la contribution du liquide masque complètement le solide.

presque paramagnétiques se trouvent loin du groupe ferromagnétique. Nous revenons sur ce point dans la suite.

Nous pouvons également nous convaincre de la présence d'atomes ferromagnétiques à différents taux de couverture, en étudiant le décalage maximal de la raie de résonance χ'' obtenue à 120 μ K (fig. 8.18). Dans le régime antiferromagnétique, ce décalage est fixé par la polarisation de la phase $\frac{4}{7}$, et nous obtenons sur toute la gamme environ $3 \cdot 10^{-3}$ mT. Dès 8,0430 ccSTP, ce chiffre passe à $8 \cdot 10^{-3}$ mT environ, marquant la densification de la couche solide et l'augmentation de la polarisation du film. A nouveau, nous justifions l'exclusion en sous-section 8.2.2 du taux 8,0430 ccSTP du régime antiferromagnétique, et son affiliation à l'apparition du ferromagnétisme. En revanche, les deux derniers taux de couverture (10,103 ccSTP et 10,651 ccSTP), marquent un décalage du même ordre que celui du régime antiferromagnétique, typique des systèmes peu polarisés. Dans cette gamme, la contribution ferromagnétique, si elle existe, est visiblement masquée par les spins quasi-paramagnétiques, conformément à la discussion ci-dessus.

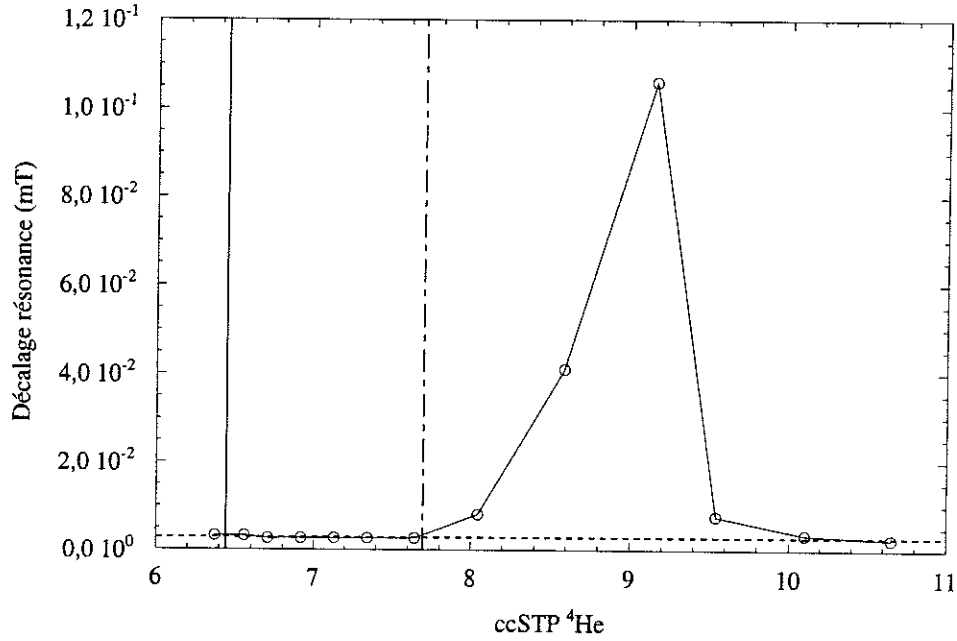


FIG. 8.18: Position du minimum de la raie de résonance χ'' obtenue en absorption RMN à 130 μK , en fonction du taux de couverture en ccSTP. Le zéro correspond au champ de Larmor B_L . La gamme où la contribution ferromagnétique au signal est dominante se distingue clairement par de forts décalages (maximum de l'ordre de 0,11 mT, à comparer aux $3 \cdot 10^{-3}$ mT des régimes peu polarisés). Les lignes verticales pleines et tiretées correspondent respectivement à la fin de la coexistence liquide-solide en seconde couche, et à la densification du solide présentés en sous-section 8.2.2.

8.4.1 Interprétations ; coexistence de phases

Pour le taux de couverture 9,1508 ccSTP, nous avons pu résoudre en section précédente la contribution ferromagnétique au signal RMN. Nous présentons en fig. 8.19 son aimantation $M(T)$ normalisée au nombre de spins n_{ferro} (0,3444 ccSTP), jusqu'à 80 mK. La ligne pleine correspond à un ajustement $\text{Heis}(J_{\chi}^{\text{Heis}}, T)$ haute température, avec $J_{\chi}^{\text{Heis}} = 2,05 \text{ mK}$. En toute rigueur, ces résultats sont obtenus en ajustant l'aimantation des atomes presque paramagnétiques comme décrit dans la section précédente, et en soustrayant cet ajustement à l'aimantation totale¹⁹.

L'ajustement basse température de la fig. 8.19 (traits pointillés) correspond à l'expression de l'aimantation $M(T)$ calculée en ondes de spin (Godfrin et al. [100] 1988, Kopietz et al. [101] 1989). La relation de dispersion des excitations basse énergie est donnée pour les grandes longueurs d'onde (faible $|\vec{k}|$) par :

$$\mathcal{E}(\vec{k})_{\sigma=-1} = 3|J^{\text{Heis}}| k_B S |\vec{k} d|^2 - g_N \mu_N \sigma |\vec{B}|$$

¹⁹Il est clair que les résultats obtenus ici dépendent directement de la façon dont nous avons ajusté l'aimantation $M(T)$ des atomes presque paramagnétiques. L'important est avant tout la cohérence de cette analyse, le développement plus poussé qui prolonge cette section donnant des résultats identiques à cette approche préliminaire.

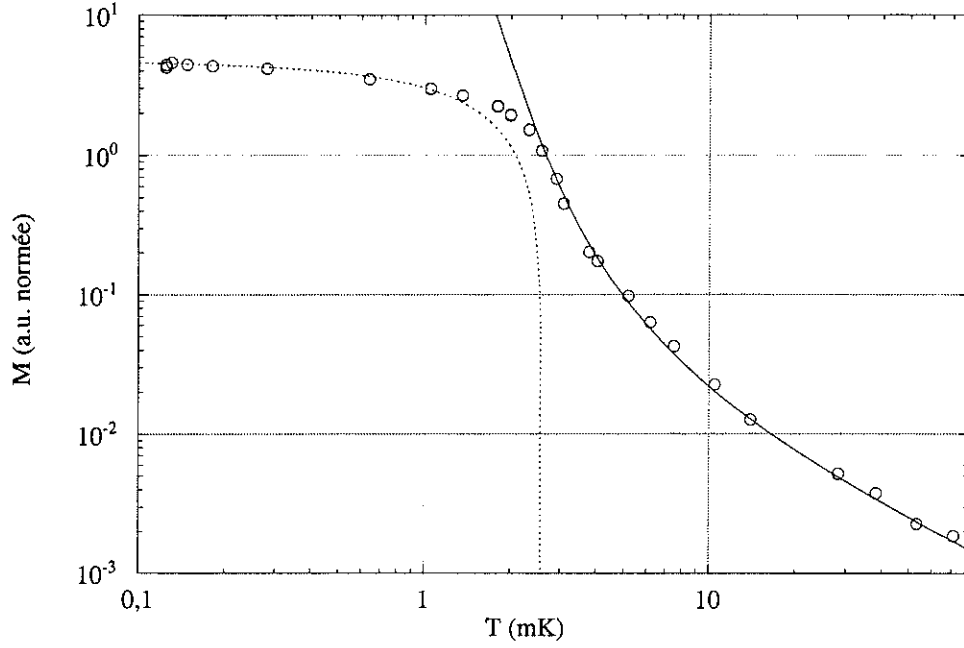


FIG. 8.19: Aimantation $M(T)$ obtenue pour l'assemblée d'atomes ferromagnétiques du taux de couverture 9,1508 ccSTP, normalisée au nombre de spins n_{ferro} (0,3444 ccSTP). Cette courbe correspond aux données de l'encart gauche de la fig. 8.15. La ligne pleine est un ajustement haute température $Heis(J_\chi^{Heis}, T)$. A basse température, nous ajustons les données à l'aide de l'expression obtenue par l'approche en ondes de spin (ligne pointillée, voir texte). L'aimantation à saturation obtenue à basse température correspond à la constante de Curie haute température C , contrairement aux précédents travaux sur l' ^3He -2D solide ferromagnétique (Godfrin et al. [100] 1988, Schiffer et al. [87] 1994). Les paramètres tirés des ajustements sont : C et $|\vec{B}|$ étant connus (respectivement 0,111 Volt²mK et 30,51 mT), $J_\chi^{Heis} = 2,05$ mK, $M_{sat} = 4,682$ Volt², et $N = 120$ spins pour la taille effective. Ces résultats sont commentés plus avant dans la suite de notre analyse.

où les constantes ont déjà été définies. Ces excitations sont des Bosons, d'un seul type $\sigma = -1$. L'aimantation²⁰ s'écrit alors :

$$M(T) = M_{sat} \left[1 - \left\{ \frac{T_0 + \frac{1}{S}T_m}{8\pi\sqrt{3}S^2J^{Heis}} \left(1 - \frac{T}{T_0 + \frac{1}{S}T_m} \ln(e^{\frac{T_0 + \frac{1}{S}T_m}{T}} - 1) \right) + \frac{1}{NS} \frac{1}{e^{\frac{1}{S}\frac{T_m}{T}} - 1} \right\} \right] \quad (8.3)$$

avec :

$$T_m = \frac{|g_N\mu_N S| |\vec{B}|}{k_B}$$

$$T_0 = \frac{16\pi^2 S J^{Heis}}{N}$$

En toute rigueur, cette écriture suppose que le système se constitue de groupements hexagonaux disjoints d'atomes, de même taille N . Pour nous, N sera donc un nombre de spins

²⁰L'expression de Godfrin et al. [100] 1988 se différencie de celle de Kopietz et al. [101] 1989 par le magnon $\vec{k} = \vec{0}$ que ces auteurs négligent (dans leurs conditions de champ), et le préfacteur numérique global $(T_0 + \frac{1}{S}T_m)/(8\pi\sqrt{3}S^2J^{Heis})$. Notons également que dans leur papier, Kopietz et al. [101] 1989 font dans ce préfacteur l'hypothèse $S = 1/2$. Nous rétablissons ici l'expression la plus générale.

effectif par groupe ferromagnétique, l'aimantation de l'assemblée totale étant la superposition des signaux de ces groupes. Nous revenons sur ce point dans la suite.

M_{sat} représente l'aimantation à saturation de la totalité de ces atomes d' ^3He ferromagnétiques. Dans le cas des spins $S = 1/2$, nous avons simplement :

$$M_{sat} = C/T_m \quad (8.4)$$

avec C la constante de Curie. Le point fondamental à retenir est que l'aimantation à saturation M_{sat} obtenue par notre ajustement correspond exactement à celle déduite par la formule (8.4) de la constante de Curie (c'est-à-dire du nombre de spins n_{ferro}) tirée des hautes températures¹⁹. Le champ magnétique $|\vec{B}|$ étant connu très précisément (30,51 mT), et J^{Heis} étant obtenu par le biais du J_x^{Heis} ajusté à haute température, le seul paramètre ajustable restant, dans cette expression basse température, est le nombre de spins effectif N . Nous obtenons $N = 120$ spins, valeur discutée dans la suite.

Cet accord entre aimantation haute température et aimantation basse température n'a jamais été rapporté précédemment. Les mesures de Schiffer et al. [87] 1994 sur $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ montrent au contraire une évolution constante du nombre de spins dans la phase ferromagnétique, défini par l'aimantation à saturation²¹ M_{sat} , qui suggère aux auteurs une coexistence de phases dans l' ^3He -2D. Cette hypothèse est reprise par Bozler et al. [104] 2000 sur la base de leurs propres mesures.

La résolution de la contribution quasi-paramagnétique confirme définitivement la présence de deux assemblées de spins, du moins pour l'un de nos taux de couverture (9,1508 ccSTP) sur $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Gr}$. L'ensemble de l'étude de la forme de raie réalisée en section précédente, confrontée aux résultats de Schiffer et al. [87] 1994, suggère fortement qu'il doit en être de même dans toute la gamme que nous nommons " ferromagnétisme ".

Selon Misguich [203] 1999, l'Hamiltonien d'échange multiple à faible champ magnétique et dans la gamme de paramètres J_i propre à l' ^3He -2D ne peut donner lieu qu'à une phase antiferromagnétique de type " liquide de spins " vérifiant $S_{total} = 0$ à $T = 0$, ou bien à une phase ferromagnétique complètement polarisée avec $S_{total} = N/2$ à $T = 0$.

Nous nous proposons donc d'analyser l'ensemble de nos résultats sur le modèle de Schiffer et al. [87] 1994, en prenant pour mesure du nombre n_{ferro} de spins ferromagnétiques, pour chaque taux de couverture, l'aimantation à saturation M_{sat} que l'on peut extrapoler d'une analyse en ondes de spin²². Le nombre d'atomes dans l'assemblée solide est lui donné par

²¹Notons que bien que Schiffer et al. [87] 1994 mesurent clairement une évolution de ce paramètre en fonction du taux de couverture, leurs données haute température sont assez contestables (perte de résolution vers 3,5 mK, nous revenons sur ce point dans la suite), et la valeur obtenue pour leur constante de Curie C peut être discutée.

²²Nous n'utilisons donc plus, dans la suite de notre analyse, l'ajustement des sites presque paramagnétiques tel qu'il a été proposé en introduction de cette étude.

l'ajustement déjà réalisé du liquide (n_{liquide}) à haute température.

Au-delà de " l'anomalie ferromagnétique ", ce scénario implique la phase ferromagnétique et le groupe de spins presque paramagnétiques, dont nous décrivons encore l'aimantation par une loi de Curie-Weiss $C/(T - 3J_{\chi}^{\text{eff}})$. Au-dessous de cette anomalie, l'analyse la plus simple consiste à considérer que la phase ferromagnétique coexiste avec la phase $\frac{4}{7}$, dont la stabilité a déjà été démontrée (sous-section 8.2.2), sans interaction particulière entre elles, comme pour le cas des coexistences liquide-solide déjà connues de l' ^3He -2D. Empiriquement, nous utilisons l'ajustement en double Curie-Weiss présenté en section 8.3 précédente pour décrire l'aimantation de la phase " liquide de spins ", et nous négligeons tout effet de taille finie qui pourrait venir modifier cette loi. Dans cette zone, nous supposons simplement qu'il n'y a pas encore d'atomes quasi-paramagnétiques. Seul dans le voisinage immédiat de " l'anomalie ferromagnétique ", il se peut que les trois populations de spins soient simultanément présentes. Ces spins quasi-paramagnétiques semblent de prime abord assez mystérieux, et ne pas s'insérer dans la description du système faite par l'Hamiltonien d'échange multiple. Nous justifions cependant notre approche dans la suite.

Les paramètres obtenus par cette démarche sont fournis en fig. 8.20. Sur ce graphique, nous avons reporté pour mémoire les quantités de liquide n_{liquide} . Les droites sont de " grossiers " ajustements linéaires, réalisés sur le modèle des fig. 8.3 et 8.8.

Commentons cette figure. En premier lieu, la densification de 21 % de la seconde couche solide s'accompagne de la disparition progressive de la phase commensurable $\frac{4}{7}$ (quantités $n_{\frac{4}{7}}$), au profit d'une phase ferromagnétique dont on peut imaginer, si le processus est réellement continu, qu'elle est incommensurable. Grossièrement, chaque atome d' ^4He ajouté remplace 1,35 atomes de la phase " liquide de spins ", dont 33 % vont dans le solide ferromagnétique et le reste dans le liquide. Au alentours de 23,9 at/nm² (soit 8,90 ccSTP), nous obtenons le nombre maximum de spins ferromagnétiques. Nous nous autorisons à appeler ce point " anomalie ferromagnétique " pour notre système.

Au-delà de l'anomalie, nous observons l'apparition des spins presque paramagnétiques. Notons que la disparition des spins ferromagnétiques se fait avec grossièrement la même pente que leur apparition, à savoir 0,33.

Aux plus forts taux de couverture, les atomes d' ^3He solides aussi bien ferromagnétiques que quasi-paramagnétiques, sont finalement promus dans le liquide.

Nous pouvons remarquer également que sur le diagramme proposé en fig. 8.20, entre le nombre maximum de spins ferromagnétiques et le nombre maximum de spins quasi-paramagnétiques, nous avons simultanément la présence de trois assemblées différentes

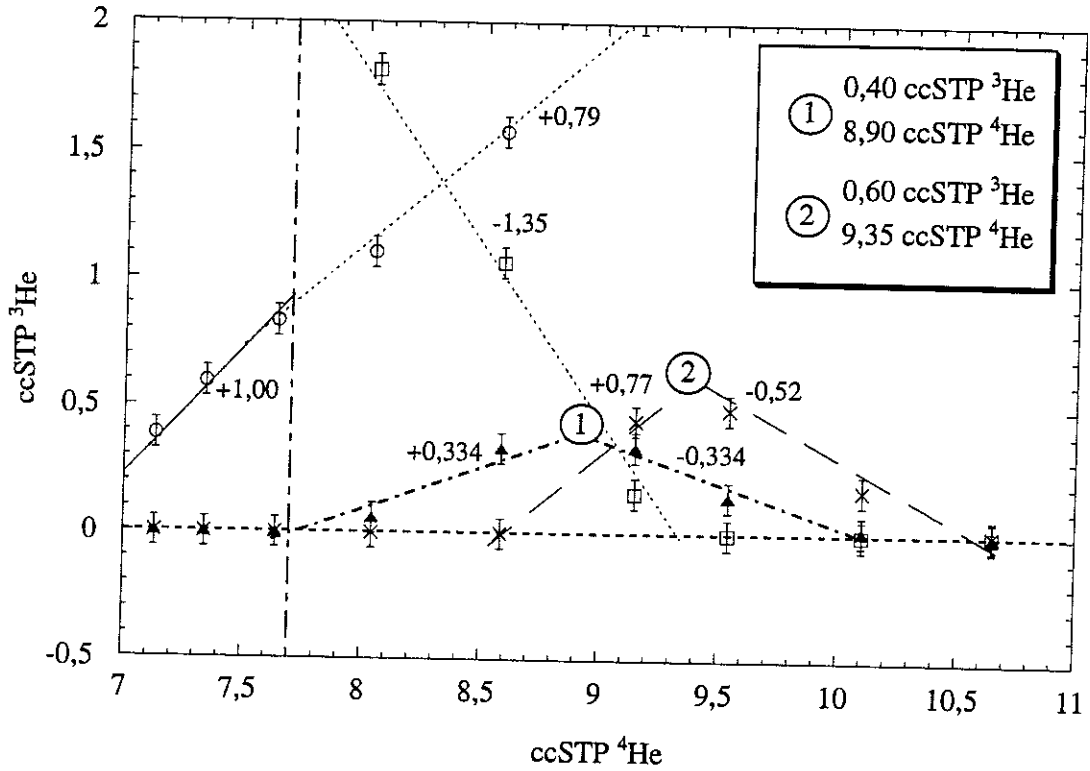


FIG. 8.20: Quantités $n_{\frac{4}{7}}$, n_{ferro} et n_{param} respectivement d'atomes dans la phase "liquide de spins" (□), dans le groupe ferromagnétique (▲) et dans l'assemblée quasi-paramagnétique (×) tirées de l'analyse proposée. La ligne tiretée verticale marque encore l'apparition du ferromagnétisme. Nous avons reporté également les quantités n_{liquide} déjà ajustées (symboles ○). Les droites pleines et pointillées sont des ajustements, plus ou moins grossiers, commentés dans le texte (les pentes sont indiquées sur le graphique). "L'anomalie ferromagnétique", définie par le maximum de n_{ferro} est indiquée par le symbole ⊕, et le maximum de sites presque paramagnétiques n_{param} par ⊙ (quantités d' ^3He et d' ^4He indiquées en encart).

(phase $\frac{4}{7}$, atomes ferromagnétiques et presque paramagnétiques).

Analysons les caractéristiques des spins quasi-paramagnétiques. Arrivé à ce stade du développement, nous pouvons émettre une conjecture, qui clarifie l'ensemble des propriétés rapportées ci-dessus.

Ces atomes presque paramagnétiques ne sont rien d'autre que des atomes d' ^3He poussés en troisième couche liquide, qui se localisent au niveau des sites de forte adsorption. La solidification, au moins partielle, de la troisième couche est étayée par les résultats présentés en section 8.5 suivante. Nous retrouvons ici, comme pour la première couche liquide (Morhard [200] 1995, Bäuerle [201] 1996), et la deuxième couche liquide (section 8.3), une coexistence entre le liquide et des atomes piégés dans les hétérogénéités de la sous-couche. En effet :

- Nous avons fait remarquer en fin de section 8.4 que l'environnement des spins presque

paramagnétiques était différent de celui des atomes ferromagnétiques, et que de surcroît ces atomes d' ^3He devaient en être spatialement éloignés. Leur positionnement en troisième couche, par exemple sur le bord des plaquettes alors que les zones ferromagnétiques pourraient se trouver en leur centre, rend compte naturellement de ce point.

- L'ajustement retenu nous fournit pour les constantes d'interaction effective J_{χ}^{eff} dans les sites quasi-paramagnétiques l'évolution suivante : $-5 \mu\text{K}$ (9,1508 ccSTP), $-17 \mu\text{K}$ (9,5413 ccSTP), $-117 \mu\text{K}$ (10,103 ccSTP) et $-117 \mu\text{K}$ (10,651 ccSTP). Ces valeurs sont en bon accord avec celles fournies en section 8.3 concernant les sites de fortes adsorption, étudiés en première et seconde couche. Leur évolution, qui pourrait être un artefact numérique²³, pourrait cependant s'expliquer par le biais d'un échange indirect avec le liquide (section 7.5), ou une évolution de leur densité.
- Tout comme pour la discussion de la section 8.3, il n'est pas possible d'exclure définitivement la présence de défauts induits dans la seconde couche solide par mélange d' ^3He au sein d' ^4He , ou l'inverse. D'autant plus que nous donnons ici une évolution continue des caractéristiques de ces spins avec le taux de couverture. Cependant, nous avons noté en section 8.4 précédente un décalage de la raie de résonance RMN attribuée à ces atomes d' ^3He , au plus basses températures, typique des solides peu polarisés. Ceci nous pousse à conclure que ces atomes paramagnétiques sont agglomérés, et forment au moins de petits agrégats capables de générer ces champs dipolaires.
- Le pic de la quantité n_{ferro} présenté en fig. 8.20 est symétrique. Ceci suggère que la localisation d'atomes dans les sites quasi-paramagnétiques n'a pas réellement d'influence sur la phase ferromagnétique. Il est alors tentant d'imaginer que ces spins ne sont pas en seconde couche. De plus, les spins presque paramagnétiques apparaissent précisément lorsque la densification de la seconde couche pousse les atomes ferromagnétiques hors de la couche. Ainsi, les nouveaux sites d' ^3He solide, en troisième couche, ne sont disponibles qu'au moment où il n'existe plus d'autres sites solides libres, en seconde couche, ce qui semble raisonnable. Ou du moins, le positionnement de ces sites en troisième couche nous permet de comprendre la présence simultanée de trois assemblée de spins distinctes dans le voisinage de " l'anomalie ferromagnétique ".
- L'apparition des spins paramagnétiques s'accompagne d'une anomalie sur le paramètre T_f^{**} . Bien qu'il soit possible de l'interpréter comme une signature de l'échange

²³Par exemple, nous avons négligé les effets de taille sur l'aimantation du " liquide de spins ". Or, précisément aux alentours de " l'anomalie ferromagnétique ", lorsque les sites quasi-paramagnétiques apparaissent, la phase $\frac{4}{3}$ occupe une place minimale. L'ajustement résultant pour les spins presque paramagnétiques pourrait en être affecté.

indirect avec le solide ferromagnétique, ou même le solide quasi-paramagnétique, il peut aussi s'agir d'un réarrangement de la troisième couche ayant une signature sur la densité du liquide ρ_{liquide} . Ce réarrangement serait dû à la solidification des atomes d' ^3He fortement localisés.

- Sur la fig. 8.20, nous obtenons un maximum pour ces sites paramagnétiques de l'ordre de 0,60 ccSTP, soit 20% d'une seconde couche solide (symbole ②). Ce chiffre rappelle très fortement les 23% de spins localisés obtenus en section 8.3. De plus, le maximum obtenu pour ces atomes localisés en seconde couche se trouvait à 6,46 ccSTP, et le présent maximum est à 9,35 ccSTP environ. L'écart est de 2,9 ccSTP, soit pratiquement une seconde couche complète, ce qui encore une fois suggère une promotion en troisième couche. Bien que les conditions expérimentales soient très différentes²⁴, et que l'on s'attendrait naïvement à ce que les sous-couches " lissent " les hétérogénéités, diminuant ainsi à la fois les quantités d'atomes localisés et leurs échanges effectifs $|J_x^{\text{eff}}|$, le parallèle est frappant. Notre analyse appelle à de nouvelles expériences sur la troisième couche d' ^3He sur deux couches d' ^4He , $^3\text{He}/2\times^4\text{He}/\text{Gr}$.

La coexistence de phases à proprement parler n'existe alors qu'entre le solide $\frac{4}{7}$ et le solide ferromagnétique de la seconde couche. Les spins localisés, de signature proche du paramagnétisme qui s'ajoute à l'aimantation, sont eux exclus du liquide de la troisième couche. Nous postulons donc que pour les fortes densités atteintes à ces taux de couvertures à la fois dans l' ^3He solide de la seconde couche, et dans l' ^3He liquide de la troisième couche, il devient énergétiquement favorable de localiser les atomes de la dernière couche là où les hétérogénéités de la sous-couche engendrent les potentiels d'adsorption les plus profonds.

En toute rigueur, le dernier point (10,651 ccSTP) en fig. 8.20 ne possède plus de contribution ferromagnétique. Nous ne l'avons pas exclu du régime ferromagnétique simplement par commodité. On pourrait arguer que la densité de la seconde couche est telle que, si l'on pouvait y loger des atomes d' ^3He , ils auraient nécessairement un comportement ferromagnétique (conformément au système $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$).

Il est tentant de proposer le même " diagramme de phases " pour l' $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$, ce qui, sans conclure sur la présence possible de défauts au sein de la seconde couche solide (non considérés dans notre approche simple), pourrait au moins éclaircir l'ensemble des résultats déjà obtenus (section 7.8, Godfrin et al. [100] 1988, Schiffer et al. [87] 1994).

²⁴En seconde couche, nous atteignons la quantité maximale de spins localisés sur une couche solide, constituée presque que d' ^3He , alors qu'ici la troisième couche est liquide, et beaucoup d'atomes d' ^4He ont été ajoutés au système.

Notons que dans ces conditions, l'échange de Heisenberg J_χ^{Heis} tel qu'il est ajusté en sous-section 8.2.2 (fig. 8.5) n'est qu'un paramètre effectif, moyenne sur les différentes assemblées en présence. Les J_χ^{Heis} assignés à la phase ferromagnétique sont environ 10 % plus élevés que les J_χ^{Heis} moyen du cas ^3He pur.

Dans le cas du mélange solide $^3\text{He}/^4\text{He}$ étudié ici, le plateau où la phase $\frac{4}{7}$ est stable est éminemment plus large que dans le cas ^3He pur, et nous avons analysé l'ensemble de nos données en ne considérant que cette phase commensurable. D'autres phases commensurables pourraient être stabilisées dans cette plage de densité ($\frac{12}{19}$, $\frac{13}{19}$, section 7.8), et marquer les propriétés du système ^3He pur.

Enfin, un argument fort avancé par le groupe de Londres [102] à l'encontre du scénario de coexistence de phases, est la relative constance de la chaleur spécifique mesurée dans cette gamme de densité (Siqueira et al. [69] 1997). La constance de la chaleur spécifique est pourtant une conséquence naturelle de l'échange multiple (discussion ci-dessous) : la phase ferromagnétique générée juste au point où l'incommensuration est stabilisée est encore fortement frustrée par l'échange J_4 à quatre corps, et se comporte encore, en chaleur spécifique, comme un aimant 2D antiferromagnétique (Roger et al. [18] 1998).

8.4.2 Analyse en taille finie

L'analyse à laquelle nous nous sommes livrés aboutit aux aimantations $M(T)$ pour la phase ferromagnétique présentée en fig. 8.21, pour les différents taux de couverture. Sur ce graphique, nous avons encore normalisé $M(T)$ au nombre de spins n_{ferro} . En haut, nous montrons les aimantations dans le régime de coexistence entre phase $\frac{4}{7}$ et phase ferromagnétique, et en bas, au delà de " l'anomalie ferromagnétique " de notre système, les aimantations dans la zone où la contribution des spins localisés s'ajoute à celle des spins ferromagnétiques. Les barres d'erreur de $\pm 0,01$ unités arbitraires d'aimantation à haute température marquent la limite de notre procédure d'analyse. A basse température, elles sont de l'ordre de la taille des symboles, soit $\pm 5\%$.

A nouveau, les ajustements haute température sont obtenus par la série $\text{Heis}(J_\chi^{\text{Heis}}, T)$. Les ajustements basses températures sont tirés de l'analyse en ondes de spin, où encore une fois le seul paramètre ajustable restant est la taille effective N d'une assemblée ferromagnétique.

Le résultat de ces ajustements est donné en fig. 8.22, en fonction du taux de couverture ρ_{total} exprimé à nouveau en at/nm^2 , pour faciliter la discussion. Le graphique du haut montre l'évolution du paramètre d'interaction J_χ^{Heis} . Il augmente avec la densité jusqu'à at-

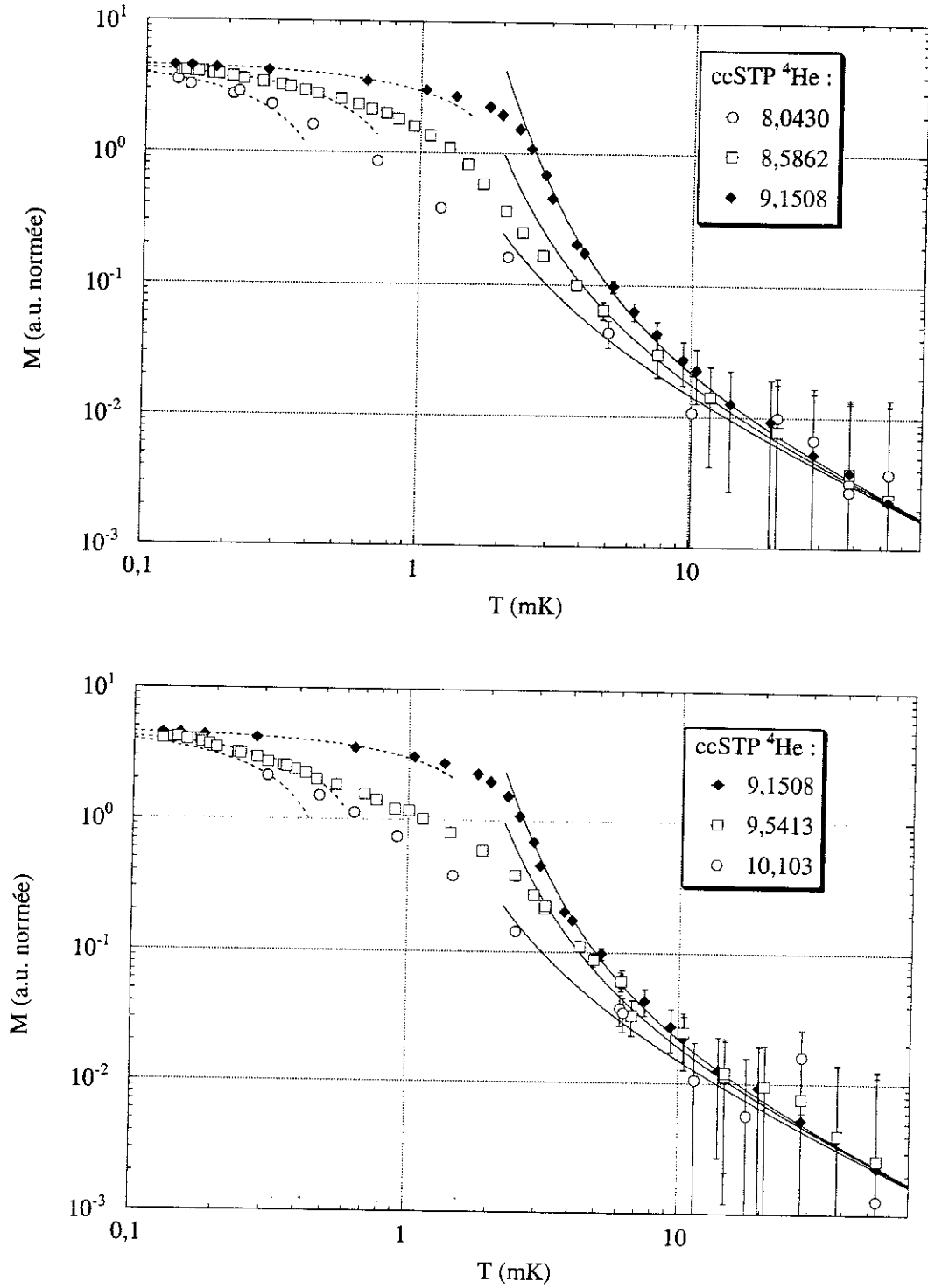


FIG. 8.21: Aimantations $M(T)$ de la phase ferromagnétique, pour les différents taux de couvertures, normalisées au nombre de spins n_{ferro} . En haut, dans le régime de coexistence avec la phase " liquide de spins ". En bas, au-delà de " l'anomalie ferromagnétique ", l'aimantation obtenue après soustraction de la contribution des spins localisés. Les ajustements sont à haute température obtenus via la série $Heis(J_x^{Heis}, T)$, et à basse température via l'expression déduite du calcul en ondes de spin. Les paramètres tirés de ces ajustements sont donnés en fig. 8.22. La qualité et la validité de ces ajustements sont discutées dans le texte. Les paramètres correspondant à cette normalisation sont : $C = 0,111 \text{ Volt}^2\text{mK}$ et $M_{\text{sat}} = 4,682 \text{ Volt}^2$. Barres d'erreur : à basse température elles sont de l'ordre de la taille des symboles ($\pm 5\%$), et à haute température de $\pm 0,01$ unités d'aimantation arbitraires, correspondant à la limite de résolution de la procédure d'analyse utilisée.

teindre un maximum à " l'anomalie ferromagnétique " (symbole ①), car la densification du solide favorise l'échange J_3 vis à vis des autres échanges J_i . Au-delà de l'anomalie, la densité est telle qu'elle finit par réduire également l'échange à trois corps. Cette interprétation est conforme aux discussions des sections 7.8 et 8.1. Remarquons que l'échange J_x^{Heis} affecté à la phase ferromagnétique est par conséquent plus élevé que l'échange moyen ajusté en fig. 8.5 de la sous-section 8.2.2.

Une extrapolation linéaire " brutale " sur la zone ferromagnétique, entre la densité de la phase $\frac{4}{7}$ (6,64 at/nm²), et la densité de la seconde couche d'⁴He solide dense (9,40 at/nm², section 7.8), nous donne pour " l'anomalie ferromagnétique " 8,0 at/nm². Cette valeur correspond raisonnablement (+/-0,5 at/nm²) à celle proposée par Lusher et al. [82] 1991, et à la synthèse de Bäuerle [201] 1996. Notons que différents critères sont utilisés pour positionner cette anomalie.

Le graphique fig. 8.22 en bas représente l'évolution de la taille N d'un groupe de spins ferromagnétiques. Nous montrons les données ($\diamond$) tirées de l'analyse en ondes de spins, et les données (■) obtenues à l'aide de n_{ferro} auquel nous avons appliqué le facteur multiplicatif ($2,68676 \cdot 10^{19} \times 9,62 \cdot 10^{-18}$) atomes/ccSTP. Le chiffre de $2,68676 \cdot 10^{19}$ atomes/ccSTP correspond à la conversion des ccSTP en nombres d'atomes, et celui de $9,62 \cdot 10^{-18}$ représente le rapport entre la surface totale de l'échantillon et la surface d'une zone ferromagnétique. Cette dernière valeur est discutée ci-dessous. Alors que la seconde couche solide se densifie, les zones ferromagnétiques croissent en taille, au détriment de la phase $\frac{4}{7}$, jusqu'à un maximum à " l'anomalie ferromagnétique " (autour de 24 at/nm², déjà présenté en fig. 8.20). Au-delà de l'anomalie, les atomes de la seconde couche sont poussés en troisième couche, et la taille des groupements ferromagnétiques décroît.

Cette analyse, cohérente, ne peut être quantitativement très précise. En particulier la représentation de N , le nombre effectif d'atomes par groupe ferromagnétique, peut aisément être pourvue de barres d'erreur +/- 50 spins pour mettre en accord les deux types de mesures ($\diamond$ et ■). En effet :

- En toute rigueur, l'évolution du régime " liquide de spins " où tous les échanges J_i sont du même ordre, au régime ferromagnétique de Heisenberg où J_3 prédomine, est censée se faire continûment. Ici, nous avons négligé tout effet dû à la forme particulière de l'Hamiltonien d'échange multiple. En ce sens, les échanges J_x^{Heis} obtenus sont des échanges, de type Heisenberg, effectifs.
- L'anomalie sur le paramètre T_F^{**} du liquide suggère en sous-section 8.2.2 qu'il existe peut être un processus indirect entre le liquide de la troisième couche et le solide de la seconde couche. L'analyse présentée ne peut conclure sur ce point, mais force est

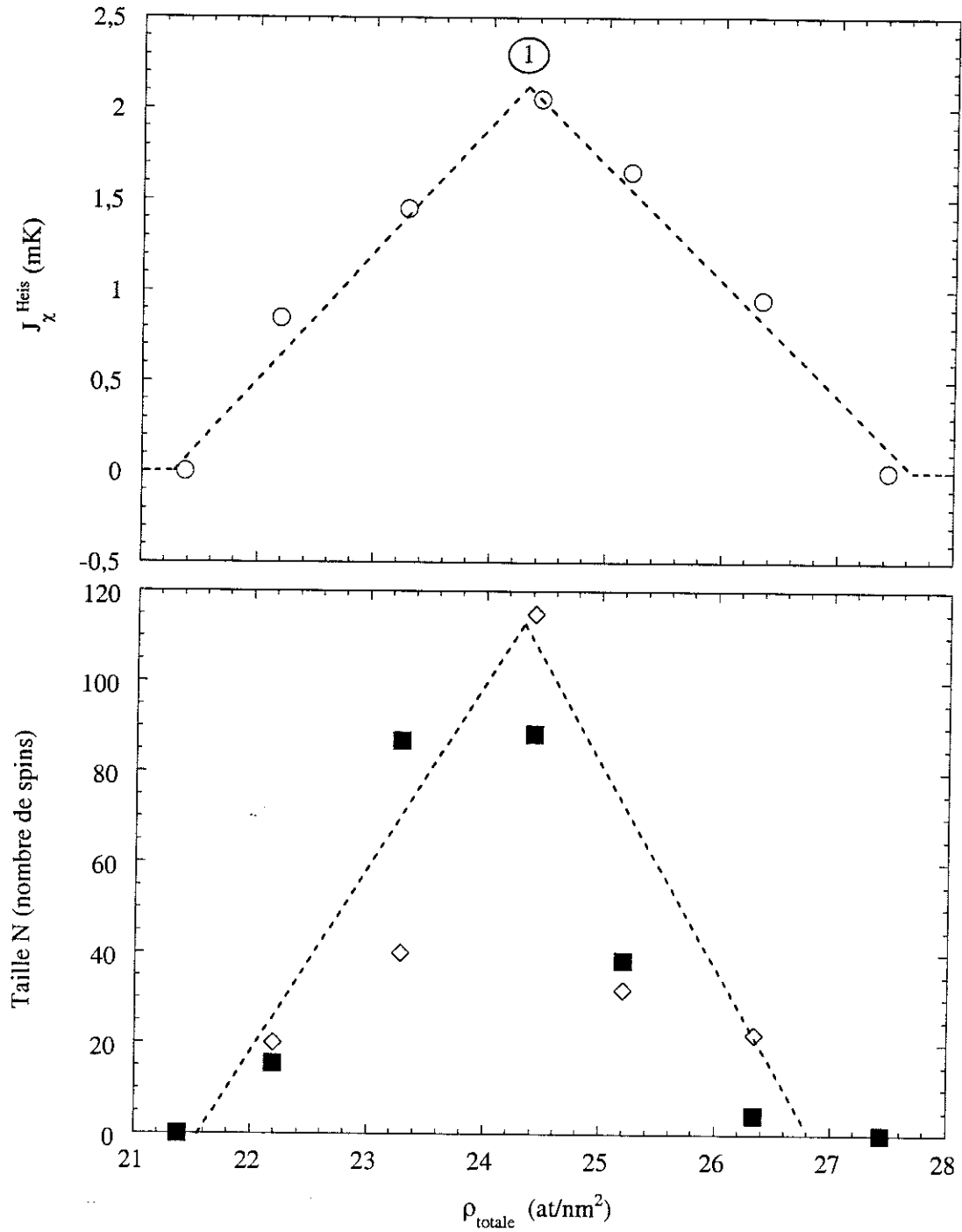


FIG. 8.22: Résultats des ajustements hautes et basses températures de la fig. 8.21, en fonction du taux de couverture ρ_{totale} (en at/nm^2). En haut (○), les échanges J_x^{Heis} tirés de la série $\text{Heis}(J_x^{\text{Heis}}, T)$. En bas, le nombre de spins N dans une assemblée ferromagnétique. Les ◇ sont tirés de l'ajustement en ondes de spin, où la valeur de l'échange a été fixée à sa valeur haute température J_x^{Heis} , et la valeur du champ magnétique $|\vec{B}|$ à 30,51 mT (champ appliqué). Les ■ sont obtenus à l'aide des quantités n_{ferro} de spins ferromagnétiques ajustées à haute température, simplement en appliquant un facteur multiplicatif constant (258,5 atomes/ccSTP). Le symbole ① sur le graphique supérieur représente "l'anomalie ferromagnétique" observée dans notre système. Les limites et la pertinence de ces résultats sont discutés dans le texte.

de constater qu'il n'est pas besoin d'un échange hors de la couche pour expliquer le ferromagnétisme.

- L'expression en ondes de spin (8.3) fait intervenir le champ magnétique $|\vec{B}|$. Entre autres, pour les champs faibles le dernier terme $\frac{1}{Ns} \frac{1}{e^{\frac{1}{2}T_m} - 1}$ provenant du magnon $|\vec{k}| = 0$ a une forte influence sur l'ajustement. On peut se demander s'il ne s'agit pas là d'un artefact, qui sera gommé aux champs les plus faibles par des champs rémanents, pourquoi pas anisotropes (du fait de l'échantillon de graphite). Nous cherchons à répondre à cette question dans les paragraphes suivants de cette section.
- Le calcul en ondes de spin fait l'hypothèse que $T \ll J^{Heis}$, et que N , taille d'un groupement d'atomes ferromagnétique, est suffisamment grand. On peut donc s'interroger sur la qualité des ajustements proposés ci-dessus. En toute rigueur, les valeurs de N sont indicatives, et représentent des bornes supérieures. Pour justifier ces ajustements, nous présentons dans la suite des analyses similaires effectuées sur des systèmes de taille a priori plus grandes.
- De la même façon, la série haute température considère que $N \rightarrow +\infty$. Il est donc fort probable que l'évolution en taille des groupements ferromagnétiques a une signature sur l'échange J_χ^{Heis} obtenu. Ceci pourrait expliquer la forme très " pointue " obtenue en fig. 8.22. A nouveau, J_χ^{Heis} est avant tout un paramètre effectif.
- Lorsque la taille N des groupements ferromagnétiques est suffisamment importante, leur forme exacte importe certainement peu, et l'hypothèse d'hexagonalité n'est pas restrictive. En revanche pour les petites tailles, il en va tout autrement. C'est nous pensons ce qui explique le désaccord entre les deux types d'évaluations de la taille N en fig. 8.22. La valeur tirée des hautes températures suppose que les 13,61 m² de surface effective de notre cellule C_5 (chapitre 3) sont divisés en plaquettes de 500 Å de diamètre (section 7.2), et qu'environ 15 groupes d'atomes sont présents sur chaque plaquette (d'où le $9,62 \cdot 10^{-18}$ proposé ci-dessus). Il est certain que le processus de fractionnement réel ne se caractérise pas par un seul nombre constant en fonction du taux de couverture. L'ordre de grandeur obtenu est cependant satisfaisant (voir la suite de cette discussion).
- Cette analyse ne fait à aucun moment intervenir les possibles défauts de la seconde couche solide. Ces défauts sont ponctuels (inclusions d'³He ou d'⁴He dans la phase correspondante), mais sont également linéaires du fait du fractionnement de l'³He (il doit exister une forte proportion de bords, ou même de joints entre groupes ferromagnétiques). Les résultats présentés ne peuvent conclure sur ce point, et de nouvelles expériences sont nécessaires.

Bien que les valeurs numériques soient avant tout des ordres de grandeur, l'évolution de la taille de ces " clusters " est acquise. Typiquement, pour une centaine d'atomes et un paramètre de maille de l'ordre de 4 Å, nous obtenons un diamètre moyen pour le groupement de 4,2 nm. Nous justifions ici le titre de cette section.

Pour la première fois, nous avons pu réaliser des expériences en taille variable, sur le même substrat (le Papyex de la cellule C_5), simplement par l'ajout d' ^4He . Nous avons pu ainsi mettre en évidence des effets de taille dans les propriétés magnétiques d'un système gouverné par l'Hamiltonien de Heisenberg (au moins aux plus fortes densités). Ces résultats expérimentaux, nous l'espérons dans un futur proche, pourront être comparés directement aux simulations obtenues sur des assemblées finies d'atomes.

Pour appréhender pleinement la différence entre ces résultats très particuliers et ceux obtenus communément sur $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$, nous pouvons appliquer la même analyse aux données des autres groupes mesurées sur différents substrats.

Nous montrons en fig. 8.23 les données de Schiffer et al. [87] 1994 sur Grafoil à 24,8 at/nm² dans 14,3 mT, les données de Bozler [105] sur Grade GTY Grafoil à 24,2 at/nm² dans 0,35 mT, et nous rappelons nos résultats à 9,1508 ccSTP, soit 24,4 at/nm² dans 30,51 mT. En accord avec notre analyse, nous considérons que dans l'expérience de Schiffer et al. [87] 1994, environ 28 % des atomes solides sont piégés²⁵ dans des sites d'aimantation presque paramagnétique ($J_x^{\text{eff}} = +13,3 \mu\text{K}$). Notons que ces chiffres, dépendant de la constante de Curie C ajustée à haute température, ne sont qu'indicatifs, étant donné que les auteurs perdent le signal RMN²⁶ aux alentours de 3,5 mK.

Pour les données de Bozler [105] nous considérons de la même façon qu'environ 29 % des atomes d' ^3He sont localisés²⁵ dans des hétérogénéités (nous prenons $J_x^{\text{eff}} = 0 \mu\text{K}$, les données limitées à $T \geq 300 \mu\text{K}$ sont insensibles à ce choix).

En revanche, il nous faut commenter les techniques utilisées par ces auteurs. Leurs mesures, en champ extrêmement faible, sont réalisées à haute température via une amplification par SQUID en RMN pulsée, et à basse température en RMN continue (Bozler et al. [103] 1999). La jonction se fait par une normalisation arbitraire (Bozler [105]), et ce dans une gamme de température où l'aimantation décroît extrêmement rapidement avec T , alors que leur amplificateur de RMN continue commence à perdre le signal. Il est par conséquent aisé de faire une erreur importante, qui se caractérisera par un écart artificiel entre la valeur M_{sat} obtenue à $T = 0$ et l'échelle d'aimantation donnée à haute température par la constante de

²⁵Remarquons qu'en toute rigueur, d'après notre analyse, ces atomes piégés se répartissent entre des sites de forte adsorption de la seconde couche, mais aussi de la troisième.

²⁶La valeur de la constante de Curie C que les auteurs proposent est 0,0326 Volt²mK, et l'aimantation à saturation est $M_{\text{sat}} = 2,93 \text{ Volt}^2$ dans leurs unités.

Curie C . Les données présentées en fig. 8.23 font intervenir un recalage basse température d'un facteur $1/1,4$ par rapport aux données originelles de Bozler [105]. Nous avons effectué la même analyse sur les données du même auteur à $22,5 \text{ at/nm}^2$ et $0,48 \text{ mT}$. Le résultat est à nouveau cohérent²⁷, et nous conforte dans notre approche. Encore une fois, les paramètres tirés de cette section ne peuvent être considérés comme très précis; seule la philosophie de la présente démarche et les ordres de grandeurs sont à prendre avec intérêt.

Toutes ces mesures ont été normalisées à la même constante de Curie haute température (la nôtre, $C = 0,111 \text{ Volt}^2 \text{ mK}$). Les différences dans les aimantations à saturation M_{sat} sont dues aux différents champs magnétiques (expression (8.4) précédente).

Notre analyse fournit $J_{\chi}^{\text{Heis}} = 1,90 \text{ mK}$ et $N = 8500$ spins pour les mesures de Bozler [105], et $J_{\chi}^{\text{Heis}} = 1,85 \text{ mK}$ et $N = 425$ spins pour les mesures de Schiffer et al. [87] 1994. Nous montrons en fig. 8.23 une loi de Heisenberg $\text{Heis}(J_{\chi}^{\text{Heis}}, T)$ obtenue pour un échange moyen sur les trois courbes de $J_{\chi}^{\text{Heis}} = 1,90 \text{ mK}$.

Pour commenter ces résultats, il nous faut mentionner le travail de Bäuerle [201] 1996 réalisé pour un taux de couverture $\rho_{\text{total}} = 23,6 \text{ at/nm}^2$ sur Papyex (cellule C_4), dans différents champs magnétiques ($28,1 \text{ mT}$, $56,5 \text{ mT}$ et 113 mT). Malheureusement, ces mesures n'ont été effectuées qu'au-dessus de 1 mK .

Elles montrent à nouveau un déficit en aimantation extrapolée à $T = 0$ représentant environ 20 % de spins ne participant pas aux propriétés ferromagnétiques. Et surtout, pour les différents champs magnétiques utilisés, l'ajustement en ondes de spin fournit le chiffre constant de 1 000 atomes par groupement. A nouveau, si l'on considère qu'une quinzaine de " clusters " sont présents sur chaque plaquette, on retrouve une dimension moyenne²⁸ d'environ $500 \text{ \AA}$.

L'ensemble de ces résultats nous incite à croire qu'il n'y a pas d'effet dans cette courbe d'aimantation apparaissant spécifiquement aux champs les plus faibles. Les données de Bäuerle [201] 1996 confirment que l'ajustement en ondes de spin, pour des champs magnétiques de l'ordre de quelques dizaines de mT, se comporte correctement. En fig. 8.23, la queue haute température de l'aimantation se superpose pour toutes les expériences, sans montrer aucun effet dépendant du champ $|\vec{B}|$, et l'analyse que nous faisons des données de Bozler [105] semble exclure toute influence particulière du magnon $|\vec{k}| = 0$. Notons que

²⁷L'ajustement haute température apporte $C = 0,00032 \text{ Volt}^2 \text{ mK}$ pour leurs mesures de RMN pulsée. Nous en tirons $M_{\text{sat}} = 1,175 \text{ Volt}^2$ dans leurs unités. Les données de Bozler [105] à $24,2 \text{ at/nm}^2$ dans $0,35 \text{ mT}$ se recalent sur celles-ci via un facteur 350. Ces valeurs sont avant tout indicatives.

²⁸Cette valeur est avant tout indicative. La taille de $500 \text{ \AA}$ est déduite des mesures de neutrons, surtout sensibles aux grandes plaquettes. A l'inverse, l'effet des petites plaquettes sur l'aimantation est prépondérant; il se peut donc tout aussi bien que les plaquettes soient d'une taille moyenne de $130 \text{ \AA}$, et qu'elles n'abritent chacune qu'un seul " cluster " en moyenne.

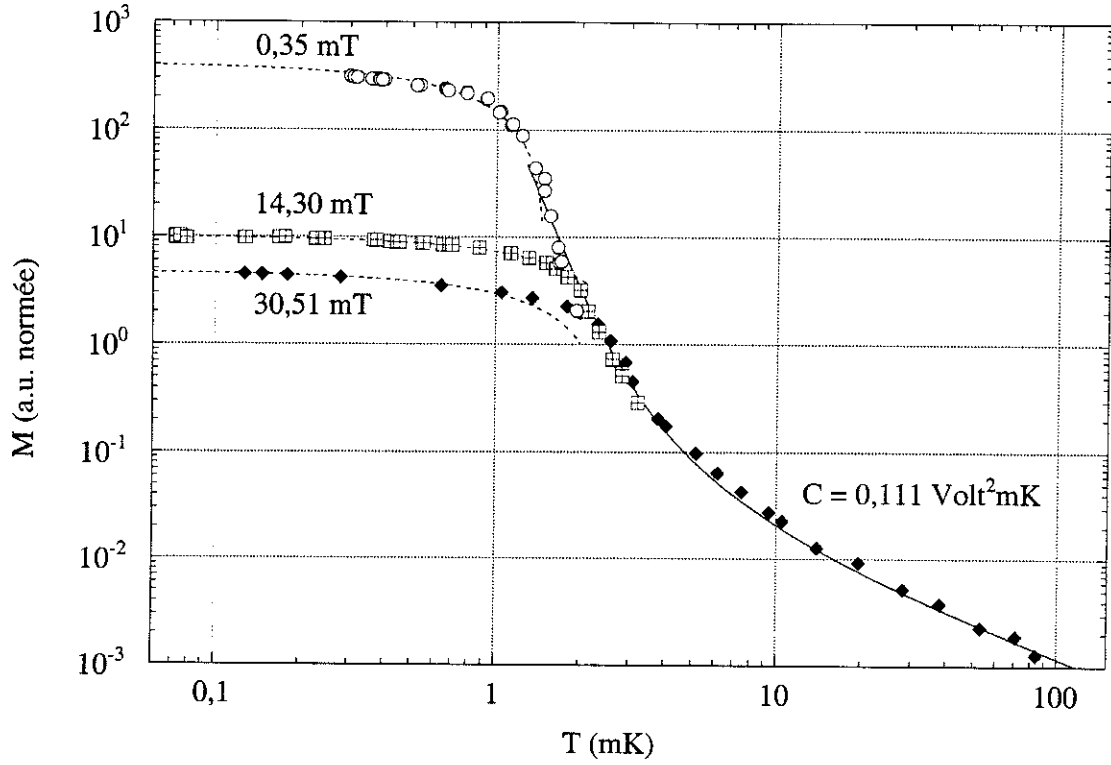


FIG. 8.23: Résultats d'aimantation $M(T)$ de différents groupes analysés suivant le même principe, aux alentours de $24,5 \text{ at/nm}^2$ (moyenne sur ces données à $\pm 0,3 \text{ at/nm}^2$). Toutes les données sont normalisées à haute température à notre constante de Curie $C = 0,111 \text{ Volt}^2 \text{ mK}$. $\blacklozenge$: Nos données obtenues pour le taux de couverture $9,1508 \text{ ccSTP}$, sur Papyex (cellule C_5) dans $30,51 \text{ mT}$. $\boxplus$: données de Schiffer et al. [87] 1994 $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ réanalysées, sur Grafoil dans $14,3 \text{ mT}$. $\circ$: données de Bozler [105] $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Gr}$ réanalysées, sur Grade GTY Grafoil dans $0,35 \text{ mT}$. A haute température, ajustement Heis(J_X^{Heis}, T) avec $J_X^{\text{Heis}} = 1,90 \text{ mK}$ (valeur moyenne sur les données, à $\pm 0,2 \text{ mK}$). La taille des symboles est de l'ordre de $\pm 10\%$. A basse température, ajustement en ondes de spin avec N valant 115 spins pour notre expérience ("clusters"), 425 spins pour Grafoil et 8500 spins pour Grade GTY Grafoil. Les aimantations à saturation M_{sat} sont $4,682 \text{ Volt}^2$ dans notre cas, $9,989 \text{ Volt}^2$ pour $14,3 \text{ mT}$ et $408,1 \text{ Volt}^2$ pour $0,35 \text{ mT}$. Clairement, nos données sont celles où la loi en ondes de spin dévie le plus tôt.

ces auteurs interprètent leurs données en affirmant qu'il existe une transition de phases à température finie $T \neq 0$ vers un état ferromagnétique. Cette transition serait due à la partie dipolaire $\mathcal{H}_{\text{dipolaire}}$ (7.5) de l'Hamiltonien, ce qui n'est pas contraire au théorème de Mermin et Wagner [70] 1966. Force est de constater qu'il n'y a pourtant aucune signature particulière sur l'aimantation (ou la chaleur spécifique, voir Siqueira et al. [69] 1997 par exemple) d'une transition du premier ou du deuxième ordre. De surcroît, la fig. 8.23 donne plutôt une vision unifiée du comportement de l' ^3He adsorbé sur différents substrats. Il n'y a aucune surprise à voir l'aimantation croître rapidement dans la gamme du mK, elle suit effectivement une loi exponentielle en J^{Heis}/T (excellentes discussions dans Diu et al. [215] et Pathria [216]). D'ailleurs, l'analyse des ordres de grandeur fournie en section 7.6 nous laissait présager de tels résultats, jusqu'à des températures de l'ordre de $25 \mu\text{K}$ dans notre

cas.

Les ajustements basse température de la fig. 8.23 sont, pour les mesures de Bozler [105] et Schiffer et al. [87] 1994, d'excellente qualité. Les valeurs obtenues pour le nombre de spins par groupement ferromagnétique correspondent aux différences de qualité entre substrats²⁹ de graphite (discussion de la section 7.2).

L'ajustement en ondes de spin sur nos propres données dévie à des températures bien plus basses. Nous interprétons ce fait comme une signature de la limite de validité de cette loi, due précisément à la taille extrêmement faible des groupements ferromagnétiques. Pour la première fois, nous avons démontré expérimentalement la création de "clusters" ferromagnétiques nucléaires, isolant des assemblées de spins approximativement 10 fois plus petites que dans les précédentes expériences.

8.5 Absence de superfluidité Fermionique à 2D au-dessus de $120\mu K$

La superfluidité de l' ^3He massif a conduit naturellement à la recherche de superfluidité à deux dimensions, pour des couches d' ^3He adsorbées et de l' ^3He confiné (discussion de la section 7.8).

Les mesures effectuées jusqu'alors montrent des désaccords surprenants. Pour des films d' ^3He pur d'une épaisseur de l'ordre de la longueur de cohérence ξ_0 superfluide, remontant le long de capillaires, Sachrajda et al. [54] 1985 font état d'une transition superfluide à 3,5 mK (soit au-dessus de la transition de l' ^3He massif), alors que Shirahama et Pobell [55] 1994 n'observent aucune transition au-dessus de $900\mu K$ pour des sous-monocouches adsorbées sur de la poudre d'argent recouverte d' ^4He .

Les prévisions théoriques pour des films d'épaisseur atomique varient tout autant d'un auteur à l'autre, entre quelques mK (encore une fois au-dessus des températures de transition de l' ^3He massif) et la centaine de μK (voir par exemple Chubukov [56] 1993 et Takahashi et Hirashima [57] 2000). Une brève revue sur les possibilités de superfluidité 2D, pour des films d' ^3He obtenus par mélanges $^3\text{He}/^4\text{He}$, peut être également trouvée dans l'article de Hallock [53] 2000.

Nous nous sommes proposés de prolonger l'investigation expérimentale aux plus basses températures disponibles actuellement, en champ magnétique faible.

²⁹La différence de taille pour les plaquettes, entre les 425 spins et les 8 500 spins des deux substrats, est simplement un facteur 4,5 sur le diamètre moyen.

A priori, nous recherchons sur nos raies de résonance RMN toute signature qui pourrait marquer une transition de phase rappelant les caractéristiques de la transition de l' ^3He massif : un décalage en fréquence, et pour la phase $^3\text{He-B}$ une diminution de l'aimantation. Aucune signature particulière n'est détectée sur le dernier taux de couverture de l'expérience précédente (10,651 ccSTP), qui correspond à un système comprenant deux couches d' ^4He solide, et une couche d' ^3He liquide au-dessus. Nous noterons ce système dans la suite $^3\text{He}/2\times^4\text{He}/\text{Gr}$. En toute rigueur, il est vrai qu'une faible proportion d' ^3He solide piégé était présente, qui masque partiellement les propriétés du liquide. Cependant, ces données s'interprètent très simplement par une coexistence standard entre du solide, presque paramagnétique et donc de polarisation faible, et un liquide de Fermi 2D ordinaire. Mieux, il est possible d'analyser directement les raies de résonance sur le modèle du début de la section 8.4, en soustrayant au signal à basse température la raie du liquide obtenue vers 10 mK (lorsque le signal du solide est négligeable). Le signal restant correspond aux caractéristiques du solide piégé décrit en section précédente, ce qui confirme l'analyse qui y a été faite.

Néanmoins, pour éviter tout artefact imputable à l'analyse de données, nous nous proposons d'effectuer notre nouvelle expérience visant à détecter la superfluidité 2D à un taux en ^4He supérieur, où tout solide aura à coup sûr disparu. Cette demande de certitude nous pousse à commenter les résultats de Bäuerle [201] 1996, obtenus sur ce même système $^3\text{He}/2\times^4\text{He}/\text{Gr}$.

En fig. 8.24 nous montrons l'aimantation $M(T)$ brute obtenue par Bäuerle [201] 1996, toujours sur la cellule C_5 , pour une couverture³⁰ de 11,344 ccSTP en ^4He , et 7,943 ccSTP en ^3He . Nous y constatons que 30% de l' ^3He est solide et ferromagnétique³¹ ($J_{\chi}^{\text{Heis}} = 2,85\text{mK}$, la taille N des domaines ferromagnétiques étant de l'ordre de 160 spins), et que le reste est liquide avec un T_F^{**} de 280 mK environ, en accord avec les valeurs atteintes aux plus fortes densités en section précédente (ajustements $\text{Heis}(J_{\chi}^{\text{Heis}}, T)$ et ondes de spin de la fig. 8.24, auxquels s'ajoute une contribution liquide).

D'après nos résultats, sur le même échantillon, cette quantité d' ^4He remplit complètement la première couche (6,22 ccSTP), ainsi que la seconde (4,0 ccSTP environ) et les sites de forte adsorption de la troisième (0,6 ccSTP supplémentaires). Ce signal ferromagnétique ne peut donc provenir que de la solidification de la troisième couche, chose qui n'a jamais été rapportée précédemment. Pour entériner ce fait, deux arguments sont d'importance :

³⁰Trois différents taux de couverture ont été explorés dans cette gamme, et tous confirment ce résultat. Nous décrivons ici la synthèse de Bäuerle [201] 1996. Rappelons que le champ magnétique est de 113,2 mT.

³¹Dans l'expérience de Bäuerle [201] 1996, nous avons $C = 0,06283 \text{ Volt}^2\text{mK}$, et $M_{\text{sat}} = 0,7133 \text{ Volt}^2$ pour ce taux de couverture. Comme en section 8.3, ces valeurs sont tirées des mesures en monocouche.

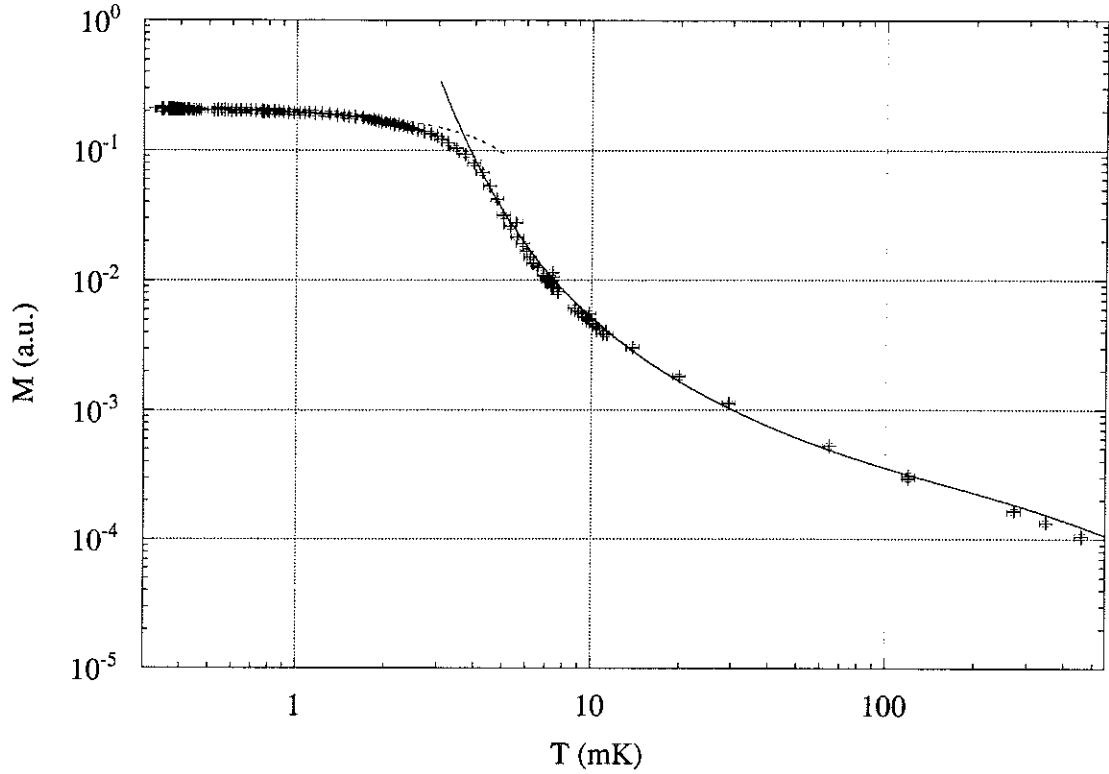


FIG. 8.24: Mesures $M(T)$ de Bäuerle [201] 1996 sur la cellule C_5 , pour 11,344 ccSTP d' ^4He et 7,943 ccSTP d' ^3He , dans 113,2 mT. Cette gamme de densité correspond, d'après nos mesures détaillées en section précédente, à la solidification de la troisième couche, jamais rapportée précédemment. Le trait plein est un ajustement haute température $\text{Heis}(J_x^{\text{Heis}}, T)$, et le trait pointillé celui tiré du calcul en ondes de spin. Sur chacun de ces ajustements, nous avons ajouté la contribution du liquide par une loi de type Dyugaev [51] 1990. Les paramètres obtenus sont : $C = 0,06283 \text{ Volt}^2\text{mK}$, $M_{\text{sat}} = 0,7133 \text{ Volt}^2$ avec 2,383 ccSTP de solide, défini par $J_x^{\text{Heis}} = 2,85 \text{ mK}$ et $N = 160$ spins. Le liquide est décrit par $T_F^* = 280 \text{ mK}$. L'écart des ajustements aux données expérimentales est de l'ordre de 5 %, ce qui est raisonnable sachant que nous présentons ici des résultats synthétisant différentes mesures, de quantités d' ^4He légèrement différentes.

- Il ne peut s'agir de ferromagnétisme provenant d'atomes d' ^3He " piégés " en seconde couche, du fait d'une procédure expérimentale trop cavalière. En effet, même notre analyse (sous-section 8.4.2) en coexistence de phases ne peut rendre compte d'un J_x^{Heis} aussi élevé. Les seules explications que nous puissions avancer sont la solidification en troisième couche, soit en une phase dense, mais de densité plus faible que la seconde couche incommensurable, soit la présence de liquide en échange avec ce solide (mécanisme du type RKKY, section 7.5). En revanche, la structure de cette phase et sa densité exacte restent une question ouverte³².
- Pourquoi cette solidification n'a pas été observée auparavant ? Différentes expériences

³²En effet, la densité que l'on déduit de notre démarche usuelle (structure triangulaire et échelle commensurable apportent $5,8 \text{ at/nm}^2$) est bien trop faible pour justifier, à notre avis, le ferromagnétisme. Il s'agit peut-être d'une mise en évidence d'un processus d'échange indirect, beaucoup de liquide étant effectivement en contact avec le solide.

ont en effet été réalisées sur les multicouches ^3He et ^4He purs (section 7.8). Il s'agit d'expériences de chaleur spécifique, limitées aux températures supérieures à quelques mK (Greywall [39] 1990 et Greywall [106] 1993), et de RMN dans le cas de l' ^3He (Saunders et al. [52] 1991). Conclure de façon catégorique sur l'absence de solidification aux taux de couverture élevés est en dehors de la résolution de ces expériences antérieures. Trop de contributions solides, liquides et même celle du substrat lui-même pour la chaleur spécifique se superposent. Greywall suggère d'ailleurs que la troisième couche d' ^4He pourrait solidifier sur graphite (Greywall [106] 1993). Notons également qu'aucun auteur ne fait référence à des mesures sur des mélanges $^3\text{He}/^4\text{He}$, en ce sens les résultats présentés ici sont novateurs. Aussi, traduits en taux de couverture ρ_{total} , les résultats de Bäuerle [201] 1996 correspondent à 38,85 at/nm², gamme jamais réellement explorée précédemment.

Si la troisième couche finit aux plus fortes densités par solidifier, ce qui est déjà une surprise du fait de la décroissance du potentiel d'adsorption avec la distance au substrat de graphite, il est cependant probable que les couches supérieures restent liquides.

Aussi, pour réaliser une expérience sur un film liquide sans aucune contribution solide, il nous faut remplir cette troisième couche d' ^4He . Dans l'expérience de Bäuerle [201] 1996, 2,383 ccSTP d' ^3He sont présents en troisième couche, ainsi que d'après nos mesures environ 0,55 ccSTP d' ^4He . Sachant que le remplacement des atomes d' ^3He par des atomes d' ^4He va s'accompagner, comme pour l'expérience présentée précédemment dans cette thèse, d'une légère compression de la couche³³, nous appliquons un "facteur de sûreté" à ces valeurs. Nous estimons donc à environ 5 ccSTP d' ^4He le remplissage de cette dernière couche solide.

Le dernier taux de couverture (10,651 ccSTP) de notre expérience sur le ferromagnétisme, nous a montré que les 2,9731 ccSTP d' ^3He se comportent comme un liquide de Fermi 2D habituel. Ces atomes forment a priori une troisième couche liquide (sur deux couches d' ^4He), mais il n'est pas exclu qu'à ces densités déjà certains ^3He soient promus dans des couches, ou disques de Fermi, supérieurs. Nous nous proposons d'augmenter ce nombre de couches, puisqu'une seule semble insuffisante à générer la superfluidité 2D. Ainsi nous nous plaçons, conformément à la valeur mentionnée en section 7.3, à la limite de capillarité entre plaquettes de graphite proches voisines : six couches d'Hélium au total, trois couches solides d' ^4He , et trois couches d' ^3He fluide. Nous notons un tel système $3\times^3\text{He}/3\times^4\text{He}/\text{Gr}$. Nous conservons les dimensions atomiques (l'épaisseur de la couche liquide reste bien inférieure à la longueur de cohérence à température nulle $\xi_0 \sim 50$ nm de l' ^3He massif), tout en

³³L' ^3He ajouté dans les couches fluides supérieures peut comprimer les sous-couches (section 7.8).

autorisant de légers mouvements dans la troisième dimension.

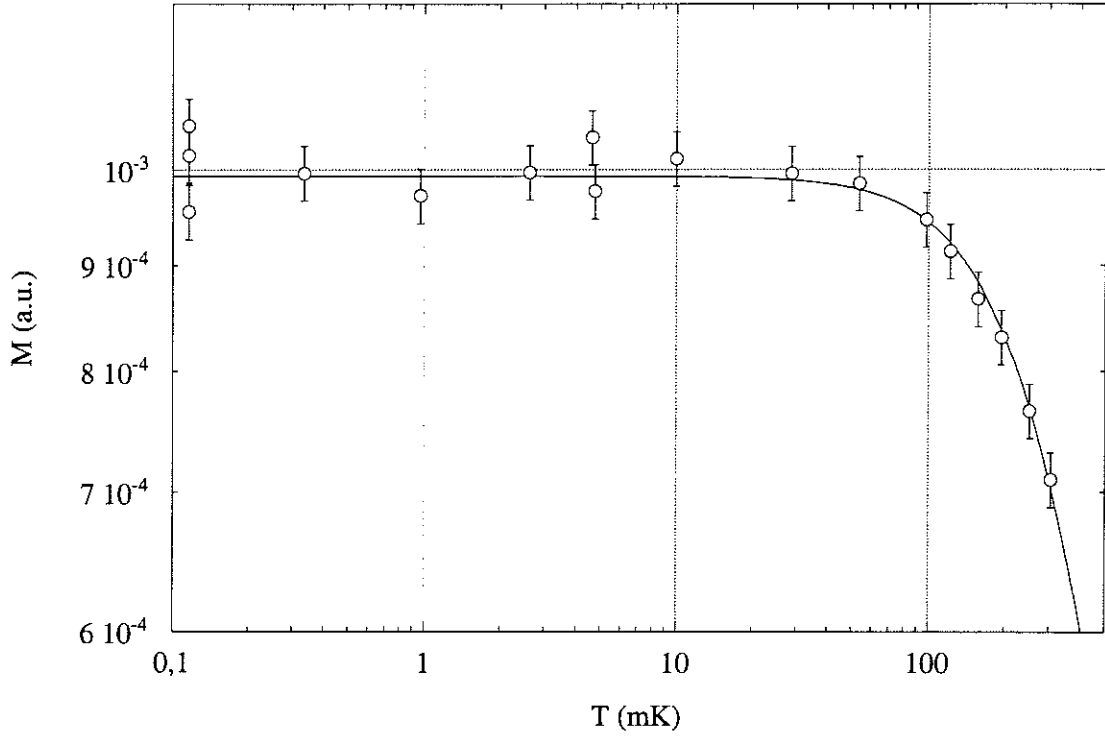


FIG. 8.25: Aimantation $M(T)$ obtenue pour $3\times^3\text{He}/3\times^4\text{He}/\text{Gr}$ (15,807 ccSTP d' ^4He et 8,1256 ccSTP d' ^3He), dans 30,51 mT. L'ajustement de Dyugaev [51] 1990 est obtenu avec $T_F^{**}=306\text{ mK}$, la constante de Curie étant à nouveau déduite de la mesure en monocouche ($C = 0,30377\text{ Volt}^2\text{mK}$). Les barres d'erreur sont de $\pm 3\%$ et correspondent à la résolution moyenne obtenue par nos mesures. Aucune contribution solide n'est détectée.

Nous montrons en fig. 8.25 et fig. 8.26 nos résultats sur $3\times^3\text{He}/3\times^4\text{He}/\text{Gr}$, obtenus sur la cellule C_5 dans 30,51 mT avec 15,807 ccSTP d' ^4He et 8,1256 ccSTP d' ^3He . La densité totale estimée pour les trois couches liquides est de 15 at/nm^2 (en prenant pour surface S_{incom}).

La première figure représente l'aimantation $M(T)$ fonction de la température. L'ajustement en trait plein est une loi de Dyugaev [51] 1990 avec $T_F^{**}=306\text{ mK}$. Notons que l'évolution de ce paramètre depuis les 240 mK mentionnés pour notre expérience en sous-section 8.2.2, aux 280 mK de Bäuerle [201] 1996 et à présent 306 mK se fait de façon monotone, tendant vers la valeur de 350 mK environ pour l' ^3He massif à pression nulle. Les barres d'erreur sont de 3 % et correspondent à la résolution moyenne obtenue par nos mesures. Aucune contribution solide n'est détectée³⁴.

La seconde figure représente la position en champ de la raie de résonance RMN, ainsi que sa largeur mesurée à mi-hauteur. A haute température (plus de 50 mK), nous observons un

³⁴Nous fixons donc les bornes inférieures et supérieures des quantités d' ^4He présents en troisième couche solide (sites localisés compris) : 2,9 ccSTP et 5,5 ccSTP respectivement.

décalage et un rétrécissement commenté en section 4.3, obtenu pour tous les taux de couverture. Les barres d'erreur sont de l'ordre de $0,5 \cdot 10^{-3} \text{ mT}$, et représentent les instabilités expérimentales auxquelles nous avons été confrontés.

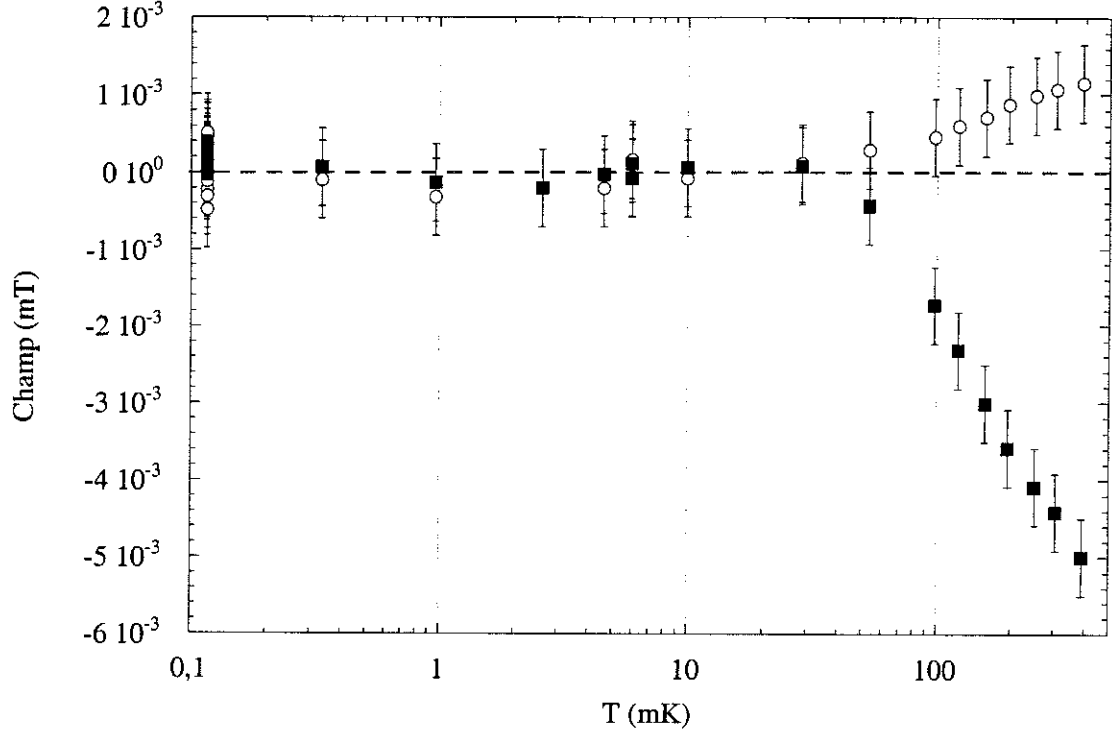


FIG. 8.26: Opposé du décalage de la résonance RMN (○) et largeur de raie à mi-hauteur (■) en fonction de la température (mêmes conditions expérimentales qu'en fig. 8.25, système $3 \times {}^3\text{He}/3 \times {}^4\text{He}/\text{Gr}$). Le comportement particulier au-dessus de 50 mK est commenté en section 4.3. Les barres d'erreur expérimentales sont de l'ordre de $0,5 \cdot 10^{-3} \text{ mT}$. Le zéro est le champ de Larmor B_L , et la largeur δ_0 de l'ordre de $0,015 \text{ mT}$. A basse température, il n'y a aucune anomalie pouvant marquer une transition vers la superfluidité.

Le dernier point de la fig. 8.26 est relativement bruité, du fait des différents champs de désaimantation utilisés lors de ces mesures.

Sur ces deux graphiques, nous ne décelons aucune signature particulière pouvant marquer une transition de phases. Au contraire, aimantation, largeur de raie et position de la résonance sont constantes (dans nos barres d'erreur) jusqu'aux températures les plus basses atteintes ici, environ $120 \mu\text{K}$.

Nous ne notons aucune dépendance, à $120 \mu\text{K}$, des paramètres RMN mesurés avec la puissance radiofréquence injectée, en accord avec l'idée que les spins nucléaires ne sont jamais saturés, mais que le graphite est, aux plus fortes puissances, chauffé par courant de Foucault (discussion de la section 4.2). Les propriétés physiques étant constantes en température au-dessous de quelques dizaines de mK, il est impossible de déceler cette surchauffe du substrat.

En toute rigueur, étant donné que nous ne décelons aucun effet dépendant de la température, nous ne pouvons affirmer catégoriquement que l'échantillon est parfaitement thermalisé. Bien que le contact thermique soit suffisant dans le cas des "clusters" solides (dont nous voyons l'aimantation croître aux basses températures), il se pourrait que ce contact se dégrade lorsque l'échantillon liquide n'est couplé que par des couches d' ^4He solides à la source froide. Néanmoins, cette expérience représente les conditions les plus favorables que l'on puisse réaliser expérimentalement.

En toute rigueur, une faible fraction d' ^4He peut être présente dans la phase liquide. Encore une fois, nous supposons qu'il y a séparation de phases et qu'elle n'affecte en rien les propriétés de l' ^3He fluide.

Cette nouvelle expérience, au-delà de la mise en évidence d'une solidification inattendue de la troisième couche qu'il va falloir étudier dans l'avenir, fixe une nouvelle borne supérieure à l'apparition de la superfluidité de l' ^3He à deux dimensions, pour les champs magnétiques faibles et les densités élevées.

- Les travaux théoriques (Momoi et al. [98] 1999, Misguich [203] 1999) proposent l'existence d'un plateau d'aimantation à fort champ magnétique (de l'ordre du Tesla), correspondant à la stabilisation d'une phase ordonnée du type uuud. Des expériences visant à le mettre en évidence sont envisageables, non pas par RMN, mais à l'aide de mesures par susceptibilité alternative (Collin [107] 1998).
- Ishida et al. [96] 1997 ont observé un second pic à ultra-basses températures dans la chaleur spécifique, qu'ils ont attribué à l'échange multiple. Il serait nécessaire d'effectuer, comme pour nos mesures de susceptibilité RMN, de nouvelles expériences de chaleur spécifique sous champ, pour vérifier qu'il ne s'agit pas d'un artefact expérimental. Ce pic devrait, tout comme la susceptibilité, être indépendant du champ.

En second lieu, nous nous sommes intéressés au régime ferromagnétique de la seconde couche solide d' ^3He , dont la structure aux plus fortes densités est incommensurable. Nous avons pu résoudre deux contributions au signal magnétique : des spins ferromagnétiques et des spins presque paramagnétiques. Notre analyse montre que l'ensemble des résultats dans ce régime peut se comprendre comme la coexistence simple de ce groupe de spins ferromagnétiques, avec d'une part la phase $\frac{4}{7}$, et d'autre part un groupe de spins localisés quasi-paramagnétiques, dont les propriétés sont l'objet d'une étude soignée. Nous montrons également la cohérence des résultats obtenus sur différents substrats.

Nous avons pu mettre en évidence l'effet d'une taille finie sur la susceptibilité dans la phase ferromagnétique, en fabriquant pour la première fois des assemblées de spins de taille variable, des " nanoclusters ". Le nombre de spins impliqués dans ces groupements de dimensions nanométriques devient ainsi presque comparable à celui des simulations numériques, et des calculs exacts.

Pour poursuivre cette étude, nous pouvons proposer différentes voies expérimentales :

- En se basant sur nos résultats, il est possible de réaliser de nouvelles expériences aux alentours de " l'anomalie ferromagnétique ", avec d'autres ratios $^3\text{He}/^4\text{He}$, afin d'étudier très finement la phase ferromagnétique seule.
- Il serait alors possible d'extraire les comportements en champ magnétique et en taille finie de ces assemblées ferromagnétiques bien définies, et de les comparer directement aux résultats théoriques. Notre étude est un précurseur de ce type d'analyse.
- Une visualisation directe de ces " nanoclusters " serait envisageable, via des techniques de microscopie tunnel (STM).

Tout au long de notre discussion, nous avons pu interpréter les résultats sans faire intervenir de couplage entre l' ^3He solide et l' ^3He liquide promu dans les couches supérieures.

Nous avons pu résoudre la contribution au signal magnétique des spins localisés par les défauts du substrat. Selon notre analyse, ils n'influencent pas le reste des atomes de la phase solide, mais leur prise en compte est indispensable dans la compréhension quantitative des résultats.

Enfin, nous nous sommes intéressés aux couches d' ^3He adsorbées au-delà de la deuxième couche solide. L'analyse des données de Bäuerle [201] 1996, ainsi que notre interprétation de l'origine des spins presque paramagnétiques, montrent que la troisième couche d' ^3He sur graphite solidifie en une phase très fortement ferromagnétique.

L'étude d'une tricouche d' ^3He liquide, sur trois couches d' ^4He , nous a également permis de fixer une nouvelle borne supérieure à la superfluidité 2D de l' ^3He , si tant est qu'elle existe réellement. Aucune signature RMN particulière n'est observée au-dessus de $120\,\mu\text{K}$, en faible champ magnétique.

Pour poursuivre cette étude, nous pouvons proposer différentes voies expérimentales :

- Le liquide pourrait avoir un rôle dans ce ferromagnétisme très prononcé (via un mécanisme indirect). Il est clair que de nouvelles expériences dans cette gamme de densité, sur deux couches d' ^4He , sont nécessaires. Notre travail fixe les limites, en quantités d' ^3He et d' ^4He , de la zone du diagramme de phases à étudier.
- Il est possible d'envisager de nouvelles mesures visant à mettre en évidence la superfluidité des films atomiques d' ^3He . L'amélioration de notre expérience passe évidemment par l'obtention de températures encore plus faibles. Aussi, on peut chercher à étudier l'influence du champ magnétique sur le possible appariement des Fermions.

Certains de ces travaux prolongeant notre travail de thèse sont en cours, ou planifiés. Ils devraient dans un futur proche permettre de compléter l'étude de ce système remarquable.

Troisième partie

^3He confiné dans l'aérogel

10.1 *Hélium massif et confinement*

Au-dessus de quelques Kelvin, l' ^3He se comporte comme un gaz classique, décrit par une statistique de Boltzman. Sa chaleur spécifique est constante¹, et son aimantation (ou sa susceptibilité magnétique) est celle d'une assemblée de spins nucléaires $S = 1/2$ paramagnétiques².

Lorsqu'on abaisse la température, des caractéristiques nouvelles apparaissent, signature directe de la mécanique quantique. Le diagramme de phases de l' ^3He en champ magnétique nul est présenté en fig. 10.1. Au-dessous de quelques Kelvin, l' ^3He liquéfie, formant ce que l'on appelle un liquide de Fermi. Même aux plus basses températures, l' ^3He ne solidifie pas sous sa pression de vapeur saturante, et il faut avoir recours à une trentaine de bar pour former de l' ^3He solide. Cette propriété surprenante s'interprète en mécanique quantique par l'énergie de point zéro très élevée des particules. L' ^3He liquide est un fluide quantique. Au alentours du mK, l' ^3He subit une transition de phases vers un état superfluide aux propriétés très riches. L'appariement des Fermions en paires de Cooper se fait dans un état de spin $S = 1$ et de moment angulaire $L = 1$. C'est ce que l'on nomme un appariement de type p , par analogie avec la classification des orbitales électroniques d'un atome, du même type que l'appariement des électrons dans les supraconducteurs non conventionnels, mais bien différent de celui de type s ($S = 0$, $L = 0$) des supraconducteurs conventionnels. Expérimentalement deux phases superfluides sont stables, la phase B ($^3\text{He}-B$) et la phase A ($^3\text{He}-A$) à haute pression.

L' ^3He constitue le système physique le plus pur que l'on puisse étudier expérimentalement³. Cependant, il est possible d'y introduire ce que l'on pourrait appeler un " désordre

¹Loi en $C_V(T) = \frac{3}{2}Nk_B$, déduite par exemple simplement du théorème d'équipartition de l'énergie. Se référer aux cours élémentaires, par exemple Diu et al. [215].

²Suivant la loi de Curie en C/T , développement haute température de la loi de Brillouin, voir les cours élémentaires (Diu et al. [215]).

³Il n'existe pas, dans la nature, d'autres corps chimiques qui soient liquides à ces températures.

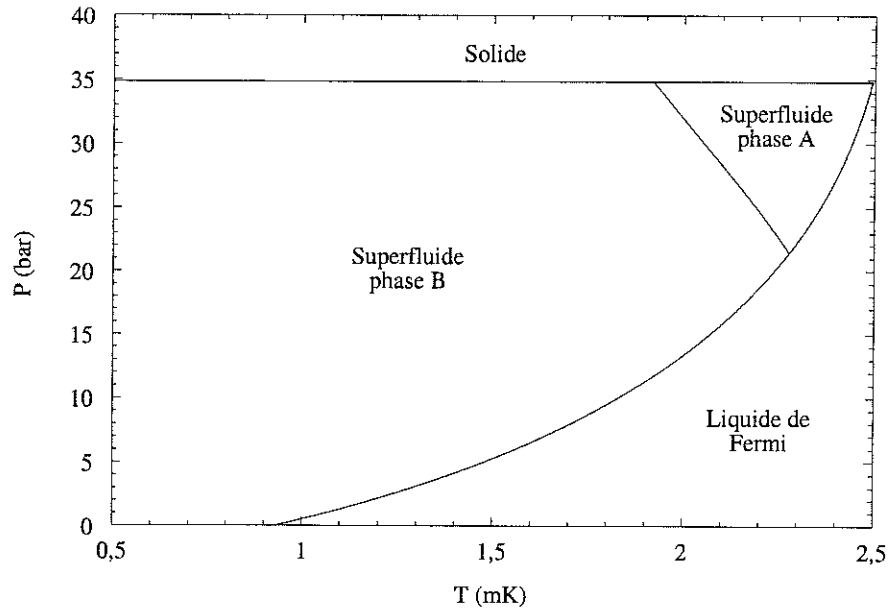


FIG. 10.1: Diagramme de phases de l' ^3He en champ magnétique nul, d'après Vollhardt et Wölfle [222] (données par Halperin et al. [125]). A haute température (plus de quelques Kelvin), l' ^3He est gazeux. Il se condense au-dessous pour former un liquide de Fermi, qui est dégénéré aux plus basses températures (supérieures à quelques mK). Si l'on refroidit encore le système, l' ^3He subit une transition de phases vers deux états superfluides, nommés *A* et *B*, aux propriétés très riches.

contrôlé », afin d'étudier l'effet des impuretés sur les liquides de Fermi et les superfluides (supraconducteurs). La superfluidité de l' ^3He est en effet intimement liée à la supraconductivité non conventionnelle, où le dopage par des impuretés joue un rôle majeur.

De nombreuses expériences de confinement de l' ^3He dans divers matériaux ont été réalisées, nous en donnons une brève revue en section 7.1. Remarquons que ce sont originellement ces études de confinement qui ont donné lieu à la découverte du magnétisme des couches solides adsorbées. Ces couches solides font l'objet de nos travaux expérimentaux du chapitre 8. Dans la suite de ce développement, nous commenterons à nouveau ces expériences, les plus récentes d'entre elles, lorsque cela s'avèrera à propos.

Une nouvelle classe de matériaux est à l'heure actuelle disponible pour ce type d'études : ce sont les aérogels de silice.

Nous nous proposons de décrire dans cette section les différentes longueurs caractéristiques impliquées dans la physique de l' ^3He . En section 10.2, nous présentons les caractéristiques des aérogels de silice, et leur propres échelles de longueur.

Nous verrons alors que les échelles de longueur caractérisant l' ^3He et les aérogels de silice sont du même ordre (la centaine de nanomètres), dans une certaine gamme de températures. Ainsi, les aérogels sont de bons candidats pour l'étude de l'effet des im-

puretés sur les propriétés physiques de l' ^3He .

10.1.1 Liquide de Fermi

La caractéristique première d'un liquide de Fermi est d'être régi par la statistique de Fermi-Dirac, donnant lieu au principe d'exclusion de Pauli : deux Fermions ne peuvent se trouver dans le même état quantique. La première description théorique pertinente de ce système est due à Sommerfeld, qui a repris les arguments que Drude avait avancés pour un gaz classique de particules, et qu'il a adaptés au cas de la mécanique quantique. C'est la théorie du gaz de Fermi idéal, présentée dans les ouvrages élémentaires (Kittel [212]). Afin d'utiliser des notations homogènes sur l'ensemble de ce manuscrit, nous reprenons dans ce chapitre les formules élémentaires.

En quelques mots⁴, les Fermions remplissent les états quantiques de spin σ et de vecteur d'onde $\vec{k}$ de façon isotrope dans l'espace des $\vec{k}$, jusqu'à une limite k_F (correspondant à une énergie $E_F = \hbar^2 k_F^2 / (2m)$). Cette limite s'appelle la surface, ou sphère de Fermi. La densité d'états sur la surface de Fermi, soit le nombre d'états quantiques par unité de volume et d'énergie, est donnée par $N_F = \frac{\sqrt{2}}{\pi^2} \frac{m^{3/2}}{\hbar^3} \sqrt{E_F}$. Au voisinage de cette surface, un Fermion se déplace avec une vitesse $v_F = \hbar k_F / m$. On a :

$$\begin{aligned} k_F &= \left(3\pi^2 \frac{N}{V} \right)^{1/3} \\ v_F &= \frac{\hbar}{m} \left(3\pi^2 \frac{N}{V} \right)^{1/3} \\ E_F &= \frac{\hbar^2}{2m} \left(3\pi^2 \frac{N}{V} \right)^{2/3} \\ N_F &= \frac{1}{\pi^2} \frac{m}{\hbar^2} \left(3\pi^2 \frac{N}{V} \right)^{1/3} \end{aligned}$$

Ces paramètres ne dépendent que de la masse m des Fermions et de la densité volumique N/V de l'assemblée.

On doit à Landau [108] 1956 l'introduction, de façon phénoménologique, des interactions entre Fermions dans la description des propriétés physiques de ces liquides. Nous renvoyons à Pines et Nozières [220] pour une description générale de cette théorie, et à Wilks [221], Vollhardt et Wölfle [222] et Halperin et al. [223] pour son application à l' ^3He .

⁴L'ensemble des formules présentées dans cette section se réfère à un liquide de Fermi $S = 1/2$ tridimensionnel, enfermé dans une "boite cubique". Les formules, ainsi que les coefficients numériques sont à modifier pour les expressions des fluides de Fermi à 2D.

La force du raisonnement de Landau est d'imaginer que l'on puisse " allumer " les interactions, depuis l'état de fluide de Fermi idéal, par un processus continu adiabatique⁵. Tant qu'il ne se produit pas de " catastrophes ", comme la condensation de plusieurs états en un état quantique macroscopique (superfluidité), le nombre et la hiérarchie des états du système sont conservés, et l'on peut définir une bijection exacte entre le spectre énergétique du système idéal et le spectre du système faiblement interagissant.

En effet, force est de constater qu'il est possible de décrire les états du système réel à l'aide des nombres d'occupation affectés aux états du système idéal. Une particule ajoutée au système idéal, dans un état au-delà de k_F , correspond alors à ce que l'on nomme une quasi-particule du système réel : un état excité en plus du fondamental. De même, retirer une particule du système idéal au-dessous de k_F laisse un trou, qui correspond à un quasi-trou dans le système réel. C'est là la correspondance un-un dont nous parlions ci-dessus. A la suite de cette constatation, le cœur de la théorie de Landau est l'introduction des interactions sous la forme d'une fonctionnelle de l'énergie libre totale :

$$F - F_0 = \sum_{\vec{k}, \sigma} (\mathcal{E}_{\vec{k}, \sigma} - E_F) + \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}, \sigma, \vec{k}', \sigma'} f_{\vec{k}, \sigma, \vec{k}', \sigma'} \delta n_{\vec{k}, \sigma} \delta n_{\vec{k}', \sigma'} + O(\delta n^3)$$

qui n'est rien d'autre que le développement au second ordre (en fonction des nombres d'occupations $n_{\vec{k}, \sigma}$) de l'énergie libre totale. Evidemment, cette approche n'est valable qu'aux plus basses températures. Numériquement, il s'agit⁶ de $T \ll 100$ mK, on dit que dans cette gamme le liquide de Fermi est dégénéré.

Pour chaque quasi-particule, décrite par la variation $\delta n_{\vec{k}, \sigma}$ de son nombre d'occupation, on définit donc une énergie $\mathcal{E}_{\vec{k}, \sigma}$, qui a formellement pour des raisons de continuité la même écriture que celle des particules libres. De même, on chiffre les interactions à l'aide de l'amplitude $f_{\vec{k}, \sigma, \vec{k}', \sigma'}$.

Du fait de l'ensemble des propriétés de symétrie du problème, il est confortable de décomposer l'amplitude $f_{\vec{k}, \sigma, \vec{k}', \sigma'}$ en fonction de l'alignement relatif des spins des quasi-particules interagissantes (parallèles s ou antiparallèles a), et en fonction de l'angle que forment $\vec{k}$ et $\vec{k}'$ (à l'aide des polynômes de Legendre, indicés l). L'ensemble des propriétés physiques se réécrivent, en reprenant les conventions du gaz idéal, à l'aide des coefficients F_l^x ($l = 0 \dots +\infty$, $x = s$ ou $x = a$) ainsi introduits. Ces paramètres sont intrinsèques à l'³He et ne dépendent que de sa densité, c'est-à-dire de la pression appliquée sur le fluide.

Il en découle pour la vitesse de ces quasi-particules à la surface de Fermi, et pour leur

⁵C'est ce que l'on nomme un " Gedankenexperiment ", de l'Allemand " expérience en pensée ".

⁶Se référer aux valeurs typiques des températures de Fermi, définies dans la suite.

énergie, en champ magnétique $|\vec{B}|$ faible :

$$\mathcal{E}_{\vec{k},\sigma} = \frac{\hbar^2 |\vec{k}|^2}{2m^*} - g_N \mu_N \sigma |\vec{B}|$$

$$v_F^* = v_F \frac{m}{m^*}$$

où $g_N \mu_N S$ est le moment magnétique nucléaire de l' ^3He (correspondant à son spin $S = 1/2$ nucléaire, et $\sigma = \pm 1/2$ sont les deux états de projections, valeurs numériques dans le Handbook [209] et l'annexe A). Ces quasi-particules, également Fermions $S = 1/2$ toujours pour les mêmes raisons de continuité, caractérisées par l'énergie de Fermi E_F et le vecteur d'onde k_F du système idéal, ont une masse m^* modifiée par rapport à la masse nue m des atomes d' ^3He . On dit que l'on a " habillé " les particules de l'interaction.

Dans notre discussion, nous faisons référence aux propriétés thermodynamiques⁷ :

$$C_V(T) = \frac{\pi^2}{3} N k_B \frac{T}{T_F^*}$$

$$\chi_n = \frac{N}{V} \frac{(g_N \mu_N S)^2}{k_B} \frac{1}{T_F^{**}}$$

pour une densité (pression) donnée. La valeur constante de la susceptibilité est souvent appelée susceptibilité de Pauli. Ces équations sont exactement celles du gaz de Fermi idéal, où l'on a simplement substitué la température de Fermi $T_F = \frac{2}{3} E_F / k_B$ par les températures de Fermi effectives (dites étoile et double étoile), renormalisée par les interactions :

$$T_F^* = T_F \frac{m}{m^*}$$

$$T_F^{**} = T_F \frac{m}{m^*} (1 + F_0^a)$$

sachant que $m^*/m = 1 + \frac{1}{3} F_1^s$. Notons enfin que les paramètres de Landau servent également de point de départ aux évaluations chiffrées des propriétés particulières des phases superfluides.

Nous faisons également référence aux propriétés de transport de l' ^3He dans son régime liquide de Fermi. Elles se déduisent via la définition d'un temps de vol pour les quasi-particules, $\tau_{\vec{k},\sigma}$. Il se calcule à l'aide de la règle d'Or de Fermi, en se limitant (ce qui

⁷La susceptibilité est définie dans toute cette partie par $\vec{M} = \vec{M}/V = \chi \vec{B}$, $\vec{M}$ étant l'aimantation de l'assemblée de spins, et $\vec{M}$ son moment magnétique total. L'indice n utilisé ici rappelle qu'il s'agit de la phase normale (et non superfluide). Pour des spins $S = 1/2$, l'expression de χ correspond exactement à l'expression haute température $\frac{N}{V} (g_N \mu_N)^2 S(S+1)/(3k_B T)$, où l'on a simplement substitué T par T_F^{**} . Dyugaev [51] 1990 a d'ailleurs proposé, sur la base d'arguments de symétrie, une loi phénoménologique simple en $C/\sqrt{T^2 + T_F^{**2}}$ pour relier ces deux régimes.

est licite à basse température) aux collisions binaires, et l'on montre que ce temps n'est raisonnablement grand qu'au voisinage de la sphère de Fermi : le concept de quasi-particule n'est pertinent que pour les excitations de faible énergie, ce que l'on attendait par ailleurs. Il apparaît donc que toutes les quasi-particules ont la même vitesse, simplement v_F^* . Pour des raisons de symétrie évidentes, ce temps de vol est indépendant de $\hat{k}$ (direction de $\vec{k}$) et σ , et on l'écrit simplement τ_0 .

Si l'on définit un libre parcours moyen l_0 pour les quasi-particules, qui s'écrit simplement $v_F^* \tau_0$, la théorie cinétique des gaz apporte, pour respectivement la conductibilité thermique, la viscosité et le coefficient de diffusion (de spin) :

$$\kappa = \frac{1}{3} C_V v_F^* l_\kappa$$

$$\eta = \frac{1}{5} \rho v_F^* l_\eta$$

$$D_\sigma = \frac{1}{3} v_F^* l_\sigma$$

où les longueurs impliquées se déduisent de l_0 via des préfacteurs numériques dus aux calculs exacts des intégrales de collisions mises en jeu :

$$l_\kappa = l_0 f_\kappa(\lambda_{1-}^s)$$

$$l_\eta = l_0 \frac{m^*}{m} f_\eta(\lambda_{2+}^s)$$

$$l_\sigma = l_0 (1 + F_0^a) f_\eta(\lambda_{1+}^s)$$

Nous utilisons les notations de Vollhardt et Wölfle [222]. ρ est la densité massique, et les fonctions $f_x(\lambda)$ (avec $x = \kappa$ ou $x = \eta$ suivant le canal collisionnel sondé) correspondent à des nombres proches de 1. Ainsi, la mesure des propriétés de transport permet de remonter (du moins en principe) au libre parcours moyen (géométrique) l_0 , défini au niveau de la sphère de Fermi.

Le calcul apporte $l_0 = v_F^* \frac{64\hbar}{\pi^3} \langle W \rangle_a^{-1} E_F / (k_B T)^2$ (notations de Vollhardt et Wölfle [222]), où la moyenne $\langle W \rangle_a^{-1}$ chiffre la probabilité de transition d'un état à un autre lors de la collision inélastique de deux quasi-particules, et dépend a priori de la densité (de la pression appliquée), tout comme les paramètres λ . Même si le calcul explicite des paramètres $\langle W \rangle_a^{-1}$, $f_\kappa(\lambda_{1-}^s)$, $f_\eta(\lambda_{2+}^s)$ et $f_\eta(\lambda_{1+}^s)$ est au-delà de la théorie de Landau⁸, et nécessite un modèle théorique microscopique, il apparaît clairement qu'aux plus basses

⁸En toute rigueur, c'est le calcul des coefficients λ qui est au-dehors de la théorie de Landau, puisqu'ils dépendent directement, tout comme l_0 , de l'interaction W donnée a priori. Cette interaction est également comprise, d'une façon compliquée, dans les paramètres F_i^x .

températures le libre parcours moyen peut devenir relativement grand. Typiquement, les valeurs expérimentales donnent $l_0 \approx 10/T^2 \mu\text{m}$ si T est en mK, pour des pressions de l'ordre de 15 bar (voir Vollhart et Wölflé [222]).

En premier lieu, nous nous attendons donc à voir, du fait du confinement, un effet de saturation du libre parcours moyen aux plus basses températures, définissant une (des) longueur(s) caractéristique(s) pour l'aérogel. Ce point amène à s'interroger naturellement sur la nature de l'interaction entre les quasi-particules du liquide et les atomes adsorbés sur le réseau de silice (formant des couches plus ou moins bien définies, discussion en section 7.1 et dans la suite). Cette idée est soulevée plus avant dans la discussion de la section suivante, concernant le superfluide.

En second lieu, on peut se demander si le confinement ne va pas modifier les paramètres de Landau eux-mêmes, ou, pourquoi pas, changer la nature même du fluide. Pour chercher à répondre à cette question la seule autre échelle de longueur que le modèle contienne est $2\pi/k_F$, typiquement de l'ordre de la distance entre atomes du liquide. Cette longueur est une longueur atomique, qui évidemment ne sera pas affectée par la présence de l'aérogel. En ce sens, le caractère liquide de Fermi est robuste, ce qui est d'ailleurs présupposé dans la théorie de Landau.

Cependant, la vraie longueur qu'il faudrait réussir à chiffrer est la taille d'une quasi-particule de Landau (nous faisons ici un parallèle direct avec la taille des quasi-particules de Bogoliubov, dans la phase superfluide, donnée par ξ_0 à température nulle, voir la section suivante). Malheureusement, ce paramètre est au-dehors de la théorie phénoménologique de Landau, et nécessite un modèle microscopique des interactions. Nous concluons donc que du moins en principe (même si c'est peu probable), si cette taille correspond aux dimensions typiques caractérisant l'aérogel, il est possible d'avoir un effet sur les paramètres de Landau du fait du confinement (problème originellement soulevé dans la thèse de Chen [204] 1999). Nous revenons sur cette question, à l'aide de nos résultats et de ceux de Triqueneaux [206] 2001 dans la suite.

10.1.2 ^3He superfluide

Le cas du superfluide est bien plus riche et complexe, de nombreuses longueurs caractéristiques jouant un rôle dans la physique du système. Nous nous proposons d'en donner une brève introduction, et renvoyons à Vollhardt et Wölflé [222] pour une discussion complète.

Au-dessous d'une température critique T_C de l'ordre du mK, l' ^3He subit une transition de phases vers un état superfluide (Osheroff et al. [110] 1972, Alvesalo et al. [111] 1973). Dans cette phase, les Fermions s'apparient pour former ce que l'on nomme des paires de Cooper. L'ensemble des mesures expérimentales montre sans ambiguïté que cet appariement est du type p , c'est-à-dire à $S = 1$ (moment cinétique de spin de la paire) et $L = 1$ (moment cinétique orbital de la paire).

Au-dessus de T_C , le paramètre d'ordre $\langle A \rangle$ qui décrit cette phase (plus précisément sa valeur moyenne sur le système) est par définition nul. Au-dessous de T_C , il prend une valeur finie. Du fait de la structure interne compliquée des paires de Cooper formées, il s'agit d'une matrice 3×3 à coefficients complexes.

En effet, le paramètre d'ordre se déduit naturellement des amplitudes (complexes) $\psi_{\uparrow\uparrow}(\vec{k})$, $\psi_{\downarrow\downarrow}(\vec{k})$ et $\psi_{\uparrow\downarrow,\downarrow\uparrow}(\vec{k})$ des différentes composantes, notées respectivement, $|\uparrow\uparrow\rangle$, $|\downarrow\downarrow\rangle$ et $2^{-1/2}(|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle)$, formant l'excitation d'une paire, de vecteur d'onde $\vec{k}$.

Les expériences sont réalisées en champ magnétique $|\vec{B}|$ faible, et nous prenons arbitrairement $\vec{z}$ pour sa direction, qui définit l'axe de quantification de chaque spin nucléaire individuel. Il est commode d'introduire un vecteur $\vec{d}(\vec{k})$, donné dans l'espace des spins, et de réécrire ces amplitudes :

$$\begin{aligned}\psi_{\uparrow\uparrow}(\vec{k}) &= -d_x(\vec{k}) + id_y(\vec{k}) \\ \psi_{\downarrow\downarrow}(\vec{k}) &= +d_x(\vec{k}) + id_y(\vec{k}) \\ \psi_{\uparrow\downarrow,\downarrow\uparrow}(\vec{k}) &= +d_z(\vec{k})\end{aligned}$$

Physiquement, ce vecteur $\vec{d}(\vec{k})$ est orthogonal, en tout point de la sphère de Fermi, à la direction $\hat{s}$ de quantification du spin S des paires. Le paramètre d'ordre est alors défini par :

$$\vec{d}(\vec{k}) = [A_{\mu\nu}] \hat{k}$$

où $\hat{k}$ représente la direction du vecteur $\vec{k}$, et les $A_{\mu\nu}$ sont les neufs coefficients complexes de la matrice A du paramètre d'ordre. Il s'agit d'un cas bien différent de l'appariement s des supraconducteurs usuels ($S = 0$ et $L = 0$), où la paire de Cooper n'a pas de structure interne. Le paramètre d'ordre est alors simplement un nombre complexe. Il est de suite évident que la physique de l' ^3He recèle bien plus de subtilités que celle d'un supraconducteur classique.

La théorie BCS (issue originellement des travaux de Bardeen, Cooper et Shieffer [109])

1957) écrit le spectre des excitations de ces paires, en faible champ magnétique $|\vec{B}|$:

$$\mathcal{E}_{\vec{k},\sigma} = \left[\left(\frac{\hbar^2 |\vec{k}|^2}{2m^*} - E_F - g_N \mu_N \sigma |\vec{B}| \right)^2 + \Delta_{\vec{k},\sigma}^2 \right]^{1/2}$$

Elles sont appelées quasi-particules de Bogoliubov (du nom de l'auteur de la transformation mathématique impliquée dans leur définition). Ce sont des Fermions, de spin $\sigma = \pm 1/2$, et de masse effective⁹ m^* ; aux grandes longueurs d'onde, ces particules sont massives. En revanche sur la sphère de Fermi, (au champ magnétique, faible, près), leur énergie est non nulle et vaut $\Delta_{\vec{k},\sigma}$. Cette valeur finie correspond précisément à l'énergie nécessaire à la condensation des paires de Cooper¹⁰.

Le groupe représentant les symétries propres à l'³He liquide normal se note $SO(3)_L \times SO(3)_S \times U(1)_\phi$, respectivement le groupe des rotations continues à 3D dans l'espace direct (orbital), le groupe des rotations continues à 3D dans l'espace des spins, et le groupe caractérisant la dégénérescence de la phase globale, appelée symétrie de jauge. L'important est de noter que ces symétries peuvent être brisées individuellement, mais aussi de façon relative. Et effectivement, ce sont ces brisures relatives de symétrie qui caractérisent l'³He superfluide.

Pour un appariement de type p , il existe formellement onze formes possibles pour le paramètre d'ordre (Barton et Moore [112] 1974). Cependant en champ magnétique faible¹¹, seules deux phases sont stables expérimentalement, nommées A et B (Osheroff et al. [110] 1972, voir fig. 10.1). La transition superfluide est du deuxième ordre, alors que la transition $A - B$ est du premier ordre. Elles ont été identifiées comme étant celles proposées par Anderson, Brinkman et Morel [113] 1961 (phase dite ABM) pour la phase A , et comme étant celle de Balian et Werthamer [114] 1963 (phase dite BW) pour la phase B .

En champ magnétique nul (et volume infini), il n'y a pas de direction privilégiée extérieure à l'³He, et de plus le gap est indépendant du spin σ .

⁹Comme nous le précisons dans la suite, cette transition vers la superfluidité est du deuxième ordre. Ainsi, le gap $\Delta_{\vec{k},\sigma}$ tend vers zéro lorsque T tend vers T_C continûment. La relation de dispersion $\mathcal{E}_{\vec{k},\sigma}$ doit donc se réduire à celle des quasi-particules de Landau en $T = T_C$, ce qui implique que leurs masses effectives sont identiques, ainsi que leur spin (et donc leur nature Fermionique).

¹⁰Il ne faut pas confondre les paires de Cooper qui forment le condensat (état fondamental), et leurs excitations Fermioniques. Une image intuitive consiste à se représenter la paire comme l'appariement de deux quasi-particules de Landau. L'interaction attractive entre ces quasi-particules en est responsable, donnant lieu à l'apparition du gap $\Delta_{\vec{k},\sigma}$, les transformant en quasi-particules de Bogoliubov. Une (double) excitation est en ce sens une paire brisée.

¹¹A champ fort, une nouvelle phase (appelée $A1$) est stable. Elle se rapproche par certaines de ses caractéristiques de la phase A , et ne fait pas l'objet de cette discussion. De même, certaines caractéristiques des phases A et B sont modifiées de façon continue par le champ, et les puristes préfèrent nommer les phases A et B sous champ phases $A2$ et $B2$.

Le gap $\Delta_{\vec{k},\sigma}$ de la phase A possède un nœud aux pôles de la sphère de Fermi, suivant l'axe fixe $\hat{l}$ de quantification du moment orbital L des paires, soit $\Delta_{\vec{k},\sigma} = \Delta_0 \sin(\hat{k}\hat{l})$.

Pour la phase B , ce gap $\Delta_{\vec{k},\sigma} = \Delta_0$ ne dépend pas de la direction du vecteur d'onde $\hat{k}$ de l'excitation, et on l'appelle souvent phase quasi-isotrope (les paires étant elle-mêmes anisotropes, contrairement à l'appariement de type s). En chaque point de la sphère de Fermi, le vecteur $\hat{l}$ est parallèle à $\hat{k}$ (dans un langage plus imagé, on dit que les paires tournent autour de la direction de propagation).

Pour décrire de manière compacte le paramètre d'ordre A , on définit pour chacune de ces phases de nouveaux angles (ou directions vectorielles auxquelles sont associées des angles dits d'Euler), l'amplitude globale étant simplement donnée par le gap Δ_0 .

Pour la phase A :

$$A_{\mu\nu} = \Delta_0 d_\mu (m_\nu + i n_\nu)$$

La direction $\hat{d}$ est définie dans l'espace des spins. Dans ce cas, $\hat{d}$ est constant sur la sphère de Fermi, et simplement $d_x = 0$; la direction $\hat{d}$ est donc donnée par un seul angle, qui brise la symétrie par rotation dans l'espace des spins. Pour la phase A l'état $2^{-1/2}(|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle)$ est exclu systématiquement dans une paire, c'est-à-dire que l'appariement ne se fait que par spins parallèles (état " ESP ", Equal Spin Pairing state).

Les directions $\hat{m}$ et $\hat{n}$ sont définies dans l'espace orbital, telles que $(\hat{m}, \hat{n}, \hat{l})$ forme un trièdre orthonormé direct. Il s'agit donc de la définition de trois angles. Notons que la rotation des vecteurs $\hat{m}$ et $\hat{n}$ dans leur plan, d'un angle $+\phi$, amène $\hat{m}' + i\hat{n}' = e^{i\phi}(\hat{m} + i\hat{n})$, où $\hat{m}'$ et $\hat{n}'$ sont les vecteurs transformés. Cette écriture revient simplement à un changement de la phase globale, et caractérise la brisure de symétrie relative jauge-orbite.

Pour la phase B :

$$A_{\mu\nu} = \Delta_0 e^{i\phi} R_{\mu\nu}(\hat{n}, \theta)$$

ϕ représente une phase globale, et marque la brisure de symétrie de jauge. R est une matrice de rotation, qui déduit donc le vecteur $\vec{d}$ de l'espace des spins à l'aide du vecteur $\vec{k}$ de l'espace (réciproque) de l'espace orbital. Il s'agit de la brisure de symétrie relative spin-orbite, la rotation R étant définie par un axe $\hat{n}$ (soit deux angles d'Euler) et un angle de rotation θ . On remarque que le vecteur $\vec{d}$ n'est alors plus constant sur la sphère de Fermi. Cet état admet des termes en $2^{-1/2}(|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle)$ dans la décomposition d'une paire, et il est dit " non-ESP ".

Les propriétés du système se réécrivent entièrement en fonction du paramètre d'ordre. On remarquera que pour chaque phase superfluide il se réduit à la donnée de quatre angles,

définis en tout point de l'espace. Aussi, l'appariement ne fixe pas ces angles (ou directions), et en ce sens on peut dire que l'état superfluide est dégénéré. Cette dégénérescence est levée par des interactions bien plus faibles, auxquelles sont associées des longueurs caractéristiques. Elles donnent lieu à une structure particulière du paramètre d'ordre, en fixant ces directions, que l'on appelle texture.

Cette texture peut contenir des défauts topologiques. En effet, du fait de cette dégénérescence, différentes textures peuvent se former en différents endroits d'une cellule expérimentale, et donner lieu en se rejoignant à des objets topologiques, c'est-à-dire des défauts de la texture qui sont (méta)stables¹², et sont définis par une certaine dimensionnalité. On peut former ainsi des défauts plans (de dimension deux), ce sont des parois de domaines, des défauts linéiques (à une dimension), ce sont des vortex, ou des défauts ponctuels (de dimension zéro), ce sont alors des monopoles. Suivant que le cœur de ces défauts reste superfluide ou est forcé à devenir normal (réduction locale de l'amplitude Δ_0 du paramètre d'ordre), on les nomme non-singuliers ou singuliers respectivement. Ces défauts peuvent être composites, par exemple un vortex terminé par un monopole. L'importance de ces entités en physique moderne est largement discutée dans l'ouvrage édité par Bunkov et Godfrin [224]. Nous revenons sur ces défauts topologiques dans la suite de ce manuscrit.

Passons en revue les différentes énergies et leurs échelles de longueurs associées. La plus grande est le gap Δ_0 lui-même, qui gouverne la condensation superfluide. A ce gap est associé (dans une relation d'inverse proportionnalité) la longueur de cohérence ξ des paires de Cooper, qui dans un langage plus vague représente leur taille¹³. Aussi, cette longueur est la plus petite du problème. En théorie BCS de couplage faible entre Fermions, l'approche de Guinzburg-Landau des transitions de phases fournit, pour $T \rightarrow T_C$:

$$\begin{aligned}\Delta_0(P, T) &= a_X k_B T_C(P) \left(1 - \frac{T}{T_C(P)}\right)^{1/2} \\ \xi(P, T) &= \xi_0(P) \left(1 - \frac{T}{T_C(P)}\right)^{-1/2} \\ \xi_0(P) &= b \frac{\hbar v_F^*(P)}{k_B T_C(P)}\end{aligned}$$

avec $a_A = (\frac{10\pi^2}{7\zeta(3)})^{1/2}$, $a_B = (\frac{8\pi^2}{7\zeta(3)})^{1/2}$ pour les deux phases, $b = (\frac{7\zeta(3)}{48\pi^2})^{1/2}$ et $\zeta(3) \approx 1,20$ tabulée. On a systématiquement indiqué les dépendances (température, pression) des gran-

¹²Dans un volume infiniment grand, ils ne disparaîtront pas en un temps fini. Dans une cellule expérimentale, ils peuvent relaxer sur les surfaces, par exemple, ou à l'inverse être stabilisés dans certaines conditions expérimentales, comme dans un cryostat en rotation (Hakonen et al. [115] 1989).

¹³Cette grandeur ξ peut être définie de différentes façons, suivant les auteurs, à une constante numérique (proche de 1) près. Nous choisissons dans tout notre manuscrit la définition de Vollhardt et Wölfle [222].

deurs introduites. Typiquement, à pression nulle ξ_0 est de l'ordre de 65 nm et à la solidification de l'ordre de 10 nm. Evidemment, le gap Δ_0 s'annule à T_C et la longueur de cohérence ξ des paires diverge.

Ces excitations sont également caractérisées par un libre parcours moyen l_X (X désignant la phase A ou la phase B , comme précédemment). Dans la même limite, très proche de T_C , le calcul apporte simplement :

$$l_X(P, T) \approx l_0(P, T)$$

où l_0 est simplement le libre parcours moyen des quasi-particules de Landau, on retrouve la continuité des propriétés fondamentales.

De même, on peut s'intéresser à ces quantités dans le cas $T \ll T_C$. Le développement BCS en couplage faible apporte à basse température, pour $T \rightarrow 0$:

$$\Delta_0(P) = \overline{a_X} k_B T_C(P)$$

$$\xi(P) = \xi_0(P)$$

$$l_{A\parallel}(P, T) \approx l_0(P, T_C(P)) \left(\frac{T_C(P)}{T} \right)^4$$

$$l_B(P, T) = \frac{(2\pi)^{1/2}}{3\overline{a_B}^2} \frac{1}{W_0(P)} l_0(P, T_C(P)) e^{\frac{\Delta_0(P, T)}{k_B T}}$$

avec de la même façon que précédemment $\overline{a_A} = \frac{1}{2}\pi e^{5/6-\delta}$, $\overline{a_B} = \pi e^{-\delta}$, et $\delta \approx 0,577$ tabulée. Le gap, ainsi que la taille des paires de Cooper tendent vers une constante (exponentiellement, en toute rigueur), alors que le libre parcours moyen diverge.

Pour la phase A , seules les quasi-particules présentes au niveau des nœuds du gap vont jouer un rôle, à savoir celles se propageant parallèlement à l'axe du moment orbital $\hat{l}$. Dans le cas de la phase B , le problème est isotrope et la divergence est exponentielle. Encore une fois, W_0 est un paramètre chiffrant les interactions entre (quasi-)particules, défini de façon compliquée à l'aide des intégrales de collisions introduites dans la théorie de Landau. Il est alors clair qu'aux plus basses températures, l_X peut devenir arbitrairement grand, et même dépasser la taille de la cellule expérimentale (quelques mm) : on entre alors dans le régime dit balistique¹⁴ des quasi-particules.

En-dessous de cette énergie Δ_0 , on trouve les contributions qui orientent le paramètre d'ordre. On peut les écrire sous la forme de contributions f_X^Y à la densité (volumique)

¹⁴Dans le même temps, la densité de ces excitations décroît exponentiellement. Elle est directement mesurée par l'amortissement d'un fil vibrant à ultra-basses températures, voir la section 5.4.

d'énergie libre du superfluide (X est toujours la phase superfluide considérée, et Y le type de la contribution).

Aussi, si d'une quelconque façon, on cherche à dévier le paramètre d'ordre de sa structure stable statique, un développement au second ordre nous apprend que des forces de rappel vont chercher à le ramener à l'équilibre. On écrit simplement, en couplages faibles et dans le formalisme de Guinzburg-Landau, au voisinage de la transition :

$$f_{plié} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{5} N_F \xi_0^2 \right) \sum_{jl\mu} [(\nabla_j A_{\mu l})(\nabla_j A_{\mu l}^*) + (\nabla_j A_{\mu l})(\nabla_j A_{\mu j}^*) + (\nabla_j A_{\mu j})(\nabla_l A_{\mu l}^*)]$$

où les gradients sont pris dans l'espace orbital. Le terme $\frac{1}{5} N_F \xi_0^2$ représente la raideur du paramètre d'ordre, N_F étant la densité d'états au niveau de Fermi déjà introduite en section précédente.

Toute énergie perturbative f_X^Y permet de définir une longueur caractéristique associée ξ_X^Y sur laquelle la texture acceptera de se plier. Le plus simple est d'écrire $|\nabla_i A_{jk}| \approx \bar{\Delta} / \xi_X^Y$, et d'égaliser $f_{plié} \approx f_X^Y$, $\bar{\Delta}$ étant la moyenne quadratique¹⁵ sur $\vec{k}$ du gap $\Delta_{\vec{k},\sigma}$. Les ξ_X^Y sont les "healing lengths"¹⁶, définies dans la phase X , en toute rigueur pour T voisin de T_C , associées aux interactions Y (Vollhardt et Wölfle [222]).

La plus importante de ces interactions est l'interaction dipolaire magnétique. Elle est intrinsèque au système et ne peut évidemment pas être éliminée expérimentalement. Bien que pour un liquide usuel elle soit complètement négligeable, et que même pour l' ^3He -2D solide elle n'atteigne au grand maximum que des champs locaux de l'ordre de 0,5 mT (sections 4.3, et 7.6), elle est amplifiée à un niveau macroscopique par la nature cohérente de l'état quantique superfluide. Elle représente effectivement des champs locaux de l'ordre de 3 mT, comparables aux champs les plus faibles utilisés en RMN. L'importance de cette interaction est qu'elle est à longue distance, et couple les degrés de liberté de spin et d'orbite.

Partant de l'Hamiltonien dipolaire (sections 4.1, puis 7.6), on montre que l'amplitude de cette interaction est donnée par $g_D = \lambda_D N_F \bar{\Delta}^2$, les conventions étant les mêmes que précédemment, et λ_D étant une valeur numérique sans dimensions, presque constante en pression ($\lambda_D \approx 5 \cdot 10^{-7}$).

Pour la phase A , on a :

$$f_A^D(P, T) = -\frac{3}{5} g_D(P, T) (\hat{d}\hat{l})^2$$

¹⁵Evidemment pour la phase B quasi-isotrope $\bar{\Delta} = \Delta_0$. Pour la phase A , un calcul simple apporte $\bar{\Delta} = \sqrt{\frac{2}{3}} \Delta_0$.

¹⁶Mot à mot "longueur de cicatrisation", rappelant le fait que l'on a tiré la texture hors de son équilibre.

$$\xi_A^D(P) = \xi_0(P) \left(\frac{1}{4\lambda_D} \right)^{1/2}$$

La configuration statique stable, en volume infini, correspond donc à $\hat{d}$ et $\hat{l}$ colinéaires. Cette énergie s'annule à T_C , ce qui montre que la raideur se relâche à mesure que l'on approche la transition, on peut dire que la texture se "ramollit". En revanche, l'échelle de longueur ξ_B^D sur laquelle se plie le paramètre d'ordre ne dépend pas de la température. Pour la phase B , on a :

$$f_B^D(P, T) = \frac{8}{5} g_D(P, T) \left(\cos \theta + \frac{1}{4} \right)^2$$

$$\xi_B^D(P) = \xi_0(P) \left(\frac{1}{6\lambda_D} \right)^{1/2}$$

L'énergie dipolaire ne dépend pas de la direction $\hat{n}$. L'état statique stable, en volume infini, est simplement donné par $\theta = \cos^{-1}(-1/4) \approx 104^\circ$ modulo 360° , nommé angle de Leggett. La dépendance en température de cette énergie est la même que pour la phase A , et la longueur caractéristique est encore une fois constante.

Typiquement, ξ_X^D est de l'ordre de $40 \mu\text{m}$ à pression nulle et $10 \mu\text{m}$ à la solidification.

La seconde contribution d'importance est due au couplage des spins avec le champ magnétique $\vec{B}$ de mesure. Ce champ, qui du moins en principe peut être rendu très faible expérimentalement, n'en est pas moins important puisqu'il tend à orienter la partie spin du paramètre d'ordre, et ce sur l'ensemble de la cellule expérimentale.

Pour la phase A :

$$f_A^{\vec{B}}(P, T) = \frac{1}{2} \Delta\chi(P, T) (\hat{d} \vec{B})^2$$

$$\xi_A^{\vec{B}}(P) = \xi_0(P) \frac{B_A(P)}{|\vec{B}|}$$

$$B_A(P) = c_A \frac{k_B T_C(P)}{g_N \mu_N}$$

avec $c_A = 2\pi \left[\frac{6(1+F_0^a)}{35\zeta(3)} \right]^{1/2}$, et $\Delta\chi$ l'anisotropie de la susceptibilité (que nous explicitons dans la suite), qui près de T_C a la même dépendance en température que $\bar{\Delta}^2$. Les autres grandeurs ont déjà été définies, et l'on a omis la dépendance en pression de F_0^a car ce paramètre est presque constant, de l'ordre de $-3/4$ sur toute la gamme (à $\pm 3\%$, Triqueneaux [206] 2001). Encore une fois, la longueur caractéristique est constante en température, et l'énergie tend vers zéro à T_C . La configuration stable est simplement $\hat{d}$ orthogonal à $\vec{B}$.

Pour la phase B :

$$f_B^{\vec{B}}(P) = -\frac{5}{12} \lambda_D N_F(P) \left(\frac{g_N \mu_N}{1 + F_0^a} \right)^2 (\hat{n} \vec{B})^2$$

$$\xi_B^{\vec{B}}(P, T) = \xi_0(P) \left(1 - \frac{T}{T_C(P)}\right)^{1/2} \frac{B_B(P)}{|\vec{B}|}$$

$$B_B(P) = \frac{c_B}{\lambda_D^{1/2}} B_A(P)$$

où $c_B = [\frac{2(1+F_0^a)}{5}]^{1/2}$. Cette fois, l'énergie est constante en température. Ainsi, la longueur caractéristique $\xi_B^{\vec{B}}$ décroît à mesure que l'on approche T_C . La configuration stable est simplement $\hat{n}$ colinéaire à $\vec{B}$.

Typiquement, $c_A \approx 1,19$ et B_A est de l'ordre de 0,8 Tesla à pression nulle, et 2 Tesla à la solidification. c_B est de l'ordre de 0,3 ce qui amène pour des champs de mesures de 30 mT environ des longueurs caractéristiques $\xi_A^{\vec{B}}$ (respectivement $\xi_B^{\vec{B}}$ à $T = 0$), de $1,7 \mu\text{m}$ ($0,7 \text{ mm}$) à pression nulle, et $0,7 \mu\text{m}$ ($0,3 \text{ mm}$) à la solidification. Pour la phase A , $\xi_X^{\vec{B}}$ reste inférieur à ξ_X^D , alors que dans la phase B dès que l'on descend légèrement au-dessous de T_C , $\xi_X^{\vec{B}}$ surpasse largement ξ_X^D et se compare aux dimensions de la cellule expérimentale.

Ces longueurs amènent naturellement à introduire la dernière interaction d'importance : l'orientation au niveau des surfaces, qui usuellement est due à la taille finie des cellules expérimentales.

Qualitativement, une surface a tendance à forcer $\hat{l}$ orthogonal à elle, l'idée étant que l'axe $\hat{l}$ représente l'axe de la rotation de la paire sur elle-même. Pour la phase A , dans une cellule de dimension caractéristique $\mathcal{L}$, la courbure du paramètre d'ordre sur $\mathcal{L}$ est toujours préférable, et de ce fait $\hat{l}$ est rigidement fixé par la surface.

Pour la phase B , la situation est plus complexe car le couplage spin-orbite ne garantit pas nécessairement que $\hat{l}$ soit orthogonal à la surface. De ce fait, le paramètre d'ordre décroît au voisinage de la surface d'une façon compliquée, et au premier ordre celle-ci force $\hat{n}$ à lui être orthogonal. La solution de ce problème est difficile et implique également le champ magnétique ; le cas canonique est celui de la texture " flare-out¹⁷ " obtenue pour un cylindre dont l'axe est parallèle au champ $\vec{B}$ (Smith et al. [116] 1977, Hakonen et Volovik [117] 1982). La longueur associée à cette orientation du paramètre d'ordre est dans la gamme du mm, comparable à la taille de la cellule expérimentale.

Nous avons passé en revue les différentes énergies et leur longueurs caractéristiques associées. Il nous faut donner à présent les propriétés magnétiques de ces phases superfluides détectées en RMN (technique exposée brièvement en chapitre 4). Dans le cas de notre dispositif expérimental où la bobine de détection est orthogonale au champ magnétique (chapitre 3), nous obtenons ce que l'on nomme la résonance transverse (orthogonale au

¹⁷Signifie mot à mot " évasée par le bas ".

champ magnétique $\vec{B}$, nous indiquons les grandeurs par $\perp$).

Pour la susceptibilité χ_A de la phase A :

$$\chi_{A\parallel}(T) = \chi_n \frac{1 + F_0^a}{1 + F_0^a Y_0(T)} Y_0(T)$$

$$\chi_{A\perp}(T) = \chi_n$$

où $\chi_{A\parallel}$ et $\chi_{A\perp}$ désignent donc les susceptibilités mesurées parallèlement (longitudinale) au champ $\vec{B}$, ou perpendiculairement à lui (transverse). Le magnétisme est anisotrope, et on définit pour en rendre compte $\Delta\chi$ comme $\Delta\chi = \chi_{A\perp} - \chi_{A\parallel}$. χ_n est la susceptibilité dans l'état normal, présentée en section précédente. La fonction Y_0 s'appelle fonction de Yoshida (dépendant du gap Δ_0 , la dépendance en pression étant donc implicite), et mesure la densité d'excitations thermiques. Elle tend vers 1 quadratiquement à T_C , et tend exponentiellement vers 0 à $T \rightarrow 0$. Les expressions présentées dans ce paragraphe se limitent aux corrections dues au coefficient de Landau d'ordre le plus bas.

Pour la susceptibilité χ_B de la phase B :

$$\chi_B(T) = \chi_n (1 + F_0^a) \frac{2 + Y_0(T)}{3 + F_0^a (2 + Y_0(T))} \quad (10.1)$$

Cette fois la susceptibilité est la même dans toutes les directions, Y_0 étant à nouveau la fonction de Yoshida. On obtient une décroissance de la susceptibilité magnétique lorsque la température tend vers zéro, de sa valeur nominale de liquide de Fermi χ_n , à environ 1/3 de cette valeur pour toute pression.

La RMN est une sonde très sensible, qui permet de remonter aux très faibles champs locaux (de l'ordre de $0,5 \cdot 10^{-3}$ mT, section 4.2). Dans le cas des deux phases superfluides, l'interaction dipolaire donne lieu à un décalage des raies de résonance, qui s'écrit dans la limite des faibles champs magnétiques¹⁸, pour la résonance transverse :

$$b_{\perp} = B_L - F(A_{\mu\nu}) \frac{(\Omega_X/\gamma)^2}{2B_L} \quad (10.2)$$

$b_{\perp}$ est le champ de résonance (transversal) vrai¹⁹, et B_L est le champ de Larmor, marquant la résonance en l'absence de décalage dipolaire (liquide normal). $\gamma = g_N \mu_N S / (\hbar S)$ est le facteur gyromagnétique de l' ^3He (voir Handbook [209] et annexe A), et on définit Ω_A , Ω_B les fréquences de Leggett, chiffrant le décalage due à l'interaction dipolaire. Elles s'écrivent

¹⁸Typiquement, les champs dipolaires sont de l'ordre de 3 mT alors que les champs de mesure sont de l'ordre de 30 mT. La correction étant quadratique, l'approximation est justifiée au niveau du %.

¹⁹Cette expression s'écrit également de façon équivalente en fréquence (via le facteur gyromagnétique γ de l' ^3He). Le signe $-$ est alors à remplacer par un $+$.

simplement en fonction des susceptibilités des deux phases et de l'énergie dipolaire g_D :

$$\Omega_A^2(P, T) = \frac{6}{5} \frac{\gamma^2}{\chi_{A\perp}} g_D(P, T)$$

$$\Omega_B^2(P, T) = 3 \frac{\gamma^2}{\chi_B} g_D(P, T)$$

Les situations idéales obtenues en volume infini amènent simplement $F(A_{\mu\nu}) = 1$ pour la phase A , et $F(A_{\mu\nu}) = 0$ pour la phase B . Toute déviation du paramètre d'ordre, c'est-à-dire toute texture présente dans la cellule expérimentale, donne lieu à une distribution de $F(A_{\mu\nu})$, et donc à une forme de raie RMN très particulière. En ce sens $F(A_{\mu\nu})$ est une signature de la texture, et en principe la mesure de la raie de résonance permet de remonter à la distribution de $A_{\mu\nu}$. En pratique, ce calcul est éminemment difficile, et seuls certains cas particuliers sont bien connus (phase A homogène entre deux plans infinis parallèles à $\vec{B}$, ou texture " flare-out " pour la phase B , par exemple). De même, un défaut topologique donne lieu à une signature particulière dans le spectre RMN (Hakonen et al. [115] 1989). Expérimentalement, les fréquences de Leggett ont été obtenues par Hakonen et al. [115] 1989.

Nous verrons dans la section suivante que les échelles de longueur caractérisant les aérogels sont du même ordre que ξ_0 . On s'attend donc en premier lieu à une modification de la superfluidité, déjà au niveau de ses paramètres $\bar{\Delta}$ et T_C , mais également peut-être au niveau de la nature même des phases superfluides présentes.

De plus, le libre parcours moyen des quasi-particules de l' ^3He massif est toujours plus grand, au-dessous de T_C , que la taille caractéristique des pores de l'aérogel. Force est donc de constater que le réseau de silice, via les collisions des quasi-particules sur ses surfaces²⁰, va altérer de façon drastique les propriétés de transport, entre autre la conductivité thermique du superfluide qui usuellement est infiniment grande aux plus basses températures. Ainsi, on peut se demander par exemple si le passage au travers de la transition est homogène sur l'ensemble de l'échantillon, ou si au contraire il donne lieu à l'apparition de toute une foule de défauts topologiques au sein de la cellule (via le mécanisme de Kibble [166] 1976). Ce point est discuté plus en détail dans la suite.

Considérant les autres échelles de longueur introduites, le seul autre phénomène pouvant avoir une importance est l'alignement de la texture par les surfaces. Leur effet, suivant la phase superfluide stabilisée, est peu clair dans un cas comme l'aérogel. En principe le paramètre d'ordre décroît au voisinage d'une surface, qui tend à l'orienter. Dans notre

²⁰Il faut garder en tête que le rapport surface/volume de l'aérogel est très grand, ce qui exprime d'une autre façon que le libre parcours moyen est limité : les quasi-particules ne peuvent manquer de rencontrer un obstacle, après un déplacement de 100 nm environ.

cas, on peut se demander comment se fait localement le couplage entre le superfluide et les couches atomiques adsorbées sur la silice (^3He ou ^4He , comme nous le verrons) : les collisions avec les quasi-particules sont-elles réellement élastiques, ou au contraire peut-on exciter des modes de surfaces d'impulsion $\vec{k}$ donné ? Peut-on générer spontanément des ondes de spin dans les cavités de l'aérogel ? Dans le cas de couches magnétiques (^3He), y a-t-il un couplage magnétique entre ces atomes adsorbés et les atomes du fluide ? Ces interactions de surface sont-elles de la même nature avant et après que les quasi-particules se soient appariées en paires de Cooper ? L'ensemble de ces points est à l'heure actuelle peu clair, des résultats d'ailleurs contradictoires étant proposés. Nous y revenons dans la suite. Une chose est cependant sûre : les sphérules de silice constituant l'aérogel (de diamètre moyen a), d'après les chiffres cités ci-après, forment un réseau très peu compact dont chaque pièce est de dimension $a \ll \xi_0$. En ce sens, il ne peut s'agir d'une interaction entre le superfluide et un " mur " macroscopique, il s'agit bien d'un ensemble de surfaces " dissoutes " dans de l' ^3He superfluide. Comparé aux autres expériences réalisées sur l' ^3He confiné (section 7.1), ce cas est inédit.

Les autres énergies jouant un rôle dans l'établissement de la texture (dipolaire et magnétique), ont des longueurs caractéristiques bien plus grandes que celles de l'aérogel. Ainsi, elles l'ignorent, et ne causent au plus qu'une légère modulation du paramètre d'ordre (à l'échelle de la dizaine de μm , ou du mm).

A l'aide des propriétés physiques mesurables décrites dans cette section, nous allons pouvoir essayer de caractériser les phases superfluides présentes dans l'aérogel. Sont-elles de type A ou B , ou complètement nouvelles, que dire de la texture d'après la structure des raies de RMN ? Peut-on croire à la présence de défauts topologiques " coincés " dans l'aérogel ? Quel rôle jouent les surfaces ?

Evidemment la nature exacte de l'aérogel va déterminer de façon cruciale toutes ces propriétés. C'est pourquoi nous donnons une brève introduction à la structure de ces matériaux ci-après.

10.2 Aérogels de silice

Les chimistes ont mis à la disposition des physiciens, à grande échelle depuis les années 1980, une nouvelle classe de matériaux pour l'étude du confinement des liquides et de l'adsorption. Ce sont les aérogels, de structure très particulière, dont la porosité²¹ extrêmement

²¹On définit la densité d d'un échantillon d'aérogel de silice comme étant le rapport de sa densité massique ρ à la densité massique de la silice ($2,200 \text{ g/cm}^3$). Ce facteur, qui correspond au rapport du

élevée se trouve dans la fourchette 80 % à 99,5 %.

10.2.1 Synthèse d'un aérogel de silice

La réalisation d'un aérogel de silice se fait, en général, en deux étapes majeures : la précipitation de la matrice de silice que l'on appelle le gel, au sein d'une solution liquide (d'eau et d'alcool), et le séchage de ce gel pour ne conserver que la structure solide. Une discussion détaillée par le groupe de Berkeley, et nombre d'informations utiles, peuvent être trouvées sur Berkeley [118].

Le principe de cette chimie dite sol-gel, est d'utiliser ce que l'on nomme un précurseur, les plus courants²² étant le tétraméthylorthoxysilane (TMOS, $\text{Si}(\text{OCH}_3)_4$) et le tétraéthylorthoxysilane (TEOS, $\text{Si}(\text{OCH}_2\text{CH}_3)_4$), qui subit une hydrolyse précipitant de l'hydroxide de silice $\text{Si}(\text{OH})_4$. Ce composé, instable, polymérise par diffusion au sein du liquide pour former la structure complexe de la matrice d'oxyde de silicium (silice) SiO_2 . Ce processus de diffusion et d'aggrégation de groupements conduit naturellement à la formation d'objets auto-similaires, notion que nous détaillons dans la suite.

Le gel obtenu en fin de réaction est lavé dans de l'éthanol pur pour en extraire toute l'eau. Cette opération est incontournable, car toute eau piégée dans la structure de silice générera un échantillon opaque, et très dense.

Le solvant est enfin, dans la deuxième et dernière étape, évacué par un procédé de séchage hypercritique. On chauffe et pressurise l'échantillon (dans un autoclave sous atmosphère de dioxyde de Carbone CO_2) au-delà du point critique de l'éthanol. Ainsi, on évite la formation d'un interface liquide-gaz qui, du fait de sa tension capillaire, détruirait partiellement la structure de l'aérogel (un tel échantillon s'appelle alors un xérogel).

La densité finale du solide formé dépend de la concentration en alcool, les quantités d'eau et de TMOS (ou TEOS) étant fixées par le stoéchiométrie²³ de la réaction.

Les réactions présentées brièvement ci-dessus sont extrêmement lentes. Aussi, on utilise souvent une catalyse acide (ajout d'acide chlorhydrique HCl) ou basique (ajout d'ammoniac NH_4OH) pour accélérer le processus. Ces catalyses ont une influence importante sur la structure de l'aérogel obtenu, mais également sur l'état de surface des agrégats que l'on agglomère (discussion ci-dessous). En effet, une catalyse acide laisse des surfaces très accidentées, alors que la catalyse basique, comme la réaction en milieu neutre, fait apparaître

volume macroscopique V de l'échantillon au volume de silice s'appelle aussi fraction volumique ϕ . La porosité est alors simplement $p = 1 - \phi$.

²²On utilise des alkoxydes de silice, évitant la formation de produits dérivés non désirés dans la solution.

²³En pratique, on utilise un léger excès d'eau pour éviter les réactions incomplètes.

des agrégats quasi-sphériques très lisses.

10.2.2 Structure d'un aérogel de silice

La structure d'un aérogel est tout à fait particulière. Nous montrons ci-dessous en fig. 10.2 (groupe de Berkeley, Ayers et al. [118]), une image prise en microscopie électronique à transmission (TEM). Sur cette image, on distingue clairement les petites sphères de silice (de l'ordre de 1 nm à 10 nm), formant un réseau de filaments enchevêtrés. Ce réseau laisse par endroits des cavités (de l'ordre de 50 nm), et la surface des sphères apparaît comme une " boule de fils ". Sur l'image ci-dessous, les sphérules sont assez nettes, c'est le cas d'un échantillon obtenu en catalyse basique. L'aspect " boule de fils " est très prononcé pour les échantillons à catalyse acide, dont la surface est très accidentée.

Il n'existe que peu de techniques permettant de remonter à des informations quantitatives

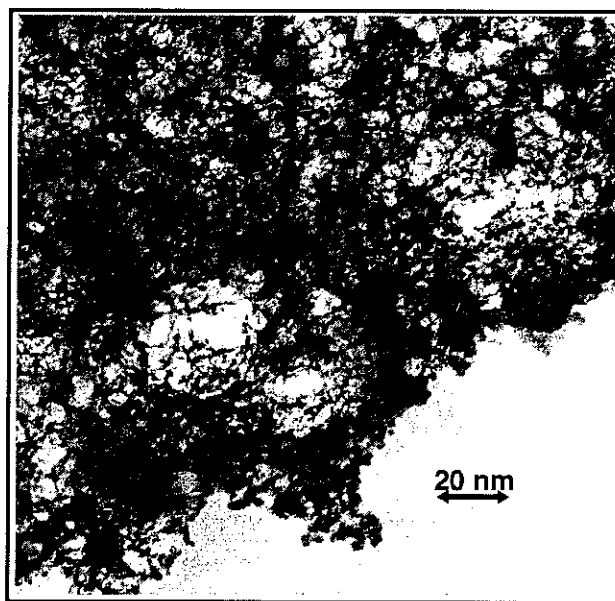


FIG. 10.2: Image obtenue pour un aérogel de silice à catalyse basique, en microscopie électronique à transmission (TEM), par le groupe de Berkeley (Ayers et al. [118]). On y distingue les sphères de silice, assez nettes, et des zones vides laissées par l'enchevêtrement des brins.

sur la structure de ces échantillons. Aussi, les caractéristiques et les longueurs sondées par chacune d'elles sont différentes. Nous tentons d'en donner brièvement une synthèse ci-dessous.

En premier lieu, les isothermes d'adsorption²⁴ permettent de remonter à la distribu-

²⁴Une isotherme d'adsorption, via la méthode BET (due à Brunauer, Emmet et Teller), permet

tion en tailles des pores dn/dr de l'aérogel, du moins pour ceux de dimension inférieure à la centaine de nm. Cette information est tirée de l'analyse de l'hystérésis dans l'adsorption/désorption du gaz, à l'aide de l'équation de Kelvin (voir par exemple le guide IUPAC [119] 1985). On obtient typiquement une distribution piquée autour de 70 nm environ.

On utilise également les méthodes de diffraction : diffraction de neutrons aux petits angles (SANS), ou diffraction X aux petits angles (SAXS). Des mesures neutroniques typiques peuvent être trouvées dans Vacher et al. [120] 1988 et [121] 1989, et des résultats en rayonnement X sont fournis par Boukenter et al. [122] 1989. Ces méthodes donnent accès à l'amplitude du facteur de structure $|S(\vec{q})|^2$, qui est la transformée de Fourier spatiale de la fonction de corrélation $P(r)$. Celle-ci chiffre la probabilité, si on se place en un point $\vec{R}$ de la matrice de silice, que le point $\vec{R} + \vec{r}$ soit également un point de la structure. Le milieu étant homogène aux plus grandes distances, et isotrope à grande échelle, $P(r)$ est indépendante de $\vec{R}$ et $\hat{r}$ (direction de $\vec{r}$). Aux courtes distances $r \rightarrow 0$, $P(r)$ tend évidemment vers 1 (on se trouve dans la bille de silice située en $\vec{R}$, dimensions nanométriques). Aux grandes échelles (plus de 50 nm environ), $P(r)$ tend simplement vers la fraction volumique ϕ : le système est désordonné. Pour la gamme des longueurs intermédiaires, $P(r)$ a une structure fractale, caractérisée par une dimension $D_{fractal}$ non-entière comprise entre 1 (les filaments) et 3 (l'espace contenant). Nous renvoyons à la discussion de Gabay [207] 2001.

Une solution alternative aux expériences de diffraction a été proposée par Devreux et al. [123] 1990. Les auteurs mesurent par RMN l'aimantation du ^{29}Si d'échantillons dopés à l'aide d'impuretés paramagnétiques. A la suite d'un pulse radiofréquence, le retour à la saturation de l'aimantation nucléaire du ^{29}Si suit une loi de puissance (et non une exponentielle), due au couplage dipolaire avec les impuretés et reflète leur distribution spatiale. Ils remontent ainsi à des paramètres semblables à ceux obtenus en diffraction.

L'interprétation de ces résultats de diffraction est complexe, et il est important de remarquer qu'elle ne s'intéresse qu'aux corrélations entre sphères de silice, et ne sonde pas l'aspect fermé ou ouvert des pores. Le réseau de pores de l'aérogel, tel qu'on le voit en fig. 10.2 est ramifié et interconnecté dans toutes les directions. Cette caractéristique est réellement ce qui est sondé dans les expériences, dynamiques, de RMN sur les fluides (voir le chapitre 11 suivant) et le gaz d' ^3He polarisé (Tastevin et al. [124] 2000). On sonde alors la distribution de taille de pores dn/dr (et non la corrélation $P(r)$), à des échelles différentes, et complémentaires des résultats en adsorption/désorption.

Une approche numérique vise à remonter à cette distribution de pores dn/dr . C'est la technique DLCA (aggrégation par diffusion limitée de "clusters"), simulant le processus

également d'assigner une surface spécifique aux aérogels. Typiquement, elle se trouve dans la fourchette $400\text{ m}^2/\text{g}$ à $1000\text{ m}^2/\text{g}$. Les gaz utilisés sont communément l'azote N_2 , et pour nous l' ^4He et surtout l' ^3He (voir la section 11.1 suivante).

d'aggrégation des groupements de silice. En fig. 10.3 nous montrons une image représentant un aérogel tiré d'une simulation DLCA (se référer à Halperin et al. [125], et Haard [208]). A nouveau, dans la gamme des longueurs intermédiaires (entre 5 nm et 50 nm), on obtient

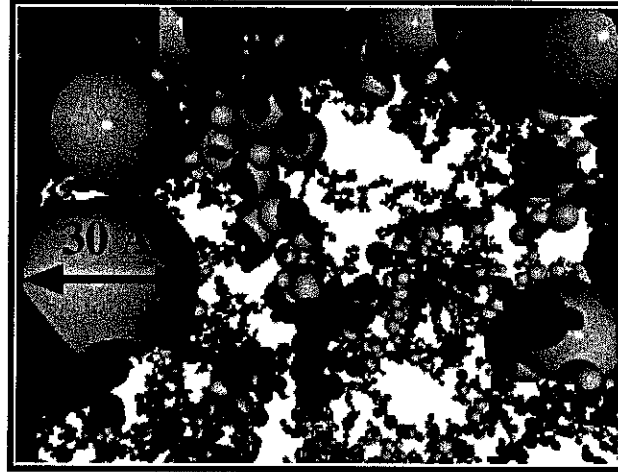


FIG. 10.3: Image d'un aérogel tiré d'une simulation DLCA (Halperin et al. [125]). La porosité de l'aérogel est de 98,5 %, et la taille moyenne d'une sphère 30 Å de diamètre. Les informations techniques relatives à l'algorithme peuvent être trouvées sur Halperin et al. [125].

une signature claire de l'ordre fractal, du même type que celui mis en évidence par les mesures de diffractions. Aux plus grandes longueurs, dn/dr tend exponentiellement vers zéro : le matériau est désordonné à grande distance, et il existe très peu de canaux, ou pores, de très grandes dimensions.

La structure d'un aérogel est localement fractale, c'est-à-dire auto-similaire dans une certaine gamme de longueurs. Elle donne lieu à une distribution de taille des pores. Ainsi, un échantillon donné se caractérise par (au moins) trois paramètres :

- En premier lieu, le diamètre moyen des sphères de silice a formant les filaments. Ce paramètre dépend fortement du type de catalyse utilisé ; en catalyse acide, les sphères sont plus petites, et en catalyse basique plus grandes (de 1 nm à 10 nm environ).
- La dimension fractale $D_{fractal}$. Expérimentalement, elle est de l'ordre de 2,5 pour les échantillons à catalyse acide ou neutre, et 1,7 pour les échantillons à catalyse basique. Encore une fois, on note l'importance du procédé de fabrication, qui influence directement le processus d'aggrégation.
- La longueur de corrélation fractale $\xi_{fractal}$. Elle chiffre la distance moyenne sur laquelle l'ordre fractal est observé. Au-delà de cette distance, l'ordre se perd exponentiellement. Ce paramètre $\xi_{fractal}$, qui dépend directement du type de catalyse utilisé et de la densité de l'échantillon, est grossièrement de l'ordre de 50 nm.

Ce matériau (solide) est désordonné, en ce sens que les sphères de silice ne sont pas agencées régulièrement dans l'espace, comme le sont les atomes d'un cristal. La structure fractale fait que l'on ne peut parler véritablement d'une taille unique de pores, comme c'est pourtant le cas pour d'autres matériaux poreux communément utilisés, comme le Vycor²⁵. De plus, la simple définition qualitative d'une distribution en taille des pores ne rend pas compte de la structure fractale de l'échantillon, et le confond avec les matériaux du type Zéolite²⁶. Aussi, la présence d'une large gamme de longueurs où les corrélations sont grandes et non-exponentielles (ce qui serait le cas pour un matériau désordonné classique, comme un verre), est exprimée dans la littérature sous le terme de " désordre corrélé " (sur une distance $\xi_{fractal}$).

Nous parlons ci-dessus d'au moins trois paramètres de caractérisation, car il n'est pas fait référence ici à l'état de surface des billes de silice agglomérées (que nous supposons simplement sphériques), et à d'éventuelles anomalies dans la structure (comme des craquements, ou de grands pores laissés par une fabrication hasardeuse). Ces caractéristiques, auxquelles nous nous référerons comme étant des défauts de l'échantillon, ne sont malheureusement pas chiffrables. Il est connu (Vacher et al. [120] 1988) qu'une oxydation de l'échantillon augmente la rugosité des sphérules de silice, alors que des contraintes mécaniques trop fortes peuvent évidemment endommager la structure de l'aérogel.

Bien que ces trois paramètres soient à la base de la connaissance d'un échantillon, il n'est pas toujours possible de caractériser celui que l'on se propose d'utiliser pour une mesure physique donnée. En revanche, il est possible de déduire raisonnablement ses propriétés en se référant à des classes d'aérogels, connaissant le mode de fabrication, en partant de données facilement mesurables : son poids (donnant via son volume sa densité, ou sa porosité), et sa surface spécifique (mesurée par une isotherme d'adsorption, par exemple).

La longueur de corrélation $\xi_{fractal}$ caractérisant l'aérogel est du même ordre que les longueurs impliquées dans la physique de l'³He aux basses températures (section 10.1).

Aussi, l'introduction de ce désordre particulier au sein du matériau le plus pur que l'expérimentateur puisse trouver, donne lieu à des modifications de ses propriétés tout aussi particulières. Notre étude expérimentale de ce système modèle, permettant de sonder le comportement des liquides de Fermi et des superfluides (supraconducteurs) soumis à des impuretés, fait l'objet des chapitres suivants.

²⁵Verre de silice poreux à structure très régulière. La taille des pores est typiquement de l'ordre de 30 nm, ou même plus petit (voir les références en section 7.1).

²⁶Matériau poreux à structure très irrégulière, d'origine naturelle ou artificielle, ressemblant à une éponge (voir les références en section 7.1).

11.1 ^3He dans l'aérogel

Quatre échantillons d'aérogel ont été utilisés par notre équipe au CRTBT, afin d'étudier les propriétés RMN de l' ^3He confiné. L'échantillon E1 (aérogel 98 %) a fait l'objet de la première expérience, à 20,5 mT (664 kHz) dans une cellule à ultra-basses températures qu'il remplissait à 80 % environ (Chen [204] 1999). Il nous a été fourni par Chan (université de Pennstate [150]). Les trois autres provenaient du même lot, aérogels 98 % notés E2, E3 et E4, obtenus auprès de Mulders (université du Delaware). Il s'agit du même type d'aérogels que ceux utilisés par le groupe de Northwestern (Halperin et al. [125]). E2 a été testé dans 31,3 mT (1016 kHz), dans une cellule ultra-basse température 10 % trop grande environ (Chen [204] 1999). Nous avons réalisé une étude préliminaire sur E3 dans une cellule ultra-basse température ajustée très précisément à sa taille, en utilisant un champ magnétique de 37,4 mT (1215 kHz). Enfin, le dernier échantillon analysé E4 a fait l'objet d'une première expérience en dilution à 24,9 mT (808 kHz) (Triqueneaux [206] 2001), puis a été monté dans une cellule ultra-basses températures ajustée à sa taille où deux champs magnétiques étaient utilisables (17,3 mT soit 561,4 kHz, et 37,3 mT soit 1211 kHz).

Il est essentiel de noter que l'ensemble des propriétés mises en évidence dans nos expériences se retrouvent sur ces quatre échantillons (et pour la plupart sur les échantillons des autres groupes), la différence étant dans la précision des mesures et les valeurs numériques exactes obtenues. E1 se démarque cependant de E2, E3 et E4. En effet, sa surface spécifique est plus grande et la température de transition de l' ^3He vers l'état superfluide y est plus basse. Etant donné la complexité du problème, nous ne prendrons les résultats le concernant que comme une référence, du même ordre que la littérature des autres laboratoires.

En revanche, E2, E3 et E4 sont très similaires, comme nous le verrons dans la suite. Ces échantillons d'aérogel sont des barres de diamètre 5 mm, et de hauteur 15 mm environ. Ils ont été livrés sous sachet plastique, encore contenus dans le tube de verre où ils avaient

été réalisés. Le poids de E3 est de 13 mg environ (+/-10 %).

En fig. 11.1 nous montrons une isotherme d'adsorption d' ^3He réalisée sur une portion de l'échantillon E1 de 2,6 mg, recalée sur une isotherme d'adsorption d' ^3He réalisée sur E4 (13 mg). Pour toutes deux, la température est 4,2 K, V_{ads} correspond à la quantité adsorbée, en volume¹ ccSTP, et P à la pression d'équilibre dans l'enceinte obtenue après un temps très long (plusieurs heures), suivant chaque introduction de gaz. Utilisant la

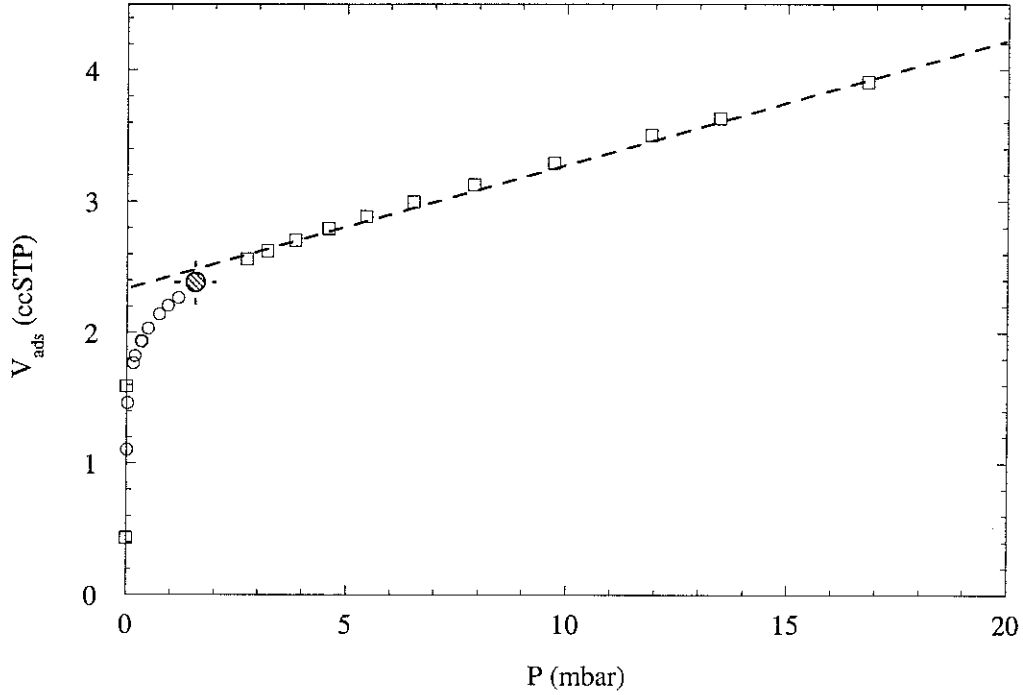


FIG. 11.1: Isothermes d' ^3He obtenues à 4,2 K pour l'échantillon E4 (13 mg, symboles □), et un morceau de 2,6 mg de l'échantillon E1 (on a recalé cette dernière sur la précédente isotherme, à l'aide d'un facteur 3,2; symboles ○). Nous représentons le volume adsorbé V_{ads} en fonction de la pression P dans la cellule. La méthode BET permet de définir une quantité d'atomes V_m pour la complétion de la première couche adsorbée, en ccSTP. Dans le cas de E4, il se trouve qu'elle correspond au cercle hachuré sur la courbe, ou encore à l'extrapolation pointillée en $P = 0$. En se donnant une densité pour cette monocouche adsorbée (11 at/nm^2), nous remontons à la surface spécifique des deux échantillons : $710 \text{ m}^2/\text{g}$ dans le cas de E1, et $450 \text{ m}^2/\text{g}$ pour E4.

méthode BET déjà mentionnée, nous déduisons un volume V_m en ccSTP caractéristique de la complétion de la monocouche². Considérant qu'elle atteint son maximum de densité,

¹Les quantités d'atomes en physique des surfaces sont usuellement mesurées en ccSTP, cm^3 en conditions standard de température et de pression, nous renvoyons à la discussion de la section 7.7. Pour remonter à la quantité d'atomes adsorbés, il faut évaluer le volume de cellule expérimentale (et de son capillaire). Après chaque introduction de gaz, une partie s'adsorbe et l'autre reste gazeuse à la pression d'équilibre P . Ce "volume mort" donne lieu à une faible correction, à prendre en compte néanmoins.

²On trace $\frac{P}{V_{ads}(P_{sat}-P)}$, où P_{sat} correspond à la pression de vapeur saturante obtenue à la température de l'isotherme, en fonction de P/P_{sat} . On ajuste cette courbe à l'aide d'une droite $1/(cV_m) + (c-1)/(cV_m)P/P_{sat}$, où c est un nombre sans dimensions qui peut être grand (nous obtenons $2 \cdot 10^4$), et V_m le "volume" de la monocouche, soit la quantité d'atomes ccSTP qu'elle contient.

on peut la comparer à la phase incommensurable de la première couche sur graphite (caractérisée aux neutrons, section 7.8), et proposer 11 at/nm^2 pour sa densité. Nous obtenons pour surface spécifique $710 \text{ m}^2/\text{g}$ dans le cas de E1, et $450 \text{ m}^2/\text{g}$ pour E4. Des isothermes d' ^3He ont également été réalisées pour ces deux échantillons aux alentours de 1,5 K. La surface spécifique obtenue est alors grossièrement double, correspondant à la formation de la seconde couche. Ces résultats sont en accord avec les mesures effectuées par d'autres groupes (par exemple Lauter et al. [127]).

Sur tous ces échantillons nous avons réalisé des expériences de RMN continue transverse. E4 a bénéficié de mesures où les couches adsorbées solides ont été partiellement, ou totalement remplacées par de l' ^4He . Il a également servi à quelques mesures en RMN pulsée, avec la mesure de la diffusion de spin dans la phase normale.

Dans les cellules ultra-basses températures, le cylindre d'aérogel est parallèle au champ magnétique, alors qu'il était orthogonal pour l'expérience en dilution (Triqueneaux [206] 2001). Pour de plus amples détails, concernant également la calibration de la bobine de modulation et l'ajustement des gradients, nous renvoyons à la section 4.2.

Nous montrons en fig. 11.2 des résultats typiques de mesures d'aimantation, recalés via un facteur multiplicatif sur $M(T)$, obtenus à 17 bar pour les échantillons E2 (Chen [204] 1999), E3 lors de l'étude préliminaire, et E4 à basse température (réfrigérateur à désaimantation, deux champs différents) et haute température (réfrigérateur à dilution, Triqueneaux [206] 2001). On y distingue la contribution du liquide (de type liquide de Fermi, ici ajustée par une loi de Dyugaev [51] 1990), et l'aimantation croissant rapidement à basse température des couches solides d' ^3He adsorbés (ajustée par un Curie-Weiss). Nous décrivons ces couches solides en section 11.2.

Cette comparaison brutale montre que toutes ces mesures sont en accord à environ 15 % près. Déjà, on en déduit que le champ magnétique est suffisamment faible pour ne pas affecter la susceptibilité, et que la quantité de solide et la température de Fermi T_F^{**} sont identiques pour E2, E3 et E4.

Il est important de noter que les amplificateurs RMN utilisés sont de très haute qualité, permettant des mesures sur une large gamme de température, et avec une précision (de l'ordre du %), qui n'est pas égale par les autres laboratoires. Aussi, les écarts entre ces différentes mesures sur E2, E3 et E4 viennent principalement de la thermométrie. Les échantillons E1, E2 et E3 étaient montés dans des cellules expérimentales équipées exclusivement de thermomètres à fils vibrants (chapitre 3). L'échelle de température était alors déduite des résultats de l'équipe de Lancaster [126]. Cette échelle n'est pas suffisamment précise autour de T_C , ce qui explique l'allure encaissée de $M(T)$ vers le mK pour ces

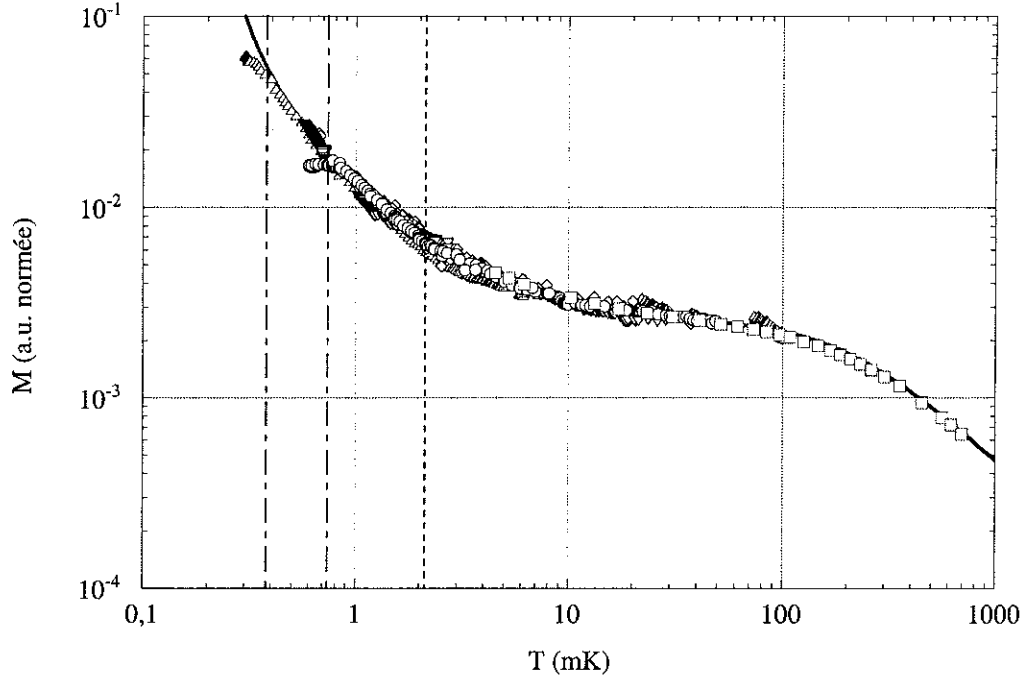


FIG. 11.2: Aimantation $M(T)$, obtenues à 17 bar pour les échantillons E2 (Chen [204] 1999, dans 31,3 mT, symboles Δ), E3 dans 37,4 mT (∇), et E4 à basse température (réfrigérateur à désaimantation, 17,3 mT $\diamond$ et 37,3 mT $\circ$) et haute température (réfrigérateur à dilution, Triqueneaux [206] 2001 dans 24,9 mT, symboles $\square$). Ces données brutes ont simplement été recalées sur l'aimantation de l'échantillon E4 mesuré à 37,3 mT, par un facteur multiplicatif sur $M(T)$: 1,20 pour E2, 1,35 pour E3, 45,5 pour E4 bas champ et $1/(7,55 \cdot 10^5)$ pour E4 testé en dilution. La ligne verticale pointillée marque T_C à cette pression (2,14 mK). L'ajustement, décrit dans le texte, est la somme d'une loi de Curie-Weiss (pour le solide) et de l'expression de Dyugaev [51] 1990 (pour le liquide). Notons la courbure concave de $M(T)$ aux plus basses températures (repérée par les deux verticales tiretées, pour E2 à 350 μ K et E4 à 750 μ K), marquant le découplage du thermomètre (froid) et de l'échantillon (dont l'aimantation indique une température plus chaude). Remarquons également pour E2 et E3 l'oscillation à $T_{C,b}$, due à l'imperfection de l'échelle de température correspondante.

échantillons.

L'échantillon E4 monté sur la base en cuivre du réfrigérateur à dilution a bénéficié d'une thermométrie par tension de vapeur de l' ^4He , par résistance de Carbone, par sel de CMN et principalement par thermomètre à courbe de fusion de l' ^3He (travail conséquent de Triqueneaux [206] 2001). Cette thermométrie est très bonne, néanmoins un léger découplage thermique de l'échantillon aux plus basses températures (pour cet appareil, environ 4 mK), semble fausser les derniers points de la courbe $M(T)$ de quelques 0,1 mK, suivant la pression considérée.

La thermométrie de l'échantillon E4 monté sur le réfrigérateur à désaimantation nucléaire, a utilisée un fil vibrant de tantale de 125 μm que nous avons spécialement calibré contre un thermomètre à RMN pulsée du Platine jusqu'à 30 mK, et une résistance de Carbone (Speer 100 Ω nommée R21) au-dessus de 10 mK (nous revoyons pour plus de détails à

la section 5.4). Cette procédure nous a permis d'atteindre une résolution en température de l'ordre de $\pm 3\%$, et de réconcilier l'ensemble des mesures effectuées sur l' ^3He dans les aérogels au laboratoire. Par ailleurs, l'aimantation des couches adsorbées, si elle est bien caractérisée peut elle-même servir de thermomètre, tout comme les couches d' ^3He adsorbées sur graphite. C'est pourquoi nous attachons dans la suite une grande importance à l'étude de ces couches. En pratique, elles fournissent une calibration "in situ" de l'échelle de température.

Nous remarquons en fig. 11.2 qu'aux plus basses températures les différentes courbes d'aimantation ont tendance à saturer, et dévient de l'ajustement. Pour les mesures sur E2, cet effet intervient aux alentours de $350\ \mu\text{K}$, et pour nos mesures sur E4 vers $750\ \mu\text{K}$. Il ne peut s'agir de la saturation de l'aimantation du solide : en effet, la polarisation de ce dernier n'est que de 6% à $750\ \mu\text{K}$, et 25% à $350\ \mu\text{K}$ (pour cette pression de 17 bar, d'après nos résultats en section 11.2). Nous l'attribuons plutôt au découplage thermique de l' ^3He au sein de l'aérogel vis-à-vis du thermomètre à fil vibrant. Etant donné que la cellule utilisée pour E2 était assez lâche, alors que celle de E4 était ajustée très étroitement, il n'est pas étonnant d'avoir une fuite thermique vers l'échantillon plus faible pour E2 que pour E4, et ainsi un découplage à des températures plus basses. Nous avons d'ailleurs vérifié pour E4 que chauffage ou refroidissement brusques étaient hystérétiques, preuve du couplage thermique limité. Pour ces raisons, les mesures systématiques ont été réalisées en chauffant très lentement la cellule depuis sa température de base, de l'ordre de $300\ \mu\text{K}$, tout en acquérant continûment les raies de RMN (section 4.2). Ce réchauffement s'est fait soit par chauffage de l'étage (à l'aide d'une résistance), soit par chauffage uniquement de la cellule d' ^3He liquide formant notre ballast thermique (à l'aide d'un second fil vibrant de tantale, chapitre 3). Les deux techniques donnent les mêmes résultats, simplement la seconde est plus souple puisqu'elle permet de conserver l'entropie de l'étage en cuivre, et de réaliser plusieurs cycles de mesures en température au cours d'une désaimantation nucléaire. Le phénomène de découplage thermique est discuté en section 11.4.

Si l'on fait le bilan de ces mesures systématiques, nous avons caractérisé la résonance transverse en RMN continue de l' ^3He confiné dans des aérogels à 98% , depuis des températures de $350\ \mu\text{K}$ jusqu'à $800\ \text{mK}$, et ce sur une gamme de pressions allant de 3 bar à 30 bar. Les caractéristiques étudiées sont l'aimantation $M(T)$, obtenue à environ $\pm 3\%$, ainsi que le décalage en résonance et la largeur des raies RMN, estimés à $\pm 0,5 \cdot 10^{-3}\ \text{mT}$ environ.

L'état normal, liquide de Fermi confiné dans l'aérogel fait l'objet de notre première

section suivante. Les travaux dans cette gamme de température sont assez peu nombreux (comparativement au travail consacré à la phase superfluide), et nous les commenterons lorsque nécessaire. Le point crucial, qui explique le nombre de nos résultats novateurs, est que thermométrie et RMN sont obtenues dans cette gamme avec une précision bien supérieure à celle des autres travaux publiés.

L'étude de la phase superfluide de l' ^3He confiné dans l'aérogel a attiré l'attention de nombre de laboratoires depuis sa découverte par Porto et Parpia [128] 1995, utilisant un oscillateur de torsion, et Sprague et al. [129] 1995 réalisant des mesures de RMN pulsée. Pour un supraconducteur conventionnel où les paires sont de type s , la température de transition T_C et l'amplitude du paramètre d'ordre mesurée par le gap Δ_0 ne sont pratiquement pas affectés par les collisions des quasi-particules avec des impuretés non magnétiques (Serin [130]). Seule la longueur de cohérence ξ_0 définie dans l'approche de Guinzburg-Landau est réduite, dans la limite où elle devient comparable au libre parcours moyen l des quasi-particules. En revanche, la diffusion des quasi-particules par des impuretés magnétiques réduit fortement à la fois T_C et Δ_0 (Abrikosov et Gorkov [131] 1961). Cependant, dans un supraconducteur (superfluide) où l'appariement est de type p , tous les types de collisions amènent à des interférences destructives réduisant la température de transition vers la supraconductivité (superfluidité) (Larkin [132] 1965).

Dans le cas de la superfluidité de l' ^3He confiné, la grandeur la plus facilement accessible expérimentalement est simplement la température de transition T_C . Le premier objectif des modèles théoriques proposés est donc de décrire la réduction de T_C en présence de désordre. Toutes ces approches, basée sur la théorie BCS de couplage faible et la théorie des transitions de phases de Guinzburg-Landau considèrent, de façon légitime, que le milieu est isotrope. Elles sont dites quasi-classiques, car chaque centre diffuseur (une sphère de silice de la matrice) est indépendant des autres, il n'y a pas de cohérence de phase entre eux. De plus, ces modèles supposent que les réflexions des quasi-particules par les brins de silice sont élastiques³. On considère également que les paramètres de Landau ne sont pas affectés par la présence de l'aérogel, ainsi que les interactions entre atomes d' ^3He responsables de l'appariement lui-même, ou du couplage dipolaire (voir Serene et Rainer [133] 1983). Il s'agit là d'un point de départ raisonnable⁴, comme nous l'avons en partie discuté en section 10.1. Notre étude expérimentale de la phase normale de l' ^3He confiné

³Il n'y a pas d'échange d'énergie entre la quasi-particule et la surface, ce qui signifie qu'elles n'ont chacune aucune structure interne excitable (comme un changement de spin pour l'une, ou une onde de surface pour l'autre, par exemple). Ce point a été introduit en section 10.1, et nous revenons dessus dans la suite. La diffusion principale est une harmonique s (voir Cohen-Tannoudji et al. [213]), notation qui rappelle encore une fois la classification des orbitales atomiques, et ne doit pas être confondue avec le type d'appariement du superfluide (supraconducteur) (dans notre cas de type p).

⁴Ces échelles d'énergies sont les plus élevées du problème, et conformément à la discussion de la section précédente correspondent aux longueurs les plus courtes, a priori non affectées par l'aérogel.

peut sur certains points justifier cette approche, nous y revenons dans la suite.

Nous notons $T_{C,a}$ et $T_{C,b}$ les transitions superfluides respectivement dans l' ^3He confiné, et dans l' ^3He massif. Ces deux grandeurs ainsi que ξ_0 ne dépendent (en champ magnétique faible) que de la pression, et il est donc licite en principe de comparer les diverses expériences en traçant $T_{C,a}/T_{C,b}$ en fonction de ξ_0/L , où L est une longueur effective⁵ caractérisant chaque échantillon d'aérogel. Sur la fig. 11.3, nous représentons les résultats de Porto et

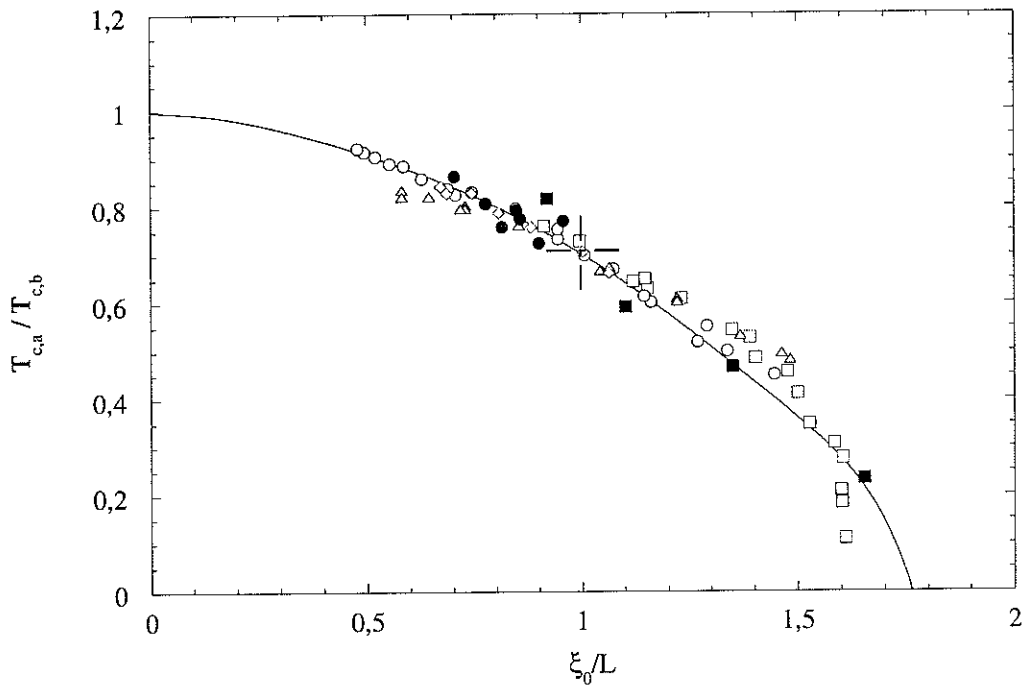


FIG. 11.3: Courbe $T_{C,a}/T_{C,b}$ fonction de ξ_0/L , pour différents échantillons d'aérogel à 98 %. La normalisation présentée utilise la convention choisie par Thuneberg et al. [138] 1998 : $\xi_0/L = 1$ lorsque $T_{C,a}/T_{C,b} = 0,7$ (croix sur la figure). Résultats de Porto et Parpia [128] 1995 ($\circ$, $L = 29,6$ nm) et Matsumoto et al. [134] 1997 ($\square$, $L = 19,2$ nm) en oscillateur de torsion, ceux de Sprague et al. [129] 1995 ($\diamond$, $L = 20,8$ nm) en RMN pulsée transverse à un champ de 111,7 mT, et ceux de Alles et al. [137] 1998 ($\triangle$, $L = 24,0$ nm) utilisant ces deux techniques (champ magnétique de RMN transverse 5,1 mT). Sont également représentés les résultats de Chen [204] 1999 en RMN transverse continue sur E2 ($\blacksquare$, $L = 20,8$ nm) dans 31,3 mT, et nos résultats sur E4 ($\bullet$, $L = 20,0$ nm) dans 37,3 mT. Notons que les géométries RMN utilisées sont différentes : l'échantillon de Sprague et al. [129] 1995 est un cylindre orthogonal au champ magnétique, celui de Alles et al. [137] 1998 une sphère et les nôtres sont des cylindres parallèles au champ. La ligne pleine est un calcul théorique de Thuneberg et al. [138] 1998 discuté dans le texte, modèle de collisions en milieu inhomogène. La dispersion sur cette figure est de l'ordre de $\pm 5\%$, imputable par exemple aux échelles de températures locales utilisées.

Parpia [128] 1995 et Matsumoto et al. [134] 1997 en oscillateur de torsion, ceux de Sprague

⁵Cette longueur est définie à une constante multiplicative près. Elle dépend de la normalisation choisie (nous prenons celle de Thuneberg et al. [138] 1998) pour la fig. 11.3, et de la définition de ξ adoptée (nous prenons celle de Vollhardt et Wölfle [222]). De ce fait, nos longueurs sont 1,2 fois plus faibles que celles rapportées par Haard [208] et Thuneberg et al. [138] 1998, et 4,0 fois plus faibles que celles de Lawes et al. [139] 2000.

et al. [129] 1995 en RMN⁶, et ceux de Alles et al. [137] 1998 utilisant ces deux techniques⁷. Sont également représentés nos résultats en RMN sur E2 et E4. Tous ces échantillons sont des aérogels à 98 % (+/-0,2 %), les valeurs numériques pour L et les champs RMN, ainsi que les géométries des cellules sont fournis dans la légende de la figure.

Toutes ces données suivent une même loi universelle (la dispersion des données sur la fig. 11.3 est de l'ordre de +/-5%, due soit à la calibration des diverses échelles de température, soit à des effets physiques fins non considérés ici), quelle que soit la technique et la géométrie employées, résultat proposé par Thuneberg et al. [138] 1998, puis Lawes et al. [139] 2000. Nous confirmons ce résultat à l'aide de nos propres échantillons. Ainsi, la transition vers la superfluidité doit pouvoir se comprendre en termes de collisions entre les quasi-particules et le réseau de silice. Les longueurs caractéristiques L obtenues pour tous ces échantillons sont du même ordre, et correspondent effectivement au libre parcours moyen d'une quasi-particule dans la structure (sous-section 10.2.2, environ 50 nm).

Le premier modèle cherchant à reproduire cette loi, et le plus simple, est celui du désordre homogène (Thuneberg et al. [138] 1998). L'aérogel est modélisé par un ensemble incohérent de centre diffuseurs, uniformément répartis dans l'espace. La loi obtenue pour $T_{C,a}/T_{C,b}$ fonction de ξ_0/L se réduit simplement à celle d'Abrikosov et Gorkov [131] 1961, bien qu'elle soit obtenue dans un cadre différent⁸. La courbe ainsi déduite a la bonne tendance, et correspond au bon ordre de grandeur, mais n'ajuste pas les données. Pour ces raisons, un modèle de collisions sur un milieu inhomogène a été développé (Thuneberg et al. [138] 1998, et Hänninen et Thuneberg [140] 2000). Les auteurs modélisent l'aérogel par un ensemble périodique de structures où la densité de centres diffuseurs a une forme polynomiale⁹. La loi tirée de cette approche ajuste très proprement les points expérimentaux sur une large gamme de ξ_0/L (courbe pleine, fig. 11.3).

⁶Notons que l'échelle de température des auteurs a bénéficié d'une révision (Haard [208] 2001), sans effet sur ces résultats. En effet, les auteurs reportent une variation de $T_{C,a}$ en fonction du champ magnétique $\vec{B}$ (Sprague et al. [135] 1996), qui n'est finalement pas si prononcée. Nous revenons sur ce point dans la suite.

⁷A notre sens, la thermométrie de ces auteurs peut être contestée, surtout aux plus basses températures (nous avons nous-mêmes noté que l'échantillon se découplait thermiquement de la cellule). Ils utilisent un sel de LCMN situé visiblement très loin de la cellule, calibré sur la transition superfluide de l'³He qu'ils déterminent par un changement de vitesse de réchauffement du thermomètre.

⁸Nous l'avons déjà mentionné, le résultat d'Abrikosov et Gorkov [131] 1961 est obtenu pour un appariement s et des collisions sur des défauts magnétiques, alors que Thuneberg et al. [138] 1998 calculent la suppression de la transition pour un appariement p et des collisions non magnétiques. La loi obtenue est $\ln(\frac{T_{C,a}}{T_{C,b}}) = \psi(\frac{1}{2}) - \psi(\frac{1}{2} + \frac{\xi_0 T_{C,b}}{l T_{C,a}})$, avec $T_{C,a}$, $T_{C,b}$ et ξ_0 déjà introduits, et $\psi(x)$ la fonction digamma tabulée. l est le libre parcours moyen des quasi-particules (défini à une constante numérique proche de 1 près) limité par les collisions avec l'aérogel.

⁹Thuneberg et al. [138] 1998 utilise une distribution de centre diffuseurs de forme arbitraire, qui s'écrit : $n(r) = c[(r/R)^j - j(r/R)^{j+2}/(j+2)]$. R est le rayon de la zone sphérique que l'on périodise, r représente la distance à son centre, et j définit le profil de $n(r)$. Pour l'ajustement de la fig. 11.3, les paramètres de calcul utilisés sont $R = 5,6L$ et $j = 8$.

Cette approche semble rendre compte assez correctement de l'apparition de la superfluidité à une température réduite. Cependant, elle ne suffit pas. Aux plus grands ξ_0/L , les points expérimentaux semblent s'accumuler suivant une verticale, qui n'est pas reproduite par l'ajustement. On pourrait avancer pour expliquer ce fait plusieurs raisons, comme la forme arbitraire de la loi choisie pour décrire la distribution de centres diffuseurs. Ou encore, il existe peut-être un phénomène limitant plus fondamental interdisant à la superfluidité d'apparaître lorsque la longueur de corrélation dépasse de trop la taille moyenne des pores, comme une interaction non élastique avec les couches adsorbées, par exemple ; une quasi-particule n'est plus ponctuelle, c'est un nuage qui se " frotte " au réseau de l'aérogel. Matsumoto et al. [134] 1997 parle d'ailleurs de " transition de phases quantique à $T = 0$ ", pour rendre compte de l'apparition de la superfluidité à une pression critique P_C strictement supérieure à $P = 0$ (soit $\xi_0(P_C) < \xi_0(0)$), aux plus basses températures (une introduction pédagogique à ces transitions est fournie par Sondhi et al. [141] 1997, nous discutons ce point à nouveau sur la base de nos résultats).

Ces résultats sont avant tout un point de départ. Ils considèrent que l'appariement est toujours de type p (ce qui semble validé par la qualité de l'ajustement), mais ne présupposent en rien la nature de la(des) phase(s) superfluide(s), le calcul de Thuneberg et al. [138] 1998 donnant approximativement les mêmes résultats que l'on impose la phase A ou la phase B . La stabilité de l'une par rapport à l'autre dépend des corrections de couplage fort, dont l'effet dans un système aussi compliqué n'est à l'heure actuelle pas connu (voir la discussion de Haard [208] 2001, par exemple).

De plus, même si l'ajustement de $T_{C,a}$ est plus que satisfaisant, le résultat des ajustements sur la réduction de la densité superfluide (mesurée en oscillateur de torsion), et sur la réduction de l'amplitude du paramètre d'ordre (mesurée en RMN) est loin d'être parfait (Thuneberg et al. [138] 1998, Lawes et al. [139] 2000). En effet, ces modèles proposés ne donnent aucune information sur la texture, et les défauts topologiques qui pourraient être présents dans la cellule expérimentale¹⁰. La phase " non superfluide " reste également mystérieuse, elle est traitée simplement comme le liquide de Fermi mais pourrait receler des caractéristiques bien plus profondes, comme une " semi-superfluidité " : seule la cohérence de phase serait perdue, la cohérence dans les espaces de spin et d'orbite serait elle maintenue (Volovik [143], repris dans Bunkov et al. [145] 2000).

Pour être exhaustifs, citons également les résultats concernant la transition de l' ^4He confiné dans l'aérogel (voir par exemple Yoon et al. [144] 1998, et la thèse de Gabay [207] 2001). La

¹⁰L'hypothèse qui est faite est que l'aérogel n'affecte pas la texture, qui reste identique à celle d'une cellule d' ^3He massif. L'analyse de Alles et al. [142] 1999 va d'ailleurs dans ce sens. Nous avons discuté ce point en section précédente, arguant que l'interaction entre ^3He liquide et ^3He de surface n'a rien de trivial. De plus, jusqu'à présent la création de défauts topologiques dans ce système n'a jamais été considérée. Ces points seront discutés en détail dans la suite.

grande différence entre ces deux systèmes est dans la nature du condensat, condensat de Bose des atomes d' ^4He , et condensation des paires de Cooper (de structure interne compliquée) pour l' ^3He . Pour conséquence, la longueur de cohérence superfluide de l' ^4He est de taille atomique, alors que pour l' ^3He ξ_0 est de l'ordre de la centaine de nanomètres. Alors que pour l' ^3He la superfluidité peut être complètement supprimée dans l'aérogel (dans un certain domaine de pressions), l' ^4He liquide consent toujours à y devenir superfluide. Cette transition est bien définie, et pour l' ^4He la réduction de T_C par l'aérogel se chiffre en mK, pour une transition (au alentours de la pression nulle) de 2,17 K. Enfin, la caractéristique certainement la plus importante de cette transition est son changement de classe d'universalité : près de $T_{C,a}$, la densité superfluide ρ_S vérifie $\rho_S/\rho \propto [(T_{C,a} - T)/T_{C,a}]^\xi$, où ξ porte l'information concernant cette classe d'universalité. Pour l' ^4He massif, la transition superfluide vérifie $\xi \approx 0,67$. Dans l'aérogel, on obtient des valeurs supérieures, dépendant à la fois de la porosité de l'échantillon et de sa dimension fractale ξ_{fractal} .

Au cours de cette thèse, nous avons étudié expérimentalement les propriétés RMN de l' ^3He confiné dans l'Aérogel. Dans les deux sections suivant notre analyse de la phase normale, nous cherchons à clarifier la situation concernant la phase que nous appellerons phase "intermédiaire" (entre $T_{C,a}$ et $T_{C,b}$), et concernant la phase superfluide stabilisée dans ces conditions de désordre.

11.2 Phase liquide de Fermi

Nous présentons en fig. 11.4 nos données brutes $M(T)$ mesurées sur l'échantillon E4 monté sur le réfrigérateur à désaimantation nucléaire, à différentes pressions (champ RMN 37,3 mT). Certaines mesures ont fait l'objet de plusieurs désaimantations ; le cryostat a même été réchauffé et ouvert entre deux séries d'expériences. Ceci valide la reproductibilité des résultats présentés dans cette section.

A haute température, nous avons restreint le graphique à 40 mK, limite au-delà de laquelle nous perdons progressivement la précision de notre thermométrie (la largeur de raie du fil vibrant finit par être dominée par sa largeur intrinsèque, et la viscosité de l' ^3He est soumise à des corrections par rapport à $1/T^2$, section 5.4). A basse température, nous nous limitons aux températures supérieures à $T_{C,a}$, afin d'éviter la discussion sur la phase superfluide stabilisée, et le contact thermique qui se dégrade pour E4. Les effets fins vus dans le liquide (pics satellites et phase "intermédiaire", section 11.3) ne représentent que 3 % environ de l'aimantation totale, et peuvent être négligés dans cette section.

Les lignes pleines représentent des ajustements simples, superposition d'une contribution

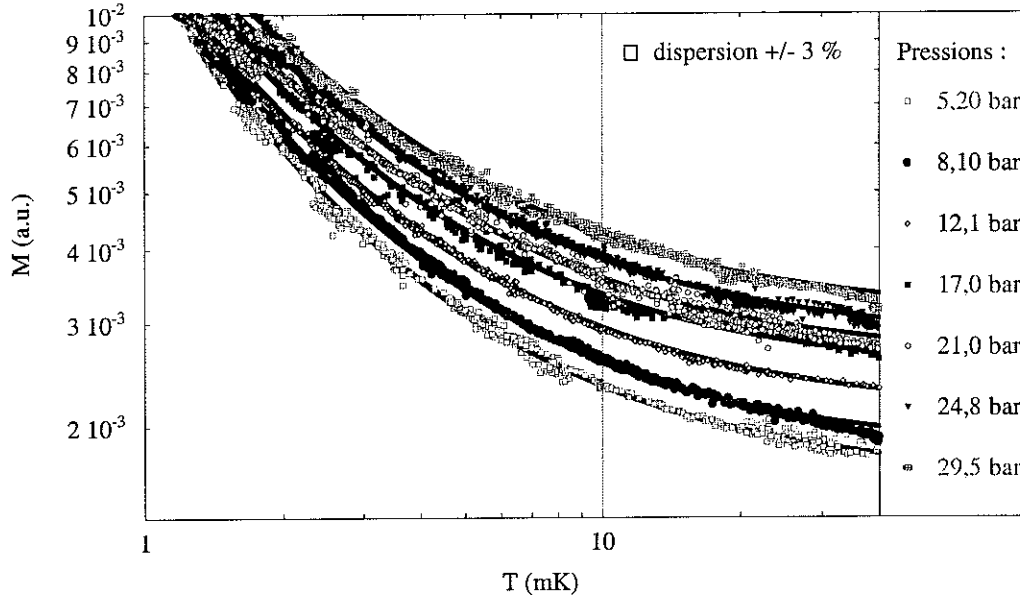


FIG. 11.4: Aimantations $M(T)$ brutes pour différentes pressions, mesurées dans 37,3 mT pour E4. Cette fenêtre en température (de 1 mK environ à 40 mK) correspond à la zone où la précision sur nos données dans les deux axes est de l'ordre de $\pm 3\%$ (représentée par le carré en haut à gauche). Comme pour la fig. 11.2, les autres mesures (E2, E3, E4 faible champ) sont équivalentes à celles-ci, mais de qualité moindre. Les pressions indiquées ont été relevées sur un manomètre dont nous avons vérifié que l'erreur absolue était inférieure à $\pm 0,25$ bar (via un deuxième manomètre, et les propriétés de l' ^3He elle-mêmes). Les lignes pleines sont des ajustements commentés dans le texte.

liquide et solide, du type :

$$M(T) = C \left[\frac{n_{\text{solide}}(P)}{T - \Theta_W(P)} + \frac{n_{\text{liquide}}(P)}{T_F^{**}(P)} \right] \quad (11.1)$$

où C est la constante de Curie par spin (en unités arbitraires, dépendant du gain d'amplification), Θ_W représente les interactions dans le solide (température de Curie-Weiss), et T_F^{**} la température de Fermi effective du liquide confiné. Nous avons indiqué les dépendances en pression explicitement. Ainsi, l'interaction entre le liquide et le solide (de type RKKY, par exemple, voir section 7.7), est contenue a priori dans les paramètres Θ_W et T_F^{**} .

Les résultats de Triqueneaux [206] 2001 montrent que l'aérogel ne modifie pas de manière significative la densité du fluide et ses interactions magnétiques (variation de n_{liquide} avec la pression, et valeurs de T_F^{**} respectivement). Conformément à la discussion du chapitre précédent, ces échelles d'énergies élevées ne sont pas affectées par les inhomogénéités de " grande " longueur dues à l'aérogel. Il n'y a pas de signature d'un échange avec le solide sur T_F^{**} . De plus, il apparaît qu'au-dessous de 40 mK il est tout à fait licite (dans nos barres d'erreur) de considérer que l'aimantation du liquide est constante¹¹. En

¹¹Nous n'employons donc plus la relation phénoménologique de Dyugaev [51] 1990 dans la suite. En

revanche, Triqueneaux [206] 2001 réévalue T_F^{**} à la baisse pour l' ^3He massif (en accord avec Mikhalechuk et al. [147] 2000) et l' ^3He confiné, environ 8 % au-dessous de la valeur communément admise jusqu'à présent (mesures de Ramm et al. [148] 1970). Nous nous alignons sur ces résultats. Enfin, nous ne repérons pas sur la fig. 11.4 de "catastrophes" sur $M(T)$ entre $T_{C,a}$ et $T_{C,b}$. Nous considérons donc qu'elle reste égale à sa valeur de fluide normal (et négligeons les effets fins, de l'ordre de 3 %, sur lesquels nous revenons en section 11.3). Fixant T_F^{**} et n_{liquide} , nous obtenons donc la constante de Curie¹² C par spin globale de nos données.

L'expression de Curie-Weiss $n_{\text{solide}}/(T - \Theta_W)$ pour l'aimantation du solide adsorbé est tout à fait licite. En effet, il est accepté à l'heure actuelle que pour les matériaux usuels (discussion en section 7.1), lorsqu'ils sont plongés dans de l' ^3He à basse température il se forme toujours au moins une couche dense à leur surface, de propriétés comparables au cas canonique : l' ^3He sur graphite. Cette couche est presque paramagnétique, et même s'il se forme des couches solides supérieures, d'aimantation ferromagnétique (voir section 7.8), en proportion la première contribue pour une bonne part à l'aimantation totale du solide. On peut montrer que la superposition de différentes lois hautes températures solides se réduira toujours au premier ordre à une expression de Curie-Weiss, dont le Θ_W est simplement la moyenne pondérée des interactions ($\Theta_W \approx \sum_i \Theta_i n_i / n_{\text{solide}}$ si i représente la couche, dans notre cas cette approche est valide jusqu'à $2\Theta_W \leq T$ environ, d'après les valeurs de la section suivante). Ajoutons que dans un cas comme l'aérogel, la notion de couches atomiques ne peut être prise que dans un sens statistique. Leur structure exacte reste mal définie, et en ce sens il n'y a aucune raison d'utiliser une série haute température compliquée particulière pour les décrire.

Les caractéristiques expérimentales de ces couches solides, et du liquide qui les baigne, sont décrites ci-dessous. Le confinement de l' ^3He fait l'objet de l'étude en diffusion de spin qui suivra.

11.2.1 Promotion dans les couches solides adsorbées

Nous résumons sur la fig. 11.5 l'ensemble des données concernant T_F^{**} . Nous y représentons les données de Triqueneaux [206] 2001 sur l' ^3He massif (27,3 mT), et l' ^3He dans l'aérogel (échantillon E4, 24,9 mT), Nos propres données sur E4 (37,3 mT, avec et sans

revanche, elle a servi à l'étude de Triqueneaux [206] 2001 aux plus hautes températures. Nous renvoyons à cette thèse pour plus de commentaires sur cet ajustement.

¹²Pour nos données dans 37,3 mT sur E4, $C = 13,7 \text{ V Volts}^2 \text{ mK/mole}$ si V est le volume de la cellule en cm^3 , à la stabilité de l'amplificateur près (de l'ordre de quelques % sur une année, section 4.2).

couches solides d' ^3He adsorbées) et deux ajustements commentés dans la légende de la figure. En toute rigueur, après avoir défini notre constante de Curie C et la densité du fluide n_{liquide} , nous avons laissé une certaine liberté aux autres paramètres, afin de minimiser l'écart entre les ajustements et l'ensemble des données. C'est ce qui explique la légère différence entre nos données et celles de Triqueneaux [206] 2001.

Notons que les données concernant l'aérogel E4 monté en dilution semblent systématiquement environ 2% plus basses que les autres. Ceci peut s'expliquer par l'ajustement de l'aimantation du solide par Triqueneaux [206] 2001 ; nous avons signalé que sa thermométrie au plus basses températures semble légèrement erronée. Néanmoins, la dispersion globale

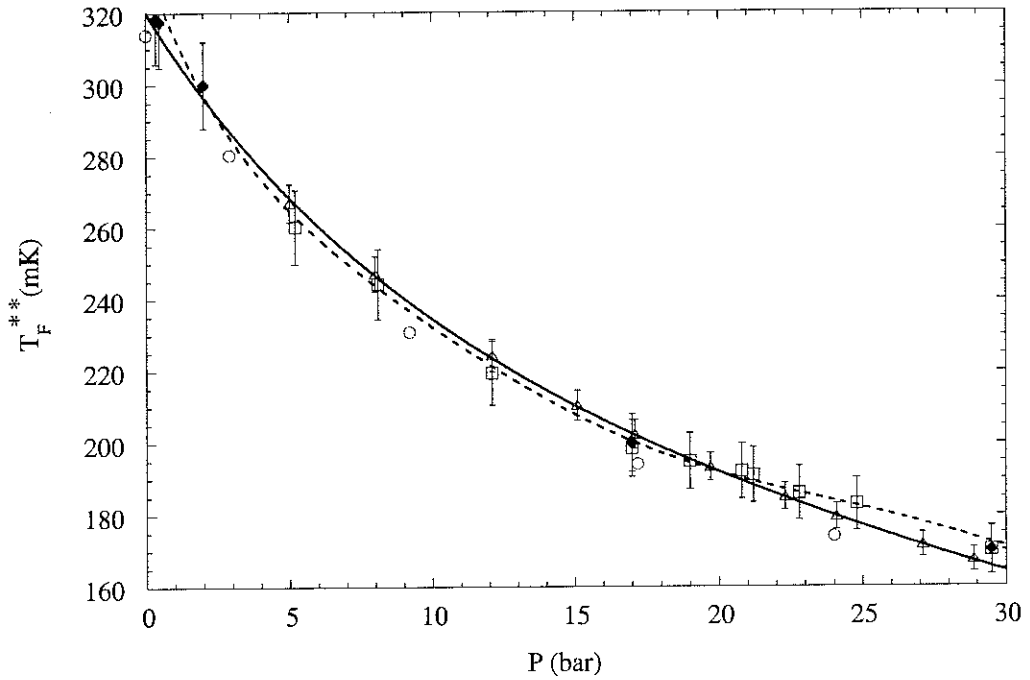


FIG. 11.5: Températures de Fermi effectives T_F^{**} , fonction de la pression, mesurées en différentes conditions : données de Triqueneaux [206] 2001 sur l' ^3He massif (Δ , 27,3 mT), et sur l' ^3He confiné dans l'échantillon E4 ($\circ$, 24,9 mT), nos propres données sur E4 ($\square$, 37,3 mT), et nos données sur E4 après remplacement des couches solides par de l' ^4He ($\blacklozenge$, 37,3 mT et $n_{\text{solide}} = 0$, sauf pour 29,5 bar où $n_{\text{solide}}/n_{\text{liquide}}(0) = 0,25\%$). Rappelons que nos mesures sont recalées via C sur les valeurs de Triqueneaux [206] 2001. Les lignes pointillées et pleines sont des ajustements (Halperin et al. [125] sur les données de Ramm et al. [148] 1970 recalé via un facteur $1/1,075$, et loi $1/(0,00312218 + 0,000128158P - 1,63207 \cdot 10^{-6}P^2 + 2,19778 \cdot 10^{-8}P^3)$ respectivement). Les barres d'erreur pour l' ^3He massif sont celles fournies par Triqueneaux [206] 2001 ($\pm 2\%$). Les barres sur nos données représentent la stabilité de l'ensemble de notre système de mesure ($\pm 4\%$).

sur ces données est de l'ordre de 4 %, nos propres résultats confirmant la dépendance en pression de T_F^{**} .

L'expression (11.1) nous permet d'extraire l'information sur le solide (ajustements de la fig. 11.4). En fig. 11.6, nous donnons les quantités de solide n_{solide} normalisées à la quan-

tité $n_{\text{liquide}}(0)$ de liquide présent dans la cellule à pression nulle (définie par extrapolation linéaire).

Nous obtenons une évolution de la quantité de solide linéaire (densification, ou promotion

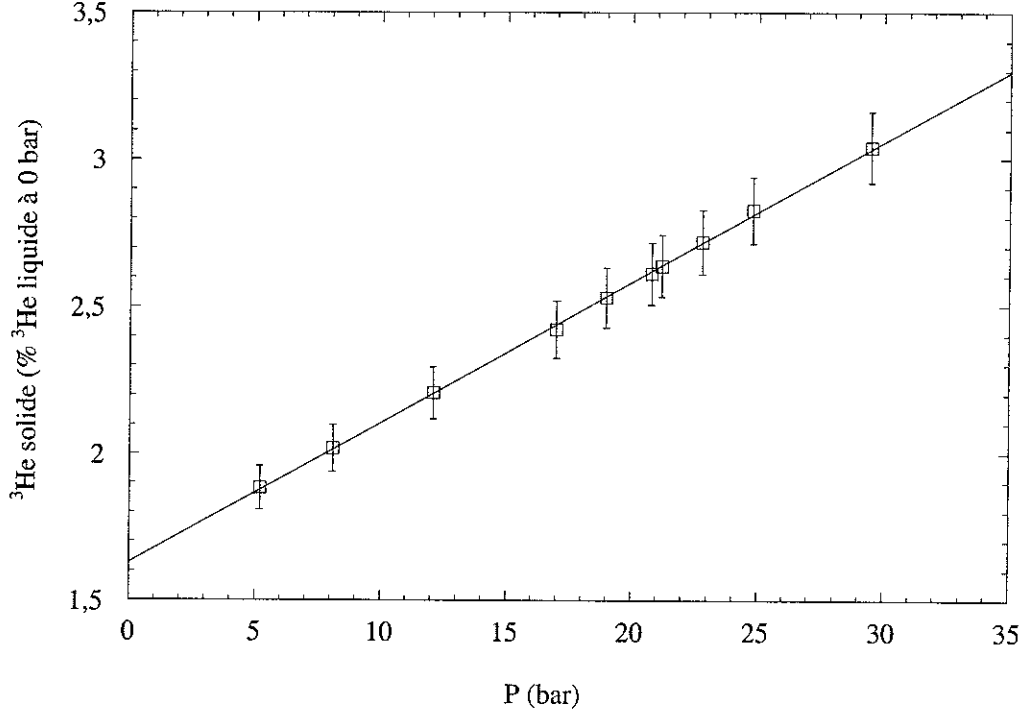


FIG. 11.6: Quantité de solide, fonction de la pression, normalisée à la quantité de liquide présent à 0 bar, $n_{\text{solide}}/n_{\text{liquide}}(0)$ en pourcent. Nous notons une augmentation d'un facteur deux entre la pression de vapeur saturante et la solidification. La ligne pleine est un simple ajustement linéaire. Les barres d'erreur représentées sont de $\pm 4\%$, et chiffrent la stabilité de notre chaîne de mesure.

représentée par la droite de la fig. 11.6), allant de 1,6 % (pression nulle) à 3,2 % (solidification) de la quantité d'atomes du liquide présents à 0 bar. A la surface effective près de l'échantillon, ces résultats sont similaires à ceux de Schuhl et al. [159] 1987 sur des microsphères de Fluorocarbène.

Nous l'avons fait remarquer, la notion de couches atomiques est avant tout statistique dans un système comme l'aérogel. Néanmoins, on peut chercher à définir quelques ordres de grandeur, à l'aide de la surface spécifique déduite des isothermes d'adsorption de la section 11.1 ($450 \text{ m}^2/\text{g}$, soit $19,8 \text{ m}^2/\text{cm}^3$). A l'ordre le plus bas, on peut considérer que cette surface, correspondant à la surface incommensurable $\mathcal{S}_{\text{incom}}$ d'un échantillon de graphite, ne varie pas avec la pression. On écrit alors :

$$n_{\text{solide}}(P)/n_{\text{liquide}}(0) = (\mathcal{S}_{\text{incom}}/V)(\rho_{\text{solide}}(P)/\rho_{\text{liquide}}(0))$$

V est le volume de l'échantillon ($0,295 \text{ cm}^3$), et toute la dépendance en pression est contenue dans les densités (avec $\rho_{\text{liquide}}(0) = 0,08142 \text{ g/cm}^3$, soit $1,6344 \cdot 10^{22} \text{ at/cm}^3$).

On obtient pour ρ_{solide} les valeurs de 13,5 at/nm² (soit un peu plus d'une couche dense) à pression nulle, et 27,5 at/nm² (soit environ trois couches) à la solidification (valeurs en accord avec celles proposées par Schuhl et al. [159] 1987 sur Fluorocarbone). Ainsi, lorsqu'on exerce de fortes pressions, on fait croître, de façon continue, ce que l'on pouvait attendre pour un substrat " désordonné " ¹³, les deuxième et troisième couches. Ce résultat est tout à fait en accord avec ce que l'on sait du potentiel d'adsorption de l'³He sur graphite, et de son diagramme de phases (section 7.8, et les résultats de Bäuerle [201] 1996 en section 8.5).

Nous tirons également le paramètre Θ_W de nos ajustements, chiffrant les interactions magnétiques dans le solide. Il est représenté en fig. 11.7. Comme nous l'avons fait remar-

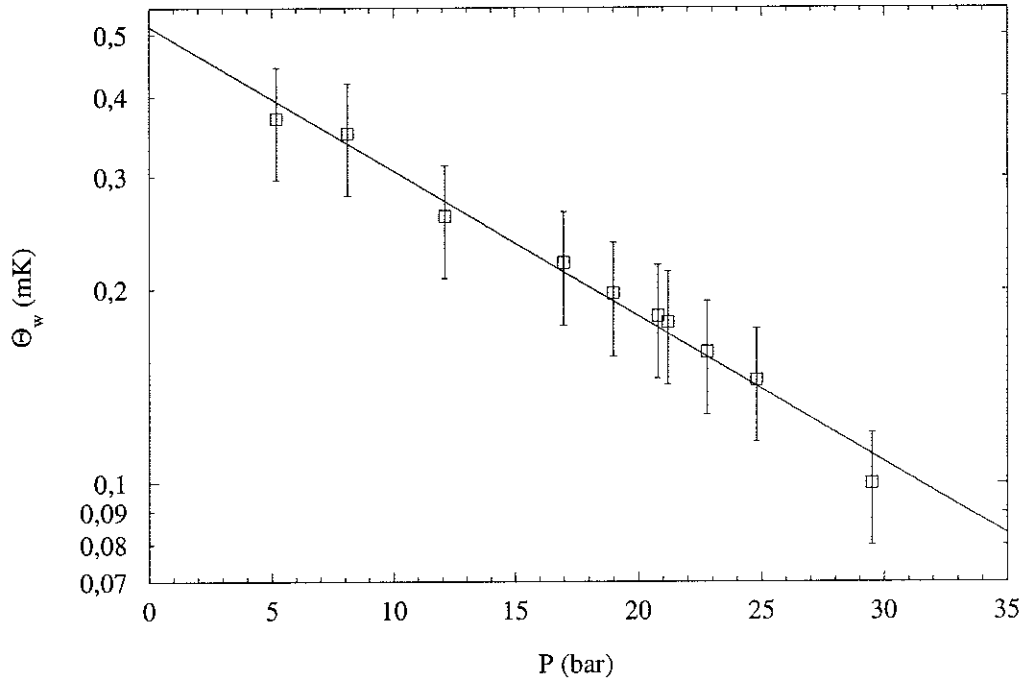


FIG. 11.7: Paramètre Θ_W fonction de la pression. Il chiffre l'interaction (l'échange, section 7.4) entre spins du solide. Il peut également comprendre une contribution provenant d'un échange indirect (section 7.7). La ligne pleine est un ajustement exponentiel : la densification détruit l'échange dans les couches solides. Les barres d'erreur représentée sont de $\pm 20\%$, elles chiffrent les écarts autorisés sur Θ_W si l'on garde les autres paramètres fixes.

quer, ce paramètre est un paramètre moyen sur les couches (statistiques) solides. Il a pour origine un éventuel échange entre le solide et le liquide (échange indirect, section 7.7), et un échange entre atomes du solide (section 7.4), tout comme pour l'³He adsorbé sur graphite. Pour ce qui est de l'échange au sein des couches solides, on s'attend globalement à ce qu'il soit réduit par l'augmentation de leur densité (discussion de la section 7.8).

¹³Par opposition à la qualité des substrats plans de graphite. Rappelons que pour ces derniers, à basse pression la promotion se fait par paliers très clairs marquant la formation des couches atomiques.

Effectivement, la ligne pleine de la fig. 11.7 est un ajustement exponentiel conforme à ces notions. Notons qu'il est impossible de mettre en évidence ici un échange indirect entre le solide et le liquide, qui serait marqué par une anomalie sur ces courbes. Ce point est d'ailleurs également un sujet de controverse pour l' ^3He -2D (chapitre 8, et discussion de Roger et al. [18] 1998).

Nous pouvons nous interroger et nous demander pourquoi les autres groupes n'ont pas mis en évidence ces faits expérimentaux. Trois points sont à invoquer :

- En premier lieu, la quantité de solide est très faible, et son augmentation est corrélée à l'augmentation du nombre de spins dans le liquide. Si la gamme en température où se fait l'ajustement n'est pas assez large, n_{solide} et Θ_W sont de surcroît fortement couplés (problème rencontré par exemple par Triqueneaux [206] 2001). Comme l'un décroît lorsque l'autre croît, il est facile de "gommer" l'effet en obtenant des valeurs moyennes pour toutes les pressions. C'est ce que rapporte Haard [208] 2001. D'ailleurs, cet auteur n'explore qu'une faible gamme de pressions, certainement insuffisante pour mettre en évidence la promotion.
- Nous l'avons dit nos amplificateurs RMN sont très performants. Ils nous permettent de suivre les signaux à hautes températures (pour exemple, Barker et al. [146] 1998 sont limités à quelques mK), et ainsi de réaliser les ajustements de la fig. 11.4. De plus, notre technique de RMN continue nous donne accès directement à l'aimantation du système, les seules opérations requises étant la soustraction d'une ligne de base, puis une somme (section 4.2). Le cas de Haard [208] 2001 en RMN pulsée est moins enviable : mesurant un signal d'induction $s(t)$, dont les temps courts $t \rightarrow 0$ sont toujours manquants, il lui faut soustraire une ligne de base, réaliser une FFT et parfois une "correction de phase $\propto \omega$ " pour obtenir un pic d'absorption symétrique. L'extraction des largeurs et fréquences, pour minimiser le bruit, nécessite même un ajustement par plusieurs Lorentziennes de la ligne d'absorption obtenue. Notons que ces auteurs affirment, sur la base de résultats anciens de Ahonen et al. [5] 1978, qu'ils ne sont pas sensibles à la première couche solide : celle-ci aurait une relaxation trop rapide. Un recalage de nos données $M(T)$ sur les leurs à 30 bar environ montre pourtant raisonnablement que les quantités de solide adsorbé sont du même ordre dans leur cas et dans le nôtre¹⁴. Nous considérons que leur problème est avant tout un problème de résolution.

¹⁴Non représenté, le recalage se faisant entre $T_{C,b}$ et 10 mK, à quelques % sur la constante de Curie C globale (nous obtenons un facteur 1/220 de recalage, à $\pm 5\%$ près). Les données utilisées sont celles de l'article de Sprague et al. [136] 1995 à 28,6 bar.

- L'échelle de température doit également être excellente, si l'on veut déduire des valeurs absolues de solides. Dans notre cas, le thermomètre (fil vibrant placé tout à côté de l'aérogel, dans la même cellule) a été recalibré spécialement. Nous l'avons fait remarquer, l'échelle de température de certains auteurs peut être discutée.

Les valeurs proposées par les différents groupes pour le solide sont donc assez spéculatives. On retrouve le problème soulevé en section 7.1 concernant les premières expériences sur l' ^3He -2D. Globalement, il est fait référence de quelques couches atomiques (entre une et trois), et de Θ_W de l'ordre de 0,5 mK. Ces résultats sont néanmoins en accord semi-quantitatif avec nos mesures, qui mettent en évidence l'évolution des propriétés du solide avec la pression.

11.2.2 Echange rapide solide-liquide

La forme des raies de résonance contient également une information sur les champs locaux et l'échange entre atomes d' ^3He (voir le chapitre 4). Ces deux informations sont contenues dans la position de la raie de résonance et dans sa largeur, respectivement. Dans notre cas, nous sommes en présence de deux assemblées de spins : ceux du solide et ceux du liquide. Il existe deux cas limites pour comprendre le signal magnétique résultant :

- Soit les deux assemblées de spins sont complètement indépendantes, et donnent lieu chacune à une raie de résonance ayant ses caractéristiques propres (largeur, aire, position, etc...). Le signal total est alors simplement la somme des deux raies. C'est le cas de l' ^3He -2D (pics ferromagnétique et quasi-paramagnétique) décrit en section 8.4.
- Soit les atomes de la partie solide s'échangent " très rapidement " avec les atomes de la partie liquide. " Très rapidement " signifie que dans le temps caractéristique d'une précession de Larmor, il y a un grand nombre de sauts liquide-solide. Le signal magnétique global est alors une seule raie de résonance, dont les paramètres (position, largeur, etc...) sont des paramètres moyens. Ce cas limite est discuté dans la suite de ce manuscrit.

Le liquide normal a une signature en RMN qui est une raie symétrique étroite, alors que le solide adsorbé a une raie symétrique et large¹⁵. De même, la position de la résonance

¹⁵Lorsque les gradients de champs magnétiques sont suffisamment faibles, les symétries de l'Hamiltonien du problème garantissent que les raies RMN sont symétriques (Abragam [228]). Aussi, la largeur de raie du liquide est une mesure directe de l'inhomogénéité du champ magnétique, très faible dans notre cas. En revanche, la largeur RMN du solide est dominée par l'effet du champ dipolaire (largeur dipolaire en réseau rigide, Abragam [228]), réduite par l'échange J dans la couche. Dans notre discussion, nous négligeons

(champ de Larmor) est a priori la même pour les deux assemblées de spins, mais elles peuvent être distinctes si le champ local de l'une des assemblée est différent de l'autre (on pourrait par exemple imaginer des impuretés magnétiques dans la matrice de silice, décalant la raie solide).

Il y a plusieurs critères pour mesurer la position et la largeur d'une raie de résonance. La position peut être définie par le minimum de la raie d'absorption, ou par son premier moment. On peut également mesurer la position du " pied " de la résonance, que nous définissons comme la moyenne des deux champs où le signal d'absorption vaut 5 % de sa valeur maximale. La largeur quant à elle peut se mesurer par l'écart entre les deux champs où le signal d'absorption est égal à la moitié de son maximum (largeur à mi-hauteur), ou par le second moment de la raie. On peut également mesurer la largeur du " pied " de la résonance, c'est-à-dire l'écart entre les deux champs où le signal d'absorption vaut 5 % de sa valeur maximale. Pour les formes de raie standard (Lorentziennes, Gaussiennes), il existe une loi de proportionnalité simple entre largeur à mi-hauteur δ et le rapport de l'aire M à la hauteur H du pic d'absorption : $\delta \propto M/H$ (chapitre 4). Il est toujours possible de définir une largeur calculée par $\delta' = \frac{2}{\pi} M/H$, où le coefficient correspond au cas canonique $\delta = \delta'$ de la Lorentzienne.

Si la raie de résonance est la somme de deux raies de propriétés distinctes, elle va se déformer aux plus basses températures (car le poids du solide ne cesse d'augmenter vis-à-vis du liquide, et que les deux raies n'ont certainement pas exactement la même forme), et elle ne restera pas symétrique (si les champs de résonance sont distincts). En revanche, si la raie est une raie moyenne, elle conservera la même forme à toutes les températures (si tant est que " l'échange rapide " reste toujours aussi efficace), et seuls les paramètres moyens varieront en température. Aussi, la comparaison entre eux des différents critères exposés ci-dessus est un bon test pour savoir si la raie se déforme. Si la forme est fixe, tous les critères mesurant la même information se déduisent simplement les uns des autres par une transformation linéaire (du type $a(x - x_0)$). Au contraire si la forme varie, on s'attend à des déviations par rapport à ce cas simple, entre autres pour ce qui est de la mesure du " pied ", par rapport à la largeur à mi-hauteur.

Nous montrons en fig. 11.8 les positions (à gauche) et largeurs (à droite) telles qu'elles sont mesurées à 12,1 bar et 37,3 mT, entre 2 mK et 20 mK. Les lignes sont de simples ajustements linéaires, et nous ne repérons aucune anomalie sur ces courbes¹⁶. Nous concluons donc que

l'élargissement (et la déformation) de la raie solide par sa polarisation P (observée typiquement dans l' $^3\text{He-2D}$), ce qui se justifie par sa valeur d'à peine 4 % environ pour 1 mK et 17 bar. Ces points sont discutés en chapitre 4, et nous les abordons à nouveau dans la suite de cette section.

¹⁶ A l'inverse, la transition vers la superfluidité s'accompagne d'une forte déformation de la raie, visible clairement dans ce type de graphiques. L'échange rapide se fait entre un solide et un liquide (superfluide) ayant en chaque point de la cellule une résonance différente, du fait de la texture du paramètre d'ordre.

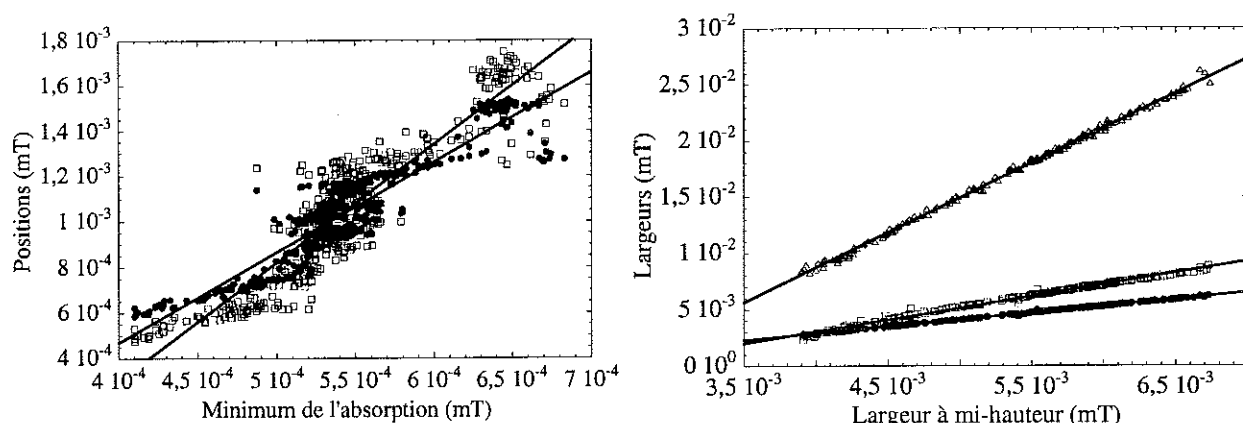


FIG. 11.8: Paramètres tirés des raies de RMN mesurées à 12,1 bar et 37,3 mT, entre 2 mK et 20 mK. A gauche, mesure de la position de la raie : (●) premier moment et (□) position du " pied " de la raie, l'axe horizontal est le minimum du signal en absorption. Notons que l'ensemble de ce graphique est contenu dans les barres d'erreur de $0,5 \cdot 10^{-3}$ mT que nous nous sommes fixés (section 4.2) ; nous dirons que tous ces critères sont simplement équivalents. A droite, mesure de la largeur de la raie : (□) second moment, (Δ) largeur du " pied " de la raie, (●) largeur calculée via l'aire et la hauteur, l'axe horizontal est la largeur à mi-hauteur de la raie d'absorption. La taille des symboles est de l'ordre de quelques pourcent, et les lignes sont des ajustements linéaires $a(x - x_0)$. Typiquement, pour toute pression, x_0 est de l'ordre de 2 mT, a est de l'ordre de 1 pour la largeur calculée, 2 pour le second moment et 6 pour la largeur du " pied " de la raie (la dispersion d'une désaimantation à l'autre est d'environ $\pm 15\%$).

nous n'avons qu'une seule raie moyenne, et non deux raies superposées. Ce résultat se retrouve pour toutes les pressions (au-dessus de $T_{C,b}$), et tous les champs magnétiques. La différence se trouve dans la précision des diverses mesures, et dans les coefficients des lois linéaires : en effet, ils sont légèrement différents à chaque désaimantation, du fait de la forme exacte de la raie de résonance obtenue¹⁷. En toute rigueur, ce résultat n'avait jamais été démontré auparavant (par manque de précision sur la raie RMN), il s'agissait alors seulement d'une hypothèse de travail.

Dans les barres d'erreur que nous nous sommes assignés, les paramètres de positions sont tous équivalents. Pour la largeur, nous avons des décalages systématiques x_0 de l'ordre de 2 mT, imputables aux techniques utilisées. Le coefficient de proportionnalité a est de l'ordre de 1 pour ce qui est de la largeur calculée, ce qui montre que la forme de la raie est proche d'une Lorentzienne. Ce résultat est attendu pour un liquide (voir Abragam [228]), mais il est important de noter que la contribution principale au signal magnétique vers 2 mK provient du solide (alors qu'à 20 mK, il est dû principalement au liquide) ; il est

Ce point est explicité en section 11.4.

¹⁷La forme dépend directement de la topologie du champ magnétique, qui varie légèrement à chaque désaimantation. Dans le cas du remplacement des couches solides par de l' ^4He , tous les paramètres des raies de résonance sont constants en température (voir la suite), il est donc difficile d'y définir des lois linéaires déduisant un paramètre via un autre (nous n'avons qu'un seul point). De plus, il semble que les lois $a(x - x_0)$ déduites avant l'adjonction d' ^4He ne s'appliquent plus ; il est probable que la forme de la raie change lorsque les couches d' ^3He disparaissent, ce qui serait encore une marque de leur influence.

probable qu'il s'agit là encore d'une marque de l'échange rapide liquide-solide. Rappelons enfin que nous n'avons pu mettre en évidence d'effet sur T_F^{**} et Θ_W dû à l'échange liquide-solide, car un ajustement de l'aimantation $M(T)$ est bien moins sensible que l'étude des paramètres largeur et position¹⁸.

Etant acquis que nous n'observons qu'une seule raie, symétrique et de forme constante, nous pouvons nous intéresser au comportement de ses paramètres moyens (position du champ b de résonance et largeur Δb), en fonction de la température. Les arguments de l'échange rapide, exposés dans l'article de Hammel et Richardson [161] 1984 et commenté dans la suite, amènent aux relations :

$$b = \frac{M_{solide} b_{solide} + M_{liquide} b_{liquide}}{M_{solide} + M_{liquide}} \quad (11.2)$$

$$\Delta b = \frac{M_{solide} \Delta b_{solide} + M_{liquide} \Delta b_{liquide}}{M_{solide} + M_{liquide}} \quad (11.3)$$

où b représente un champ de résonance, et Δb une largeur de raie, les indices se référant aux deux populations de spins. Ces relations sont extensivement utilisés dans la littérature consacrée aux phases superfluides confinées dans l'aérogel (au moins pour la première d'entre elles), voir par exemple Sprague et al. [129] 1995 et Barker et al. [146] 1998.

Nous montrons en fig. 11.9 les positions des raies obtenues dans 37,3 mT, à différentes pressions. La position de la raie mesurée à 17 bar lorsqu'il ne reste que 21 % de l'³He solide (après adjonction d'⁴He), est également représentée. Nous observons systématiquement au-dessus de 20 mK environ un décalage progressif de la raie. Cet effet est indépendant de la pression, et de la quantité d'³He solide présent. Force est de conclure qu'il s'agit d'un artefact induit par l'environnement de la cellule expérimentale. Ces effets se retrouvent de façon plus ou moins forte sur les données de Chen [204] 1999, nous les commentons brièvement en section 4.3.

Au-dessous de 20 mK, la résonance de la raie unique est stable, dans nos barres d'erreur (alors que, pour les expériences sans ⁴He, l'aimantation du solide croît continûment). Nous concluons donc que les champs b_{solide} et $b_{liquide}$ sont simplement égaux : il n'y a pas d'effet de champ local à la surface de la silice.

En fig. 11.10 à gauche, nous représentons les largeurs de raies à 17 bar (seconds moments, toujours entre 2 mK et 20 mK), dans différentes conditions : deux expériences ³He

¹⁸La RMN est une technique résonante, et donc très sensible, dans notre cas nous remontons à des champs locaux de l'ordre de $0,5 \cdot 10^{-3}$ mT (section 4.2). Notons que les mêmes observations sont faites sur les monocouches d'³He adsorbé sur graphite : alors que la constante d'échange tirée de l'aimantation est de l'ordre de 50 μ K, et semble stable (dans les barres d'erreur), la promotion des atomes dans le liquide s'accompagne d'un clair rétrécissement de la raie du solide (Rapp et Godfrin [45] 1993).

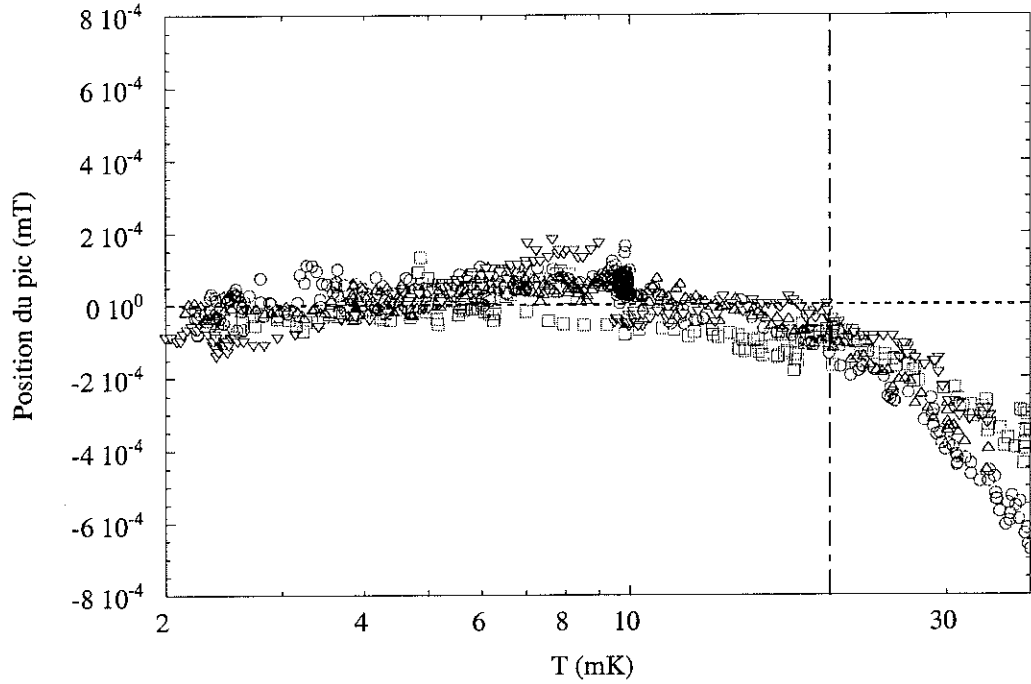


FIG. 11.9: Position de la raie unique, dans 37,3 mT, fonction de la température. Le zéro représente (par définition) le champ de Larmor B_L . (O) données à 17 bar, sans ^4He , (Δ) données à 17 bar, après adjonction d' ^4He (il ne reste que 21 % de l' ^3He solide). (∇) données à 5,2 bar, sans ^4He , ($\square$) données à 29,5 bar, sans ^4He . Au-dessous de 20 mK (ligne verticale tiretée), la résonance est stable (dans nos barres de $0,5 \cdot 10^{-3}$ mT), alors qu'au-dessus, l'environnement magnétique de la cellule influence le champ local.

pur (100 % du solide est présent), l'une avec le gradient de champ bien réglé, et l'autre avec un mauvais gradient, et deux expériences après remplacement partiel des couches solides par de l' ^4He (l'une avec 73 % du solide restant, et l'autre 21 %). Nous rappelons sur la droite de la fig. 11.10 l'aimantation $M(T)$ mesurée dans ces différents cas : c'est l'ajustement de ces données (lignes pleines) qui nous permet de définir la quantité d' ^3He remplacée dans le solide par de l' ^4He , via la relation (11.1).

Le Θ_W ajusté est représenté en encart de la fig. 11.10. A mesure que la quantité de solide magnétique diminue, ce paramètre devient de plus en plus difficile à définir. Il est obtenu ici en ajustant nos données jusqu'au-dessous de $T_{C,a}$, en utilisant les résultats des sections 11.3 et 11.4, afin d'élargir au maximum notre plage d'étude en température. Notons que cette variation du paramètre Θ_W , intéressante en elle-même, n'a cependant aucune incidence sur la discussion de cette section. La température de Curie-Weiss Θ_W semble décroître avec l'ajout d' ^4He , ce qui s'expliquerait par une densification des couches adsorbées¹⁹.

¹⁹Deux effets antagonistes prennent place : nous remplaçons la première couche d' ^3He paramagnétique, ce qui doit résulter en une augmentation apparente du Θ_W (discussion de la section précédente). Mais en même temps la densification des couches du fait du remplacement $^3\text{He}/^4\text{He}$ va avoir tendance à diminuer

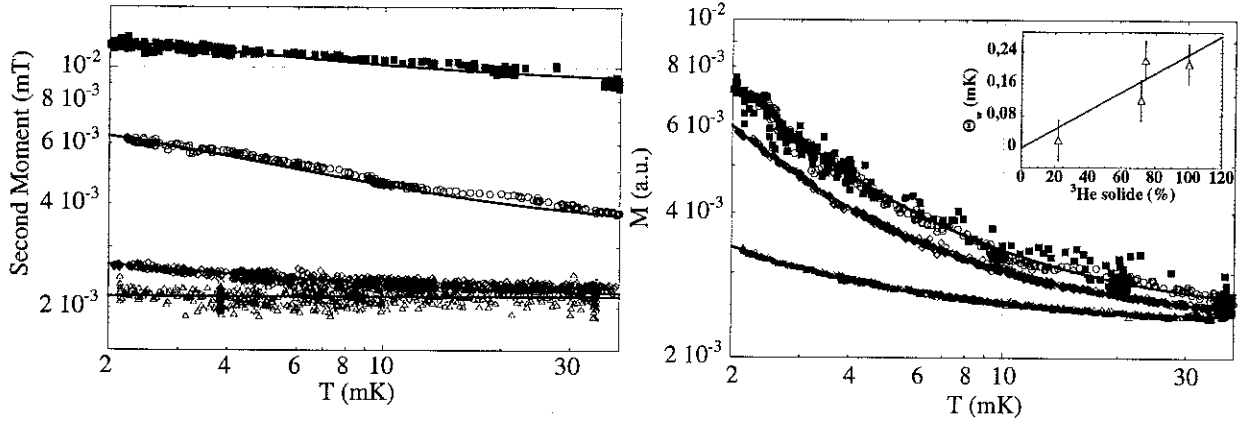


FIG. 11.10: Sur la gauche largeur de raie (par le second moment), fonction de la température, obtenue à 17 bar dans diverses conditions. Sur la droite, aimantation $M(T)$ correspondant à chaque cas : (○) cas ^3He pur (100 % de l' ^3He solide), dans 37,3 mT avec un gradient de champ bien ajusté. (■) ^3He pur (100 % de l' ^3He solide), dans 17,3 mT (aimantation recalée sur la mesure à champ plus fort), avec un gradient de champ mal ajusté. (◇) mesure dans 37,3 mT après adjonction d' ^4He , il reste 73 % du solide magnétique, le gradient de champ étant optimal. (△) mesure dans 37,3 mT après une nouvelle adjonction d' ^4He , il ne reste que 21 % du solide magnétique (le gradient de champ est encore une fois bien choisi). Les lignes pleines sont des ajustements commentés dans le texte; les barres d'erreur (non représentées) sont de l'ordre de quelques pourcent (notons qu'elles sont maximales pour la mesure de $M(T)$ en faible champ). L'encart à droite représente l'évolution de Θ_W avec l'adjonction d' ^4He , les barres d'erreur étant $\pm 20\%$ de 0,20 mK. La ligne est un guide pour les yeux.

Sur la fig. 11.10 à gauche, nous voyons qu'à mesure que le système se refroidit, lorsque du solide est présent sur l'aérogel, la largeur de raie augmente. Ce fait est également observé par Triqueneaux [149].

Les ajustements présentés sont du type (11.3), et utilisent les aimantations déduites des ajustements de la fig. 11.10 à droite. Ils nous permettent donc de remonter à la largeur associée à l'assemblée de spins solide Δb_{solide} , et celle de l'assemblée liquide $\Delta b_{\text{liquide}}$. Nous obtenons pour le gradient bien ajusté (c'est-à-dire dans le champ le plus homogène), et 100 % du solide magnétique (mesures sans ^4He), une largeur $\Delta b_{\text{solide}} \approx 0,0077$ mT et une largeur $\Delta b_{\text{liquide}} \approx 0,0033$ mT. La raie du solide est plus large que celle du liquide, ce que nous attendions par ailleurs, et nous commentons ces valeurs de façon systématique dans la suite. Si en revanche le gradient est mal ajusté, nous tirons $\Delta b_{\text{solide}} \approx 0,013$ mT, et $\Delta b_{\text{liquide}} \approx 0,0090$ mT : la différence entre solide et liquide se réduit, à la limite où le champ est très inhomogène l'effet discuté ici devient invisible, et l'on ne mesure qu'une raie de largeur constante en température (largeur inhomogène, chapitre 4). C'est le cas des premières expériences réalisées au laboratoire par Chen [204] 1999, et des résultats de Haard [208] 2001.

Après adjonction d' ^4He , l'effet tend à disparaître, prouvant clairement qu'il est associé

ce paramètre (voir la section 8.4), car l'interaction dans le solide est réduite à forte densité (section 7.6 et section 7.8).

aux couches solides. Lorsqu'il reste 73 % de l' ^3He solide, l'effet est encore décelable avec une largeur solide de $\Delta b_{\text{solide}} \approx 0,0030 \text{ mT}$: cette valeur est comparable à l'ensemble des valeurs extraites pour le liquide (voir la suite), ce qui nous pousse à conclure que la contribution la plus large provient avant tout de la première couche adsorbée, qui est remplacée en premier²⁰ par l' ^4He . Lorsqu'il ne reste plus que 21 % de l' ^3He solide, la largeur de raie est d'ores et déjà stable en température à $\Delta b_{\text{liquide}} \approx 0,0021 \text{ mT}$, valeur également obtenue lorsque tout la solide a disparu (non représenté en fig. 11.10, mais commenté ci-dessous). Nous présentons en fig. 11.11 l'ensemble des largeurs extraites de mesures en condition de gradient de champ similaires (champ de 37,3 mT, différentes pressions et différentes couvertures en ^4He). Nous n'avons malheureusement pas de mesures sur cette figure pour le

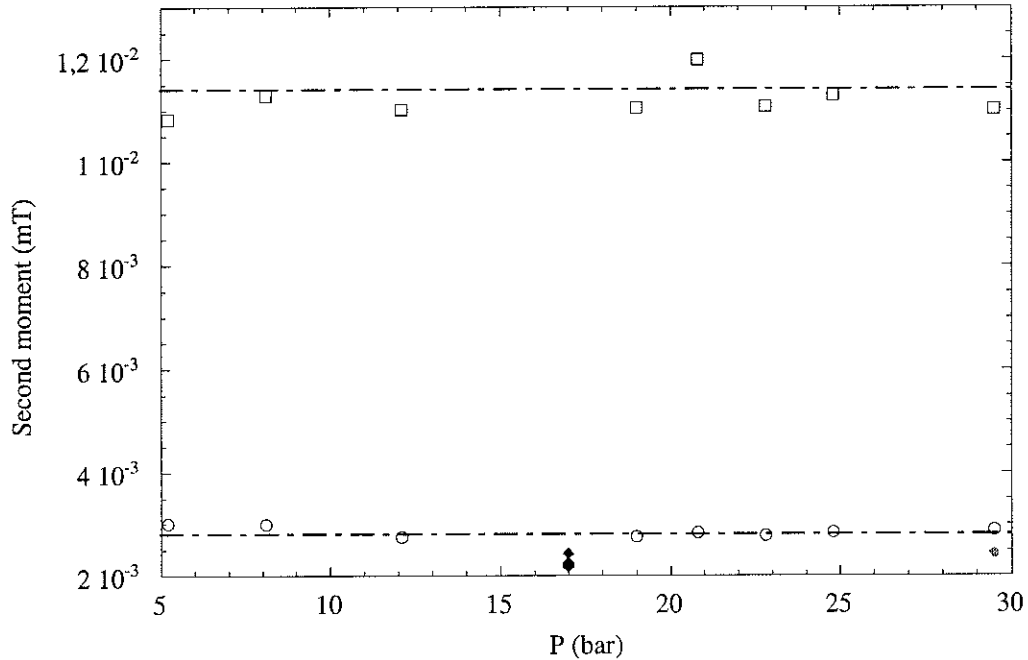


FIG. 11.11: Largeurs tirées de l'ajustement du second moment de la raie RMN obtenue à 37,3 mT, en fonction de la pression. (□) largeur solide Δb_{solide} obtenue dans le cas ^3He pur, (○) largeur liquide $\Delta b_{\text{liquide}}$ obtenue dans les mêmes conditions. Les symboles ◆ sont les largeurs de liquide tirées des expériences où les couches sont totalement, ou partiellement remplacées : 73 % de solide, 21 % de solide, 8 % de solide, et 0 % de solide restant (du plus foncé au plus clair). A l'ajustement du gradient de champ magnétique près, nous ne décelons aucune variation avec la pression (horizontales tiretées).

champ de 17,3 mT, l'ajustement du gradient n'étant jamais comparable²¹ à ces résultats.

²⁰Ce principe de remplacement est discuté en section 7.3, et mis à profit également en chapitre 8. Notons que pour l' ^3He adsorbé sur graphite, la raie RMN de la première couche dense est également plus large que celle des couches supérieures, où le moyennage par échange est plus efficace (Rapp et Godfrin [45] 1993).

²¹A champ magnétique faible, les résultats sont similaires, nous ne décelons pas de changement de nature dans cet effet attribuable au champ magnétique (fig. 11.10, à 17 bar mesures dans les deux champs disponibles pour E4). Nous n'avons simplement pas représenté toutes les données par souci de clarté, le

La largeur obtenue à 17 bar ne figure d'ailleurs pas sur ce graphique, les conditions de gradient étant également très légèrement différentes.

Nous obtenons pour le liquide et le solide des largeurs (seconds moments) indépendantes de la pression (à l'ajustement du gradient près), $\Delta b_{\text{liquide}} \approx 0,0025 \text{ mT}$ et $\Delta b_{\text{solide}} \approx 0,011 \text{ mT}$ respectivement. Les valeurs déduites pour les largeurs à mi-hauteur sont légèrement différentes, du fait de la forme exacte du pic d'absorption : $\Delta b_{\text{liquide}} \approx 0,004 \text{ mT}$ et $\Delta b_{\text{solide}} \approx 0,008 \text{ mT}$. La valeur de la largeur du liquide se retrouve sur la raie stable en température, obtenue lorsque tout l' ^3He solide a été remplacé par de l' ^4He : cette valeur est simplement conditionnée par l'inhomogénéité (ou gradient) du champ magnétique sur la cellule.

En effet, pour comprendre ces résultats, il faut les relier aux mesures que l'on peut obtenir par des techniques de RMN pulsée (introduction en chapitre 4). Les signaux continus et pulsés sont les transformés de Fourier l'un de l'autre. Dans un champ magnétique parfaitement homogène $\vec{B}$ suivant z , le temps de décroissance en pulsé sera T_2 , temps RMN correspondant au déphasage des spins nucléaires dans le plan (x, y) . En présence d'un champ inhomogène d'étalement ΔB , le signal global est la convolution de la réponse intrinsèque du système et de la distribution de champ. On obtient une nouvelle fonction, dont le temps RMN de décroissance caractéristique est de l'ordre de $1/T_2^* = 1/T_2 + \gamma \Delta B/2$, où γ est le facteur gyromagnétique de l' ^3He déjà introduit. La largeur de raie continue (à mi-hauteur) se déduit par la transformation de Fourier, $\frac{1}{2} \gamma \Delta b T_2^* \approx 1$. Le T_2 du liquide est très long (des secondes, Wilks [221] et discussion ci-dessous) et vérifie $1/T_2 \ll \gamma \Delta B/2$. La largeur Δb mesure donc l'inhomogénéité $\Delta b \approx \Delta B$, et nous obtenons $T_2^* \approx 15 \text{ ms}$ d'après la fig. 11.11 ($\Delta b_{\text{liquide}} \approx 0,004 \text{ mT}$ en largeur à mi-hauteur), pour toutes nos données dans les meilleures conditions de gradient ; nous n'avons pas accès ici au T_2 vrai du liquide. Les mouvements dans le liquide, responsables de ce T_2 très long, ne réduisent pas ΔB (dite contribution inhomogène), qui prend place à des dimensions trop grandes, de l'ordre du cm (taille de la cellule).

Pour le solide adsorbé, T_2 est bien plus court (de l'ordre de 10 ms, Franco [196] 1985) du fait de l'interaction dipolaire, qui n'est que faiblement réduite par l'échange J (comparativement au mouvement dans le liquide). La largeur de raie solide est presque dominée par cet effet, masquant en partie l'inhomogénéité ΔB du champ (valeurs discutées en chapitre 4). Cette contribution dépend de la densité ρ de la couche, et sa stabilité en pression s'explique simplement en disant que la contribution majeure au signal solide vient de la première couche, de densité maximale fixe (environ $11,0 \text{ at/nm}^2$ déjà mentionné).

gradient n'ayant pas toujours été ajusté de la même façon : les tests expérimentaux nous ont demandé d'ajuster parfois le gradient à froid ($300 \mu\text{K}$), et parfois à chaud (10 mK). Notons également que le réglage du gradient dépend du champ magnétique de mesure utilisé.

Une dernière signature de l'échange rapide liquide-solide se trouve dans la dissipation de la puissance radiofréquence injectée par RMN (chapitre 4). La cellule se compose d'un ballast thermique d' ^3He baignant des échangeurs d'argent frittés de très grande surface spécifique (environ 100 m^2 dans notre cas), et de la tige où l' ^3He est en contact avec l'aérogel (environ 6 m^2). Cette cellule est présentée chapitre 3.

L' ^3He liquide massif est évidemment en échange rapide avec l' ^3He adsorbé sur toutes les surfaces, argent fritté, aérogel et les parois de la cellule elle-même (négligeables ici). L'adjonction d' ^4He remplace les couches solides sur l'ensemble de ces surfaces. Notons d'ailleurs que du fait de la géométrie de la cellule, l' ^4He remplit en premier lieu les échangeurs, et entre ensuite dans l'aérogel. Pour cette raison il est impossible de connaître la fraction de l' ^4He introduit qui réellement atteint l'aérogel; la procédure d'introduction est d'ailleurs cruciale²².

En fig. 11.12 nous montrons l'évolution de l'aimantation mesurée autour de 4 mK dans 37,3 mT en fonction de la puissance radiofréquence injectée continûment sur la bobine RMN ($2H_1$, amplitude du champ radiofréquence appliqué). Avant l'adjonction d' ^4He , nous ne décelons presque aucune surchauffe des spins nucléaires (ajustement pointillé, le même résultat est obtenu qualitativement à 17,3 mT). Lorsqu'il ne reste plus que 21 % de l' ^3He sur les brins de silice, le système est d'ores et déjà très sensible à l'injection radiofréquence, ce qui marque l'importance des couches adsorbées²³ également sur l'argent fritté (qui à ce stade sont complètement remplacées²⁴ par de l' ^4He). La même dépendance est d'ailleurs obtenue lorsqu'il ne reste plus d' ^3He solide sur l'aérogel (dans les deux cas, ajustement en trait plein). Notons que dans le même temps position et largeur du pic, mesurés par les différents critères, sont stables²⁵ dans nos barres d'erreur.

Les lignes de la fig. 11.12 correspondent à des lois $1 - \beta(H_1)^2$. Selon Abragam [228], le coefficient quadratique β s'écrit $\frac{1}{2}\gamma^2 T_1 T_2$, où γ représente toujours le rapport gyro-magnétique, et T_1, T_2 sont les temps de relaxation RMN (chapitre 4). Nos résultats donnent une borne supérieure à $\sqrt{T_1^{3\text{He}} T_2^{3\text{He}}} \leq 0,26\text{ s}$ dans le cas ^3He pur. Nous mesurons en revanche $\sqrt{T_1^{4\text{He}} T_2^{4\text{He}}} \approx 2,3\text{ s}$ après l'adjonction d' ^4He .

²²La seule façon de mesurer efficacement le remplacement est l'ajustement des courbes $M(T)$ (fig. 11.10 à droite). La simple introduction d' ^4He ne garantit pas que les atomes atteignent l'aérogel. Pour cette raison, nous introduisons une quantité calibrée d' ^4He (en ccSTP), puis nous poussons ces atomes en "flushant" la cellule à plusieurs reprises avec de l' ^3He .

²³Le phénomène est de nature différente pour l' ^3He -2D (section 4.2), où le chauffage est dû à la dissipation d'énergie par courants de Foucault dans le graphite.

²⁴En effet, les 100 m^2 de surfaces d'argent fritté correspondent grossièrement à 40 ccSTP. A ce stade de l'expérience, nous avons déjà 51,7 ccSTP dans la cellule expérimentale.

²⁵En présence d'un fort camp radiofréquence H_1 on écrit $1/T_2^* = 1/T_2(1 + \gamma^2 H_1^2 T_1 T_2)^{1/2} + \gamma \Delta B/2$ (Abragam [228]). Si le champ de résonance est fixe comme on s'y attend, le fait que la largeur soit fixe dans le cas ^4He (alors que l'aimantation varie fortement) prouve encore une fois que l'on ne mesure que la contribution inhomogène au T_2^* , à savoir $2/(\gamma \Delta B)$.

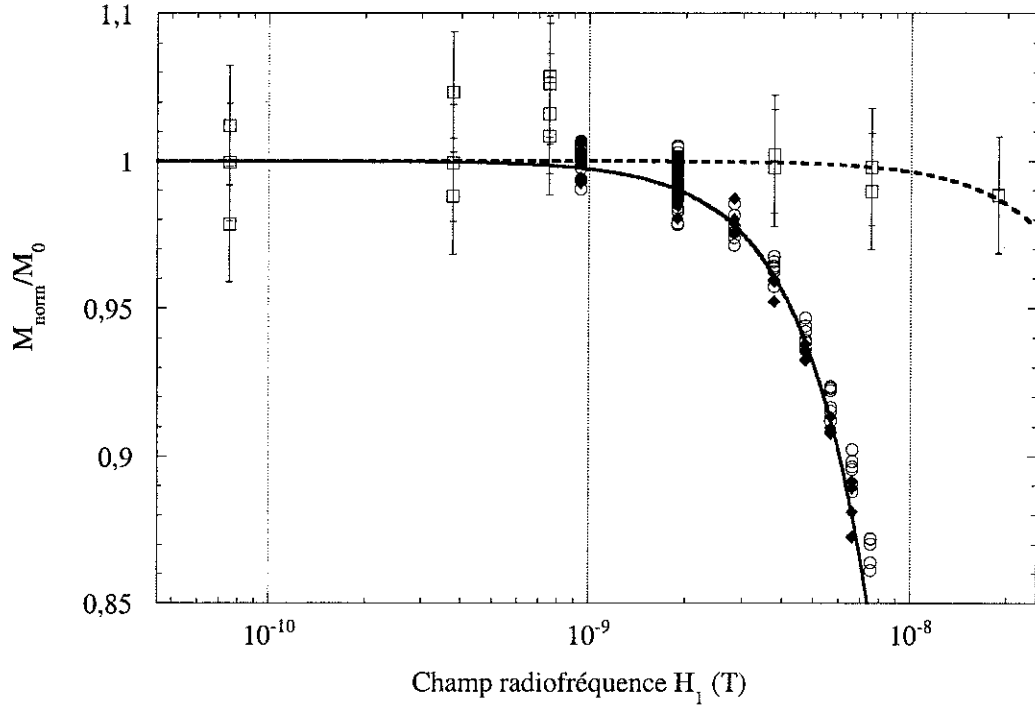


FIG. 11.12: Aimantation normée vers 4 mK dans 37,3 mT, en fonction de la puissance radiofréquence sur la bobine RMN (champ H_1 en mT, calculé grâce au chapitre 2). Les symboles $\square$ correspondent au cas ^3He pur à 5,2 bar et 3,5 mK. Nous représentons également des données en présence d' ^4He à 17 bar : ($\circ$) 21 % du solide est présent (5 mK environ), et $\blacklozenge$ il ne reste plus d' ^3He solide (4,1 mK). Les lignes sont des ajustements quadratiques $1 - \beta(H_1)^2$, commentés dans le texte. Dans le cas de l' ^3He pur, cet ajustement est dans les barres d'erreur (+/-2 %), il s'agit d'une borne supérieure pour β .

Ces résultats sont à rapprocher du modèle développé par Hammel et Richardson [161] 1984, commenté par Schuhl et al. [159] 1987. Décrivant la situation ^3He pur, il est basé sur trois hypothèses simples :

- Le liquide et le solide sont en échange rapide. Nous renvoyons pour la démonstration de ce point à la discussion ci-dessus concernant nos résultats. Permettons-nous un commentaire à ce niveau : l'hypothèse est que tout le liquide est en échange rapide avec le solide, c'est-à-dire que les cavités (disons de rayon R) de l'aérogel sont suffisamment petites pour que le temps de diffusion pour un spin du centre aux parois situées à la périphérie de ces cavités, $\tau_D = R^2/(\pi^2 D_\sigma)$, soit plus court que le temps associé aux mécanismes de relaxation en surface²⁶ (Godfrin et al. [151] 1980).
- La relaxation intrinsèque du liquide est négligeable face à celle du solide. En effet, il existe un facteur 100 voire 1000 entre les temps de relaxation mesurés dans le liquide et le liquide confiné (Godfrin et al. [151] 1980).

²⁶Dans notre cas pour des cavités de l'ordre de 150 nm (sous-section 10.2.2), nous obtenons aux pressions intermédiaires pour 1 mK $\tau_D \approx 10^{-10}$ s, évidemment négligeable.

- Les temps de relaxation dans le solide sont constants en température. Ce fait à été vérifié sur des couches d' ^3He adsorbé sur graphite, sans liquide en contact (Franco [196] 1985).

Après avoir été des sujets de controverse, ces trois points sont donc à l'heure actuelle expérimentalement bien vérifiés. Hammel et Richardson [161] 1984 fournissent pour T_1 et T_2 (notés $T_{1,2}$ ci-dessous) les relations :

$$T_{1,2} = T_{1,2}^{solide} \left(1 + \frac{T}{\frac{n_{liquide}}{n_{solide}} T_F^{**}} \right) \quad (11.4)$$

valable dans le liquide normal confiné pour $\Theta_W < T < T_F^{**}$, où $T_{1,2}^{solide}$ représente les temps de relaxation dans les couches solides. Cette loi linéaire en T a été vérifiée à de nombreuses reprises (par exemple Schuhl et al. [159] 1987). Dans notre cas, $\frac{n_{liquide}}{n_{solide}} T_F^{**}$ est de l'ordre de 5 mK pour toute pression, ce qui pour l'analyse de nos résultats signifie $T_{1,2}^{3He} \approx T_{1,2}^{solide}$ dans le cas ^3He pur. Lorsque les couches magnétiques sont supprimées (par l' ^4He), ce modèle n'est plus valide et nous notons pour simplifier $T_{1,2}^{4He} \approx T_{1,2}^{liquide}$.

Considérons simplement $T_1 = T_2$, justifié pour le liquide (Abragam [228]). Pour le solide, nous ne cherchons qu'à définir une borne supérieure et cette approche est suffisante. Nos données apportent $T_{1,2}^{3He} \leq 260$ ms vers 4 mK, en accord avec les résultats de Godfrin et al. [151] 1980 pour différents types de confinement, ceux de Schuhl et al. [159] 1987 concernant l' ^3He dans des microsphères de Fluorocarbène, et les mesures de Sachrajda et al. [154] 1984 dans des capillaires de verre. Pour le solide 2D, ces auteurs proposent $T_{1,2}^{solide} \approx 10$ ms à un facteur cinq près, en accord avec les résultats de Franco [196] 1985 sur l' ^3He -2D.

Nous déduisons également $T_{1,2}^{4He} \approx 2,3$ s, en bon accord avec les résultats usuels sur l' ^3He massif. En effet, $T_{1,2}^{liquide} \gg T_{1,2}^{solide}$, mais toutes les impuretés magnétiques présentes dans la cellule, et tous les mécanismes d'interactions avec les surfaces vont réduire ces $T_{1,2}^{liquide}$. Ces temps montrent un plateau vers 1 K, et croissent aux plus basses températures. Les temps les plus longs mesurés dans les meilleures conditions sont de $T_1^{liquide} \approx 300$ s, et $T_2^{liquide} \approx 20$ s au niveau du plateau, voir Wilks [221] et Godfrin et al. [151] 1980 par exemple, et les références correspondantes. Dans notre cas, la forte proportion de surfaces (même recouvertes d' ^4He) réduit ces temps à l'échelle de la seconde.

Ces résultats marquent l'importance de l'échange rapide dans la relaxation de la puissance injectée (phénomène connu sous le nom de relaxation par les surfaces, voir par exemple Godfrin et al. [151] 1980 et les références de cet article). Ils rappellent également qu'en présence d' ^4He , les mesures de RMN continue doivent être effectuées à faible niveau, ce qui si l'amplificateur utilisé n'est pas de bonne qualité peut être rédhibitoire dans ce type d'expériences.

En conclusion, nous avons mis en évidence le phénomène d'échange rapide par divers moyens, grâce à la qualité de nos bobines de champ et de l'environnement magnétique de nos cellules expérimentales. Outre l'importance de ce phénomène, nous avons pu remonter aux principaux paramètres RMN associés à chaque assemblée de spins.

La largeur de raie RMN du liquide est extrêmement faible (0,0025 mT pour le second moment), et due à l'inhomogénéité du champ magnétique. Elle correspond à des temps T_2^* de l'ordre de 15 ms.

La largeur RMN du solide (0,011 mT) est de l'ordre de ce que nous obtenons en chapitre 8 pour l' ^3He -2D sur graphite (0,015 mT). Elle est due à l'interaction dipolaire, avant tout dans la première couche solide, réduite par l'échange J .

Enfin, nous évaluons les temps de relaxation T_1 et T_2 pour le solide magnétique à moins de 260 ms. Pour le liquide (c'est-à-dire cellule sans ^3He adsorbé) nous avons $T_1^{\text{liquide}} \approx T_2^{\text{liquide}} \approx 2$ s, ordre de grandeur nécessaire à la section suivante.

11.2.3 Diffusion de spin dans l'aérogel

Après l'adjonction d' ^4He , nous nous sommes livrés à des mesures de diffusion de spin. Pour ce faire, nous avons travaillé à une fréquence f_0 de 1,095 MHz (champ de 33,7 mT, dans la limite des champs faibles²⁷), en utilisant, par la technique des échos de spin en RMN pulsée, des séquences dites $\frac{\pi}{2} - \tau - \frac{\pi}{2}$ et $\frac{\pi}{2} - \tau - \pi$ (section 4.2). Pour une pression P et un gradient de champ magnétique G_z fixés (de l'ordre de 0,023 mT/cm, à $\pm 0,005$ mT/cm), nous avons régulé le réfrigérateur à des températures données (entre 1 mK et 100 mK), et mesuré l'écho $H(t)$ de spin (et déduit sa hauteur H à son maximum) pour différents délais τ . La hauteur H_0 est une extrapolation des mesures en $\tau = 0$.

Nous avons étudié deux pressions, 0,5 bar et 29,5 bar. Nous avons mesuré au préalable, en RMN continue, toute quantité d' ^3He solide restante détectable. Pour 0,5 bar, aucune contribution solide n'est mise en évidence. En revanche à 29,5 bar, nous obtenons

²⁷Le champ magnétique appliqué permet dans l' ^3He massif la propagation d'ondes de spin orthogonales à ce champ, sans atténuation. Elles correspondent à un courant "réactif" d'aimantation, dont on rend compte à l'aide d'un coefficient de diffusion de spin complexe $D = D_\sigma / (1 + i\lambda 2\pi f_0 \tau)$ (effet Leggett-Rice, nous considérons les résultats expérimentaux de Candela et al. [152] 1986). Le coefficient λ ne dépend que des paramètres de Landau (il s'écrit $(F_1^a/3 - F_0^a)/[(1 + F_0^a)(1 + F_1^a/3)]$, référence citée ci-dessus), et le temps de vol des quasi-particules τ utilisé ici s'écrit dans nos notations (section 10.1.1) $\tau = l_\sigma / [v_F^*(1 + F_0^a)]$, avec $D_\sigma = \frac{1}{3} v_F^* l_\sigma$. Les résultats de Candela et al. [152] 1986 combinés à ceux de Triqueneaux [206] 2001 apportent $\lambda \approx 1,80$ à 0 bar, et 1,67 à 12,3 bar. Nous extrapolons (linéairement) 1,50 pour 29,5 bar. Des mesures de coefficient de diffusion de spin de Sachrajda et al. [154] 1984, nous calculons que $\lambda 2\pi f_0 \tau \approx 0,7$ et 0,2 pour 0,5 bar et 29,5 bar respectivement dans notre champ magnétique, à 3 mK (soit légèrement au-dessus de $T_{C,b}$). Ce mécanisme est donc négligeable dans notre cas, et ne peut en aucun cas expliquer le début de saturation que nous observons dès 45 mK.

$n_{\text{solide}}/n_{\text{liquide}}(0) = 0,25\%$. Il est probable que cette faible composante solide n'affecte en rien nos résultats en diffusion de spin.

En fig. 11.13 nous montrons un écho typique obtenu à 0,5 bar et 0,028 mT/cm, pour 18,85 mK. Des résultats similaires sont obtenus à 29,5 bar.

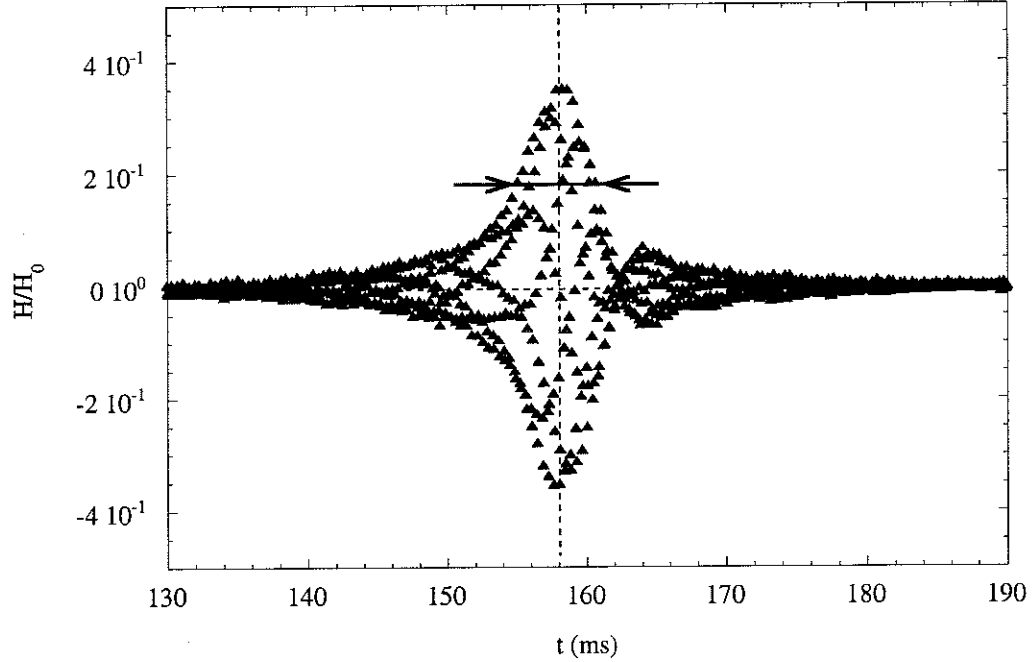


FIG. 11.13: Echo de spin normé $H(t)/H_0$ fonction du temps t , obtenu à 0,5 bar et 18,85 mK (champ 33,7 mT), pour 0,028 mT/cm. Le délai τ était de 78 ms, la séquence de pulse de type $\frac{\pi}{2} - \tau - \frac{\pi}{2}$. La forme est caractéristique du sinus cardinal, et la largeur à mi-hauteur (représentée par la double flèche) est de l'ordre de $2T_2^* \approx 6,5$ ms (largeur à mi-hauteur en RMN continue de 0,02 mT). Le zéro du signal, et la position de l'écho sont représentés par les lignes pointillées.

Pour chaque pression P et gradient G_z , et chaque type de séquence de pulse utilisés, H_0 (mesure de l'aimantation M) et la forme de l'écho (mesure du gradient) sont pratiquement constants en température. La forme de l'écho est également indépendante du délai τ . Elle rappelle le sinus cardinal, transformée de Fourier de la porte (de largeur ΔB , distribution qualifiant l'inhomogénéité du champ due à G_z). Ces résultats garantissent la stabilité de notre dispositif expérimental sur l'ensemble d'une mesure en pression.

Comme nous le décrivons ci-dessous, la définition du coefficient de diffusion D_σ dépend directement du gradient G_z utilisé. Il est donc indispensable de connaître ce paramètre au mieux. Il est défini par le courant imposé dans nos bobines de gradient, mais également par la largeur de l'écho (environ $2T_2^*$) et le coefficient de diffusion à haute température, où il est raisonnable de penser que l'on retrouve le comportement de l' ^3He massif. En fig. 11.13 nous avons $2T_2^* \approx 6,5$ ms, soit $\Delta b \approx 0,02$ mT à mi-hauteur, pour 0,028 mT/cm en accord avec nos calibrations de la section 4.2.

Dans le cas de l' ^3He massif, les équations de Bloch (voir Abragam [228]) amènent $H = H_0 e^{-2\tau/T_2 - A\tau^3}$ avec $A = \frac{2}{3} D_\sigma (\gamma G_z)^2$, les constantes ayant été définies. Nos mesures s'effectuent sur des temps 2τ au maximum de 700 ms. Or, le temps T_2 que nous mesurons pour l' ^3He massif est supérieur à deux secondes (discussion ci-dessus), et nous pouvons oublier la contribution en $-2\tau/T_2$.

Les pulses les plus longs que nous utilisons sont de $60 \mu\text{s}$, soit largement plus courts que toute autre échelle de temps RMN, ce qui justifie leur nom de pulse.

Entre chaque pulse, nous attendons environ 4s, temps supérieur au T_1 estimé ce qui assure le retour à l'équilibre du système avant toute nouvelle mesure.

Nous représentons donc en fig. 11.14, $\ln(H/H_0)$ en fonction de $A\tau^3$, la constante A étant choisie de façon à ce que la ligne pleine soit une droite de pente 1.

Le coefficient A est indépendant de la méthode de pulse employée, comme on s'y attend, alors que la hauteur H_0 en est fonction.

Sur la fig. 11.14, aux temps les plus longs (non représentés) le signal est dominé par le bruit d'environ $\sqrt{V^2} \approx 5 \text{ mV}$ que nous détectons. Il donne lieu à une saturation vers une valeur constante d'environ 0,5 % du signal H_0 .

Aux temps les plus courts, nous observons une courbure sur la fig. 11.14 (agrandissement en encart). Si l'on étudie les temps où apparaissent, dans les différentes conditions de température, ces courbures, nous notons clairement qu'il ne peut s'agir d'un recouvrement entre l'écho et le second pulse appliqué. De plus, la normalisation par A semble conserver cette courbure (dans nos $\pm 5\%$), ce qui semble montrer qu'il s'agit d'un phénomène lié à la diffusion.

Il est d'ailleurs possible de rendre compte de ce type de courbure à temps courts²⁸ à l'aide d'un modèle simple discuté brièvement dans la suite.

Nous négligeons dans l'étude de cette section les courbures observées aux temps courts et aux temps très longs. L'ordonnée à l'origine de -0,22 pour l'ajustement représentera pour nous la vraie hauteur du signal pulsé en $\tau = 0$ (soit 80 % de H_0). La réalisation du graphique fig. 11.14 nous permet de définir les valeurs de la constante A . Nous vérifions ainsi la loi de diffusion usuelle (exponentielle en τ^3) dans la gamme $A\tau^3$ allant de 0,5 à 4 environ, en toutes conditions. En ce sens, le processus de diffusion est un phénomène macroscopique bien défini.

²⁸Cette approche fait apparaître également une courbure à temps longs, qui en toute rigueur ne peut être observée ici du fait du bruit $\sqrt{V^2}$.

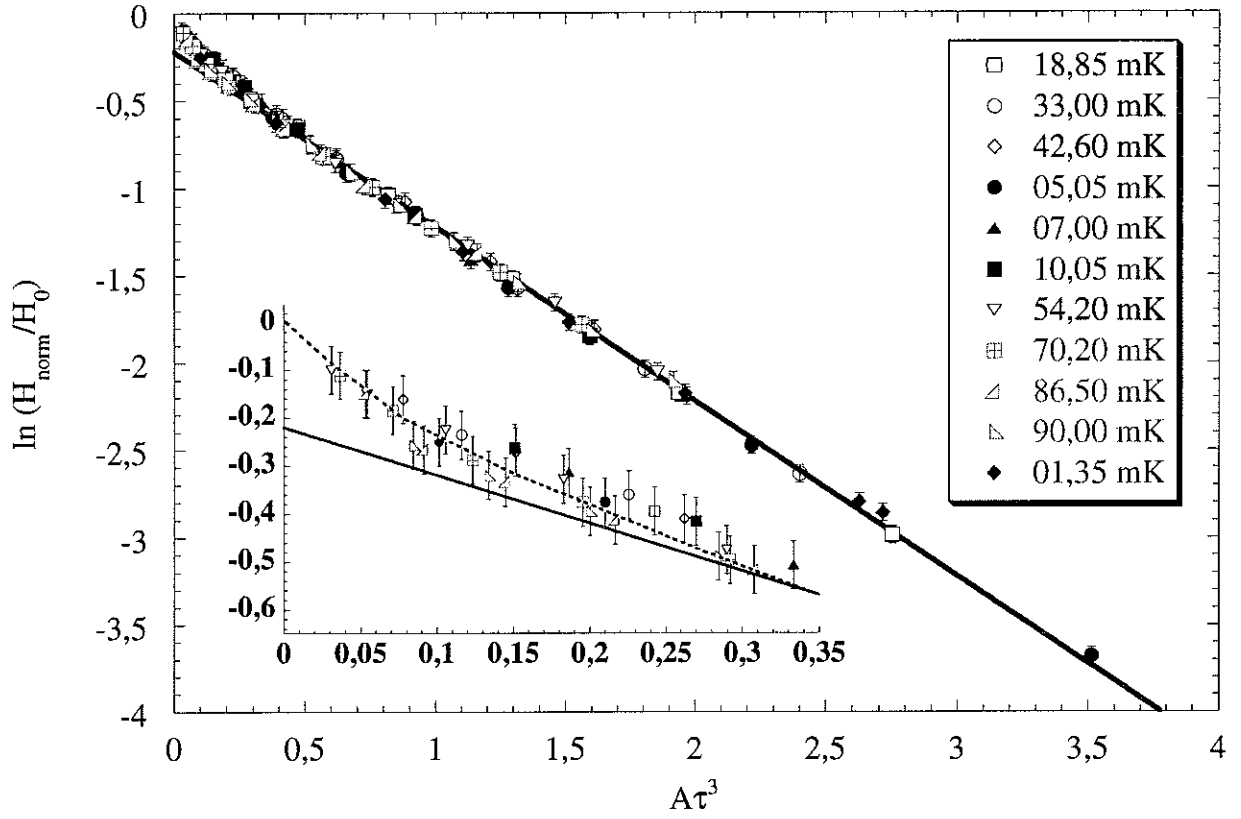


FIG. 11.14: Logarithme de la hauteur normée de l'écho $\ln(H/H_0)$, en fonction de $A\tau^3$ (axes sans dimensions). Cette figure résume l'ensemble de nos données en diffusion de spin mesurées à 0,5 bar, le gradient étant constant ($G_z = 0,028 \text{ mT/cm}$). Les deux séquences de pulses ont été utilisées. Les barres d'erreur représentent $\pm 5\%$. L'encart est un agrandissement du comportement aux temps courts, et la ligne pleine est un ajustement linéaire $-0,22 - 1(A\tau^3)$. Ces points sont commentés dans le texte. Les hauteurs H_0 sont respectivement de 0,475 V et 0,820 V pour les séquences $\frac{\pi}{2} - \tau - \frac{\pi}{2}$ et $\frac{\pi}{2} - \tau - \pi$.

Nous montrons en fig. 11.15 nos résultats en diffusion de spin obtenus à 0,5 bar, utilisant un gradient de $G_z = 0,028 \text{ mT/cm}$. Sont également représentés les résultats standard pour l' ^3He massif (Anderson et al. [153] 1962 et Sachrajda et al. [154] 1984), et une mesure sur un échantillon d'aérogel dans le cas ^3He pur (Taubenreuther et al. [155] 2000, données communiquées par Eska [160]).

Nos données commencent à dévier du comportement de liquide de Fermi en $1/T^2$ à partir de 40 mK environ. Elles saturent vers $6,7 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$ environ, aux plus basses températures. Ce comportement est en accord avec l'idée que lorsque le libre parcours moyen l_σ dépasse la taille des pores (distances entre filaments de silice), le libre parcours moyen réel est limité par le confinement. L'approximation la plus simple consiste à considérer deux processus de collision indépendants, entre quasi-particules et entre les quasi-particules et les surfaces

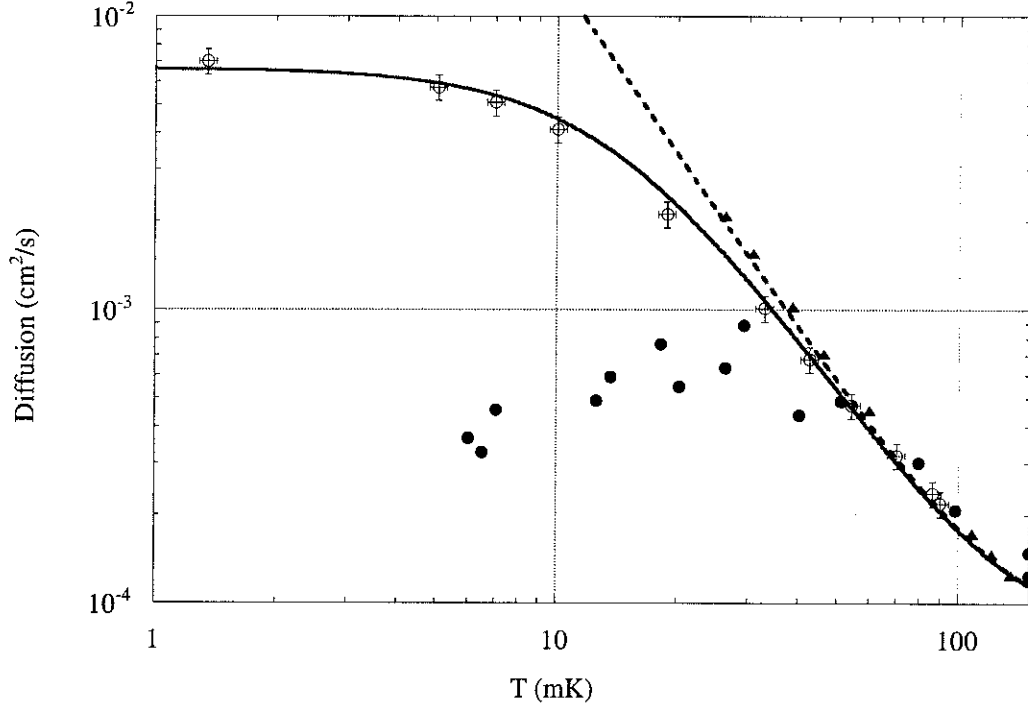


FIG. 11.15: Coefficient de diffusion de spin fonction de la température, au alentours de la pression nulle. $\blacktriangle$: données d'Anderson et al. [153] 1962 (0,85 bar, 2,62 mT et environ 0,06 mT/cm) recalées sur les mesures plus récentes de Sachrajda et al. [154] 1984, pour l' ^3He massif dans 21,8 mT et $G_z \approx 0,15$ mT/cm (loi pointillée à 0,5 bar en $1,35/T^2$, la courbure haute température est un guide pour les yeux). $\bullet$: données de Taubenreuther et al. [155] 2000 obtenue sur de l' ^3He confiné dans un échantillon d'aérogel à 96,5 %, sans adjonction d' ^4He (données à pression de vapeur saturante, 70 mT et 4 mT/cm). $\circ$: nos données à 0,5 bar (33,7 mT et $G_z = 0,028$ mT/cm) pour de l' ^3He confiné dans un aérogel 98 % où les couches solides sont constituées d' ^4He . La ligne pleine est un simple ajustement $D_\sigma^{Aéro} = D_\sigma / (1 + (l_\sigma / l^{Aéro}))$, où $l^{Aéro}$ représente une longueur caractéristique attribuée à l'aérogel, les autres grandeurs ayant été définies par ailleurs (ici, nous avons $l^{Aéro} = 35$ nm). Il est commenté dans le texte. Les barres d'erreur sur nos données sont estimées à environ $\pm 10\%$ en $D_\sigma^{Aéro}$ et $\pm 5\%$ en T .

de silice. On en déduit la loi simple :

$$D_\sigma^{Aéro} = D_\sigma \frac{1}{1 + (l_\sigma / l^{Aéro})}$$

où $D_\sigma^{Aéro}$ représente la diffusion au sein de l'aérogel, D_σ la diffusion dans l' ^3He massif, l_σ désigne toujours le libre parcours moyen dans le liquide de Fermi (selon la section 10.1.1, on a $D_\sigma = \frac{1}{3} v_F^* l_\sigma$), et $l^{Aéro}$ est une longueur caractérisant le réseau de silice. Il s'agit également du point de départ proposé par Tastevin et al. [124] 2000. Cet ajustement est représenté en fig. 11.15 par la ligne pleine. Sa qualité est raisonnable, notons cependant qu'il semble surestimer $D_\sigma^{Aéro}$ dans la zone intermédiaire saturation/liquide massif (autour de 20 mK). Utilisant les données de Sachrajda et al. [154] 1984 pour D_σ , et 5 807 cm/s pour v_F^* (Halperin et al. [125]), nous déduisons $l^{Aéro} \approx 35$ nm.

Si l'on se rappelle que l_σ est relié au libre parcours moyen géométrique l_0 par $l_\sigma =$

$l_0(1+F_0^a)f_\eta(\lambda_{1+}^s)$ (sous-section 10.1.1), où $(1+F_0^a)f_\eta(\lambda_{1+}^s) \approx 1/4$, la longueur géométrique rattachée à l'aérogel est plutôt $l_0^{Aéro} = l^{Aéro} / [(1+F_0^a)f_\eta(\lambda_{1+}^s)] \approx 140$ nm, comparable aux tailles caractéristiques des pores de l'aérogel discutées en section 10.2.

Une approche légèrement plus sophistiquée est obtenue si l'on considère une distribution de longueurs $l_0^{Aéro}$ basée sur les lois obtenues par le groupe de Halperin et al. [125] (section 10.2) en simulation DLCA. Il en résulte une distribution de $D_\sigma^{Aéro}(l^{Aéro})$, et nous écrivons alors pour l'écho²⁹ :

$$H = H_0 \int_V \frac{v(l^{Aéro})}{V} p(l^{Aéro}) e^{-[\frac{2}{3} D_\sigma^{Aéro}(l^{Aéro})(\gamma G_z)^2 \tau^3]} d^3r$$

où H_0 dépend du gain d'amplification et V représente le volume total de l'échantillon. $p(l^{Aéro})$ représente la distribution de longueurs, et $v(l^{Aéro})$ le volume (soit le nombre de spins) de la cavité de dimension moyenne $l_0^{Aéro}$. La dépendance de l'écho étant exponentielle à la diffusion, cette superposition de signaux privilégie les $D_\sigma^{Aéro}$ les plus faibles, soit les cavités les plus petites (ce qui minimisera toujours le $l^{Aéro}$ obtenu par nos ajustements simples). L'évaluation numérique de cette expression donne des résultats très satisfaisants (non représentés), en accord qualitatif avec nos mesures expérimentales. Remarquons que l'idée d'une distribution de longueurs est également proposée par Tastevin et al. [124] 2000 pour rendre compte de leurs mesures de diffusion dans le gaz polarisé, confiné dans un aérogel à 98 %. Cette approche pourrait dans l'avenir clarifier l'ensemble des résultats obtenus en diffusion de spin.

Notons enfin que cette longueur $l^{Aéro}$ contient également une information sur le mécanisme de collision quasi-particule/silice. Clairement, un modèle d'interaction microscopique est nécessaire à l'interprétation quantitative de ces résultats.

A ce titre, les données de Taubenreuther et al. [155] 2000 sur l' ^3He pur dans l'aérogel font apparaître un comportement tout différent : au lieu de saturer aux plus basses températures, le coefficient de diffusion décroît légèrement. Le plateau obtenu est environ 10 fois plus faible que la valeur à saturation que nous observons. Deux arguments peuvent être avancés pour expliquer ce résultat. En premier lieu, nous ne savons pas comment les auteurs ajustent ce paramètre $D_\sigma^{Aéro}$; la mesure en elle-même est d'ailleurs extrêmement difficile³⁰. Il n'est donc pas impossible qu'il s'agisse d'un problème expérimental. En se-

²⁹Cette approche simpliste consiste à considérer des cavités de dimensions différentes, indépendantes les unes des autres. Une autre façon de justifier cette écriture est de partir des équations de Bloch et d'un coefficient de diffusion $D_\sigma(\vec{r})$ dépendant de la position spatiale, et vérifiant certaines propriétés mathématiques raisonnables.

³⁰Dans leur cas, aux plus basses températures le signal magnétique est dominé par la contribution de l' ^3He adsorbé. Le T_2 est comme nous l'avons expliqué très court, de l'ordre de la dizaine de ms. Extraire le comportement du liquide n'est donc pas trivial. Aucune précision n'est donnée par les auteurs. D'ailleurs, leurs résultats sur aérogel sont similaires à leur propres résultats sur poudre de Platine de $3\mu\text{m}$, alors que les mesures de Sachrajda et al. [154] 1984 pour des capillaires de verre de $5\mu\text{m}$ ne montrent qu'une faible

cond lieu, on peut imaginer une interaction magnétique entre quasi-particules et couches solides, idée introduite en sous-section 10.1.2. Ces considérations demandent de nouveaux travaux tant expérimentaux que théoriques³¹.

En fig. 11.16 nous représentons nos données à 29,5 bar (gradient de $G_z = 0,019 \text{ mT/cm}$, sauf pour le point basse température, séquence $\frac{\pi}{2} - \tau - \frac{\pi}{2}$ exclusivement³²), et répétons nos données à 0,5 bar (gradient de $G_z = 0,028 \text{ mT/cm}$). Les résultats dans l' ^3He massif sont également représentés pour comparaison (Anderson et al. [153] 1962 et Sachrajda et al. [154] 1984).

Le comportement à 29,5 bar est similaire à celui obtenu à 0,5 bar : les données dévient de la loi en $1/T^2$ vers 40 mK, et saturent ici à $1,7 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$. Utilisant encore les données de Sachrajda et al. [154] 1984 pour D_σ , et 3385 cm/s pour v_F^* (Halperin et al. [125]), nous déduisons $l^{Aéro} \approx 15 \text{ nm}$. A nouveau, la relation $l_\sigma = l_0 (1 + F_0^a) f_\eta(\lambda_{1+}^s)$ nous apporte $l_0^{Aéro} \approx 60 \text{ nm}$.

La longueur caractéristique de l'aérogel est 2,3 fois plus faible à 29,5 bar qu'à 0,5 bar. Aussi, malgré les barres d'erreur augmentées (il s'agissait d'une mesure préliminaire), l'ajustement est bien moins convaincant qu'à 0,5 bar. Dans la zone intermédiaire entre saturation/liquide massif, la dépendance de $D_\sigma^{Aéro}$ en température est presque $1/T$.

Pour rendre compte de ces points intrigants, nous pouvons à nouveau invoquer le modèle simple prenant en compte une distribution de longueurs $l_0^{Aéro}$, la dépendance exponentielle de l'écho à $D_\sigma^{Aéro}$ minimisant la longueur obtenue. Il est également possible d'imaginer que l'interaction particulière des quasi-particules avec les surfaces serait dépendante de la pression. A nouveau, de nouvelles mesures et de nouveaux développements théoriques sont nécessaires.

En conclusion, nos mesures de diffusion de spin sur l' ^3He confiné dans un aérogel recouvert d' ^4He , mettent en évidence la saturation du coefficient $D_\sigma^{Aéro}$ aux basses températures, contrairement aux données de Taubenreuther et al. [155] 2000 dans le cas ^3He pur. A haute

déviations par rapport à la loi en $1/T^2$ vers 5 mK. Notons que Taubenreuther et al. [155] 2000 propose pour le coefficient de diffusion $D_\sigma^{Aéro} = D_\sigma / (1 + (l_\sigma/l^{Aéro})^2)$. Le carré dans cette expression est non physique, nous supposons qu'il s'agit d'une coquille.

³¹A côté du grand nombre de développements consacrés aux phases superfluides, nous n'avons trouvé que peu de résultats théoriques consacrés au liquide normal. Rainer et Sauls [156] 1998 s'intéressent à la propagation sonore dans l' ^3He confiné, et Venkataramani et Sauls [157] 2000 à la viscosité et la conductivité thermique. Pour ce qui est de l'interaction solide-liquide magnétique, les travaux de Baramidze et Kharadze [158] 2000 concernent la phase superfluide A. Naïvement, on s'attend à ce que le mécanisme d'échange rapide apporte à basse température une loi du type $D_\sigma^{Aéro} = D_\sigma M_{liquide}/M_{solide}$, qui dépend linéairement de T . Ceci expliquerait au moins qualitativement la forme des résultats de Taubenreuther et al. [155] 2000.

³²Encore une fois cette valeur de $0,019 \text{ mT/cm}$ a été vérifiée de différentes façons. Pour exemple l'écho de spin obtenu à une largeur à mi-hauteur de 9,5 ms environ. Le point basse température a été mesuré en cours de désaimantation, les trois mesures superposées étant recalées en prenant pour définition du gradient les largeurs des échos. Le gain de l'amplificateur ayant été modifié, nous avons ici $H_0 = 0,700 \text{ V}$.

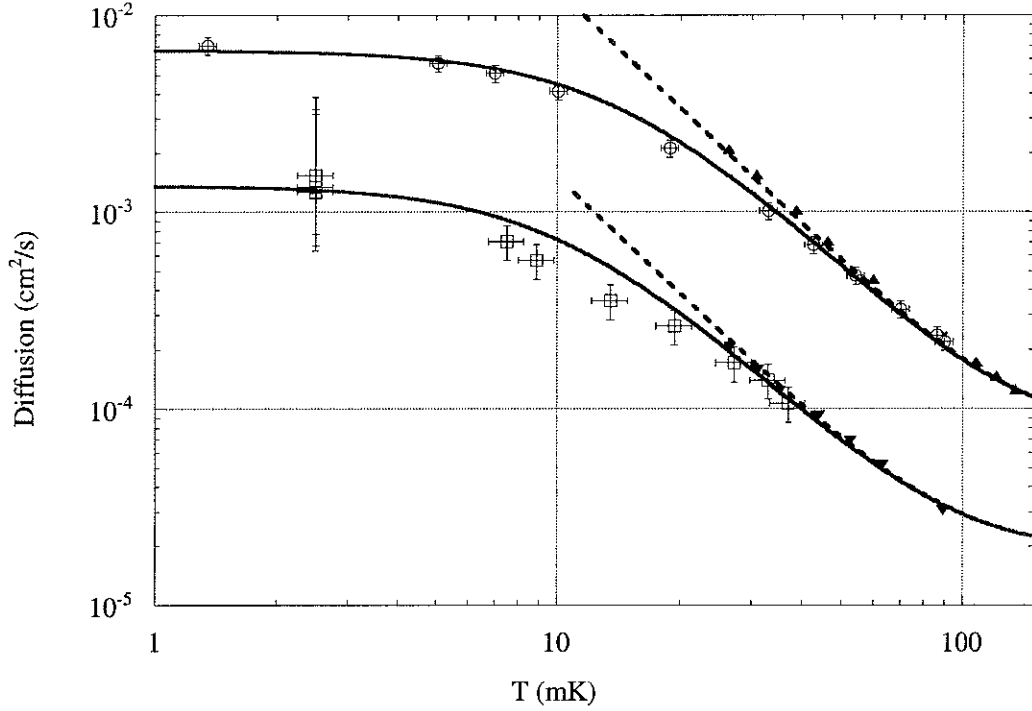


FIG. 11.16: Coefficient de diffusion de spin en fonction de la température, à 0,5 bar et 29,5 bar. $\blacktriangle$: données d'Anderson et al. [153] 1962 (0,85 bar, 2,62 mT et environ 0,06 mT/cm) recalées sur les mesures plus récentes de Sachrajda et al. [154] 1984, pour l' ^3He massif dans 21,8 mT et $G_z \approx 0,15$ mT/cm (loi pointillée à 0,5 bar en $1,35/T^2$, la courbure haute température est un guide pour les yeux). $\blacktriangledown$: données d'Anderson et al. [153] 1962 (28,5 bar, mêmes conditions que 0,85 bar) recalées sur les mesures plus récentes de Sachrajda et al. [154] 1984, pour l' ^3He massif, conditions expérimentales citées ci-dessus (loi pointillée à 29,5 bar en $0,15/T^2$, la courbure haute température est toujours un guide pour les yeux). $\circ$: nos données à 0,5 bar (33,7 mT et $G_z = 0,028$ mT/cm) pour de l' ^3He confiné dans un aérogel 98 % où les couches solides sont constituées d' ^4He . $\square$: nos données à 29,5 bar (33,7 mT et $G_z = 0,019$ mT/cm) pour de l' ^3He confiné dans un aérogel 98 % où les couches solides sont constituées d' ^4He principalement ($n_{\text{solide}}/n_{\text{liquide}}(0) = 0,25\%$). Les points obtenus à la plus basse température ont été recalés, car mesurés dans un gradient de champ plus élevé (barre d'erreur augmentée). Les lignes pleines sont de simples ajustements $D_{\sigma}^{\text{Aéro}} = D_{\sigma}/(1 + (l_{\sigma}/l^{\text{Aéro}}))$, où $l^{\text{Aéro}}$ représente une longueur caractéristique attribuée à l'aérogel. Ils sont commentés dans le texte (nous avons $l^{\text{Aéro}} = 35$ nm à 0,5 bar, et $l^{\text{Aéro}} = 15$ nm à 29,5 bar). Nos barres d'erreur à 29,5 bar sont doubles par rapport aux mesures à 0,5 bar, soit $\pm 20\%$ environ.

température, nous montrons que le coefficient de diffusion de spin n'est pas modifié par rapport à la situation de l' ^3He massif, ce qui prouve encore, comme pour les résultats sur T_F^{**} , que les paramètres liés à l'interaction dans le liquide (libre parcours moyen l_0 , paramètres de Landau F_l^x) ne sont pas affectés par l'aérogel.

Un simple ajustement de type $D_{\sigma}^{\text{Aéro}} = D_{\sigma}/(1 + (l_{\sigma}/l^{\text{Aéro}}))$ nous permet d'extraire une longueur $l^{\text{Aéro}}$ caractéristique de l'interaction quasi-particule/silice (sans couches solides magnétiques). La définition d'une longueur géométrique par $l_0^{\text{Aéro}} = l^{\text{Aéro}}/[(1 + F_0^a)f_{\eta}(\lambda_{1+}^s)]$ apporte des valeurs dans la gamme des 100 nm, comparable aux tailles caractéristiques de l'aérogel. En revanche, le mécanisme de collision reste une question ouverte. Nous espérons

que de nouvelles mesures de diffusion de spin, alliées à d'autres mesures de propriétés de transport (conductivité thermique, propagation du son), permettront de clarifier ce point.

11.3 Transitions et phase intermédiaire

Alors que la température est abaissée au-dessous de $T_{C,b}$, nous obtenons des signatures particulières de ce passage sur les propriétés RMN. Si l'on considère simplement que l' ^3He confiné au-dessous de $T_{C,b}$, mais au-dessus de $T_{C,a}$, n'est rien d'autre qu'un liquide de Fermi classique, ce résultat est incompréhensible.

Ces signatures sont de deux types, commentés dans les sous-sections suivantes : en premier lieu, nous détectons de petits pics satellites se séparant de la raie RMN principale, déjà vus auparavant par Chen [204] 1999, Cousins et al. [162] 2000 et Bunkov et al. [145] 2000, puis Haard [208] 2001. Ces pics apparaissent pour toutes pressions, quelque soit la quantité d' ^4He ajoutée. Un pic satellite typique est représenté en fig. 11.17 pour 5,2 bar et $T = 1,0$ mK dans le cas ^3He pur. Nous en décrivons les propriétés ci-après.

En second lieu, le pic principal voit ses caractéristiques $\Delta b(T)$ (largeur) et $b(T)$ (position) changer de comportement en température. Par exemple, comme nous le verrons la largeur dans le cas ^3He pur ne suit plus la loi de l'échange rapide (11.3), mais se " bloque " sur une valeur constante.

La transition vers la superfluidité à $T_{C,a}$ est encore mieux marquée. On la détecte par un décalage du champ de résonance $b(T)$ de la raie (dû au champ dipolaire comme pour l' ^3He massif, sous-section 10.1.2), ou encore par un élargissement soudain de $\Delta b(T)$. Malgré le désordre introduit par l'aérogel, la transition est bien définie.

En fig. 11.18 nous montrons la largeur de raie mesurée à 17 bar, dans le cas ^3He pur. On y distingue très clairement les changements de tendance cités ci-dessus, indiqués par les verticales pointillées. Il est aisé de repérer ainsi, en RMN, les températures $T_{C,b}$ et $T_{C,a}$.

Ce faisant, nous dressons un diagramme de phases (en champ nul) pour nos échantillons d'aérogel 98 % similaires E2, E3 et E4. Il est indépendant du champ magnétique, contrairement aux premiers résultats³³ de Haard [208] 2001. Le diagramme obtenu est donné en fig. 11.19 (données bas champ de Haard [208] 2001 représentées pour comparaison, leur

³³Ce groupe rapportait une variation quadratique de $T_{C,a}$ en fonction du champ magnétique $|\vec{B}|$ (Sprague et al. [135] 1996). Les travaux théoriques de Baramidze et Kharadze [158] 2000 montrent que cette variation devrait être linéaire, et après avoir révisé son échelle de température, le groupe de North-western conclut que la variation mesurée n'est finalement pas si prononcée, n'apparaissant qu'aux champs les plus élevés, en accord avec nos résultats. Leur dépendance en température pourrait être linéaire.

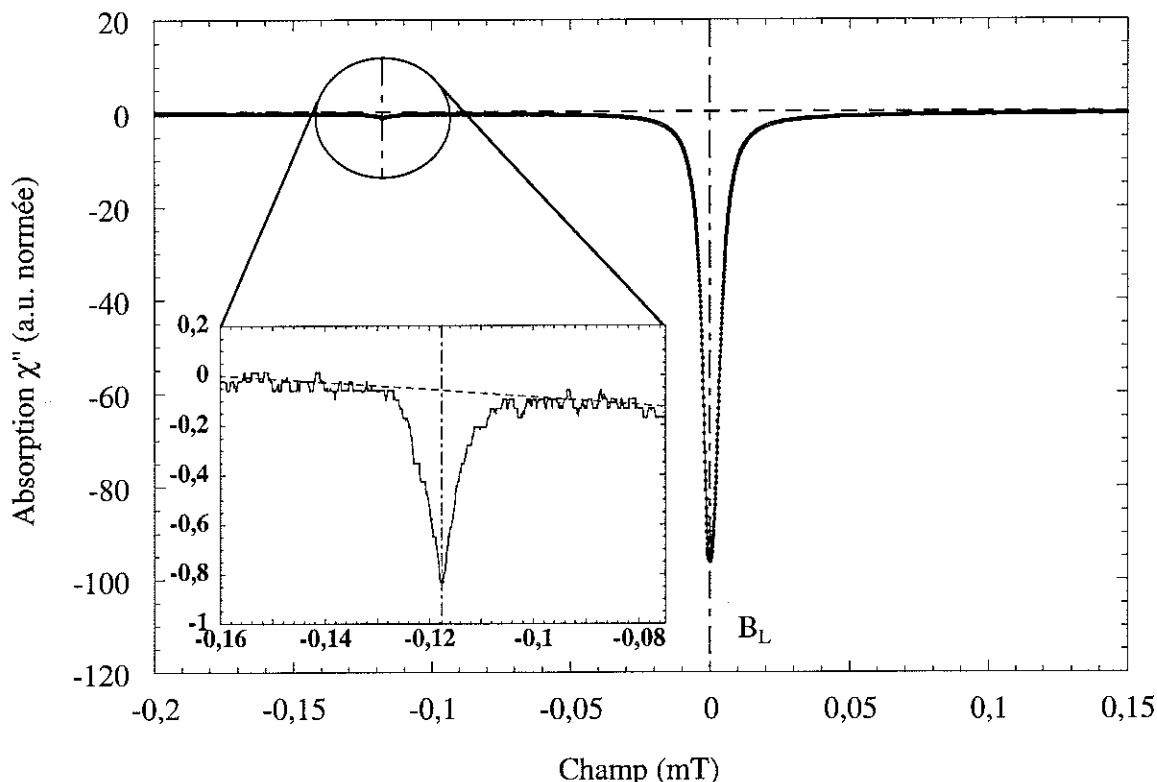


FIG. 11.17: Pic satellite obtenu à 5,2 bar pour 37,3 mT et $T = 1,0$ mK (soit $T/T_{C,b} = 0,66$). Nous représentons la raie RMN d'absorption χ'' normée à son aire, B_L représentant le champ de Larmor. L'encart est un agrandissement permettant de distinguer un pic satellite, et d'apprécier le bruit électronique (dans notre expérience, $\sqrt{V^2} \approx 5 \mu V$ à la détection synchrone).

échantillon semble similaire au nôtre³⁴). Nous y distinguons trois zones : le liquide de Fermi discuté en section précédente, une phase entre $T_{C,b}$ et $T_{C,a}$ que nous appelons phase "intermédiaire" et dont nous discutons les propriétés RMN dans cette section, et la phase superfluide au-dessous de $T_{C,a}$.

Notons que la phase superfluide semble ne jamais être stabilisée au-dessous d'une pression critique P_c , dans notre cas de l'ordre de 5 bar. Le liquide reste dans son état "intermédiaire", jusqu'aux plus basses températures atteintes expérimentalement (de l'ordre de $300 \mu K$). Matsumoto et al. [134] 1997 parlent à ce sujet de "transition de phases quantique à $T = 0$ " : si l'on imagine augmenter la pression à $T = 0$ depuis la pression nulle, nous passons à P_c par une transition de phases de l'état "intermédiaire" à l'état superfluide³⁵. La transition se fait en pilotant un paramètre de l'Hamiltonien du système, qui

³⁴Rappelons que leur échantillon a également été obtenu auprès de Mulders. Rappelons aussi que leur quantité de solide à 30 bar semble équivalente à la nôtre (section 11.2).

³⁵Remarquons que la transition de l'état "liquide de spins" à l'état ferromagnétique dans l' $^3\text{He-2D}$ (chapitre 8) est également un exemple de transition de phases quantique à $T = 0$. Le paramètre de contrôle n'est plus la pression, mais son corollaire à 2D, la densité ρ du film, ou plutôt la "pression bidimensionnelle".

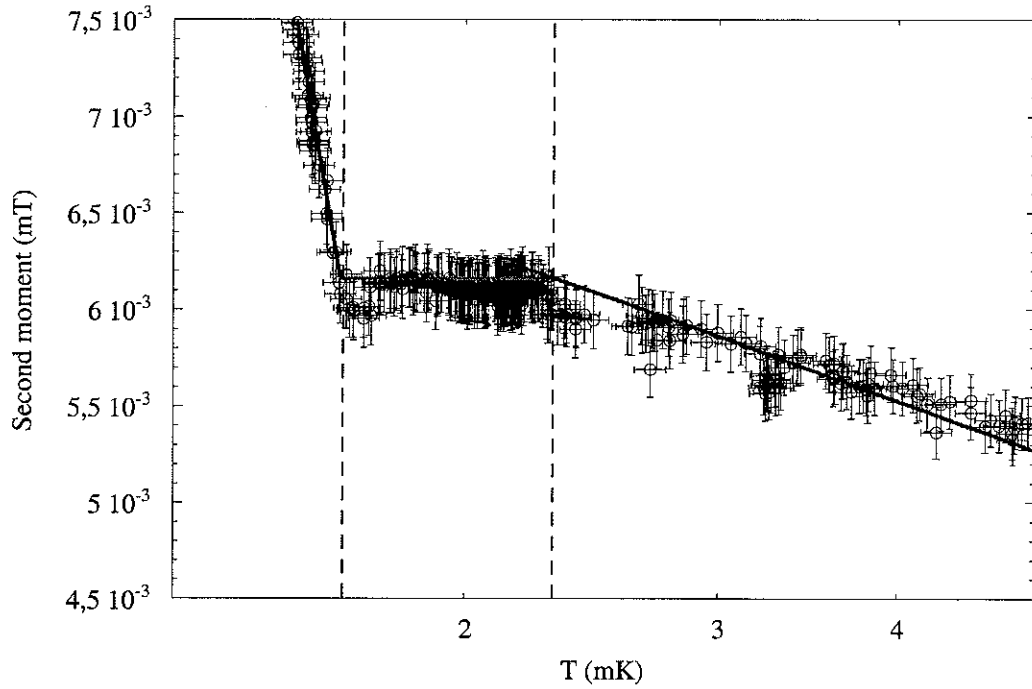


FIG. 11.18: Largeur de raie RMN (second moment) mesurée à 17 bar en fonction de la température, sans adjonction d' ^4He , pour 37,3 mT. A haute température, nous reproduisons l'ajustement de type (11.3) de la section précédente. Au-dessous, les droites pleines sont des guides pour les yeux. Les deux lignes verticales pointillées indiquent les transitions $T_{C,b}$ et $T_{C,a}$. Dans le cas de cette mesure particulière, le $T_{C,b}$ estimé par cette technique est 4,5 % supérieur au $T_{C,b}$ du thermomètre (fil vibrant, 2,14 mK), a priori du fait d'un faible gradient thermique. Cette courbe peut être affectée par la séparation des pics satellites de la raie principale (discussion en section suivante). Sur ces données, acquises en faible injection RMN, leur effet n'est pas clair et pourrait également expliquer ce léger problème d'estimation de $T_{C,b}$. Les barres d'erreur représentées sont de $\pm 2,5\%$.

change la nature de son état fondamental. Contrairement aux transitions classiques, où même si l'état fondamental doit son existence à la mécanique quantique, suffisamment près de la transition ce sont toujours les fluctuations thermiques de grande longueur d'onde qui gouvernent le problème, dans le cas d'une transition de phases quantique les fluctuations thermiques sont inexistantes.

Leur nature est donc toute particulière, bien qu'elles soient reliées aux transitions classiques de bien des façons. Elles se retrouvent dans quelques autres systèmes électroniques (par exemple jonctions Josephson, effet Hall quantique), et nous renvoyons à Sondhi et al. [141] 1997 pour une discussion plus pointue de leur nature et de leur intérêt.

11.3.1 Raie principale

La transition vers la phase " intermédiaire " est marquée en RMN continue sur la raie principale par un changement de comportement, en température, de sa largeur. En fig.

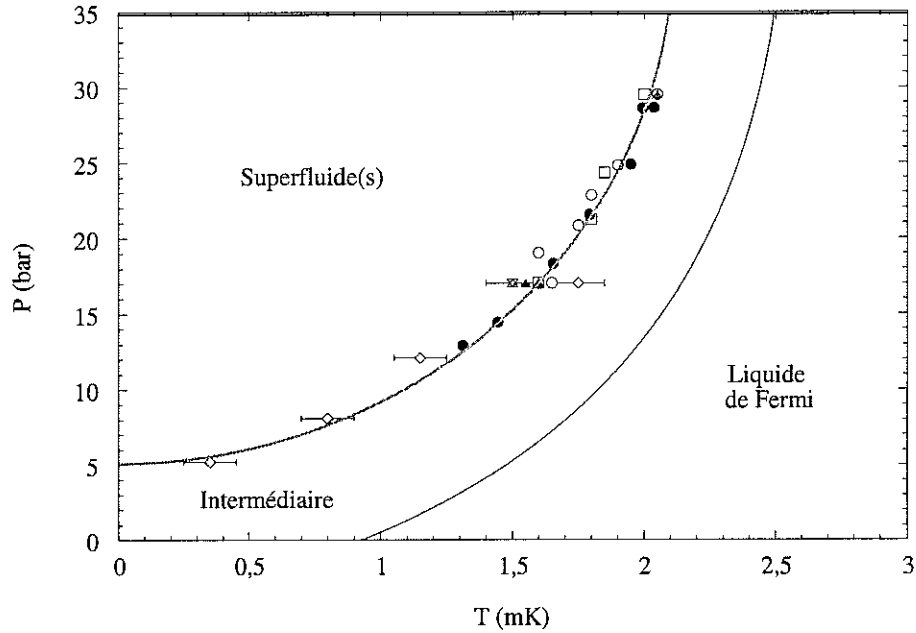


FIG. 11.19: Diagramme de phases $T_{C,a}(P)$ obtenu pour nos échantillons similaires d'aérogel 98 % (E2, E3 et E4), dans la limite des champs magnétiques faibles. $\diamond$: E2, mesures de Chen [204] 1999 à 31,3 mT. ∇ : E3, mesure à 37,4 mT. $\circ$: E4, mesure à 37,3 mT. $\square$: E4, mesure à 17,3 mT. $\blacktriangle$: E4, mesure à 37,3 mT, après addition d' ^4He (73 % de solide, 21 % de solide, 8 % de solide, et 0 % de solide, du plus foncé au plus clair). Pour comparaison, les $\bullet$ sont les $T_{C,a}$ du groupe de Northwestern (Haard [208] 2001). La ligne pleine est $T_{C,b}(P)$ (Vollhardt et Wölfle [222], et Halperin et al. [125]). Le (s) à superfluide(s) rappelle simplement que la nature de ou des phases superfluides est à ce stade une question ouverte. Les barres d'erreur de $\pm 0,1$ mK représentent l'incertitude sur la thermométrie des expériences réalisées sur E2 et E3. La ligne courbe claire est un guide pour les yeux.

11.20, nous montrons ce résultat à 8,1 bar, sans adjonction d' ^4He . Les différents critères de largeurs introduits en section 11.2 sont représentés, chacun ayant été transformé en unités de second moment, via la loi linéaire $a(x - x_0)$ appropriée. Le " blocage " de la largeur de raie à une valeur quasi-constante est surprenant, mais plus surprenant encore est le fait que tous les critères de largeur donnent ce résultat, la valeur (en unités de second moment) étant la même : force est donc de conclure que la raie ne se déforme pas, elle reste parfaitement stable alors que l'aimantation $M(T)$ du système continue de croître (fig. 11.20 à droite). Il ne s'agit donc pas d'un problème de thermalisation, mais au contraire d'un réel phénomène physique³⁶.

Ce " blocage " s'accompagne d'une légère augmentation de la largeur de raie, que nous chiffrons dans notre cas à environ $0,5 \cdot 10^{-3}$ mT (limite de notre résolution, fig. 11.20 à gauche). Ce petit décrochement, visible également très faiblement en fig. 11.18, se retrouve

³⁶Une légère tendance au rétrécissement sur le second moment, lorsque la température diminue, peut être observée.

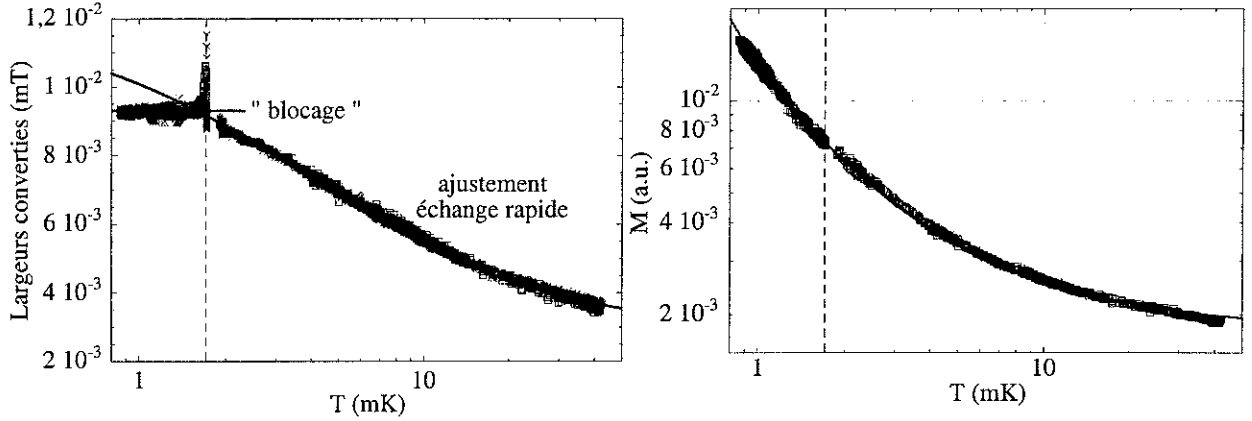


FIG. 11.20: A gauche, les différents critères de largeur de raie convertis en second moment, en fonction de la température, à 8,1 bar (champ de 37,3 mT). La conversion s'est faite en utilisant pour chacun la loi $a(x-x_0)$ définie dans la phase normale. $\square$: Second moment de la raie d'absorption. $\diamond$: Largeur à mi-hauteur, convertie. $\triangle$: Largeur calculée, convertie. $\times$: Largeur du pied de la raie RMN, convertie. Sur la droite, nous représentons sur la même gamme de température l'aimantation $M(T)$. La ligne tiretée verticale représente $T_{C,b}$ (1,71 mK), l'ajustement de la largeur est toujours celui du type (11.3), l'aimantation $M(T)$ est ajustée par les paramètres de la section 11.2 (lignes pleines). Le pic obtenu exactement à $T_{C,b}$ correspond à la séparation des pics satellites du pic principal. Les barres d'erreur non représentée sont les mêmes que sur les autres graphiques, de l'ordre de quelques % (taille des symboles).

de façon un peu plus prononcée dans les données de Chen [204] 1999 concernant E2. Nous en présentons un agrandissement en fig. 11.21 en haut. Aussi, l'augmentation très pointue de la largeur à $T_{C,b}$ est due au détachement des pics satellites³⁷ de la raie principale. Dans le même temps, la position de la raie RMN est stable en température, avec seulement un léger décrochement (négatif) du même ordre que celui de la largeur de raie à $T_{C,b}$ ($0,5 \cdot 10^{-3}$ mT, voir le graphique 11.21 en bas).

Ces résultats se retrouvent sur toutes les mesures en ^3He pur, quel que soit le champ magnétique et son homogénéité (en mauvais gradient, ils sont simplement moins visibles). Nous retrouvons en effet ces caractéristiques chez Chen [204] 1999 et Haard [208] 2001, et sur nos données en champ faible. L'effet est le même pour toute pression, y compris au-dessus de 22 bar où la phase A est stable dans l' ^3He massif, simplement le plateau où il est observable (entre $T_{C,b}$ et $T_{C,a}$) se rétrécit, à mesure que $T_{C,a}$ se rapproche de $T_{C,b}$. Lorsque l'on supprime les couches solides d' ^3He , le résultat de l'échange rapide (11.3) n'est bien sûr plus applicable. La largeur de raie et le champ de résonance sont stables de part et d'autre de $T_{C,b}$, et les seuls effets visibles sur la raie principale sont les légers décrochements sur ces deux paramètres RMN. Nous les représentons en fig. 11.21 à 17 bar, en encart. Ils sont plus facilement observables dans ces conditions, du fait de l'absence de

³⁷Un seul pic satellite est visible et peut être étudié à 8,1 bar et 17 bar, voir la discussion en section suivante. En toute rigueur, nous n'obtenons pas de pic pointu à $T_{C,b}$ sur la fig. 11.18, car la résolution de cette mesure ne permettait pas d'être clairement sensible aux pics satellites.

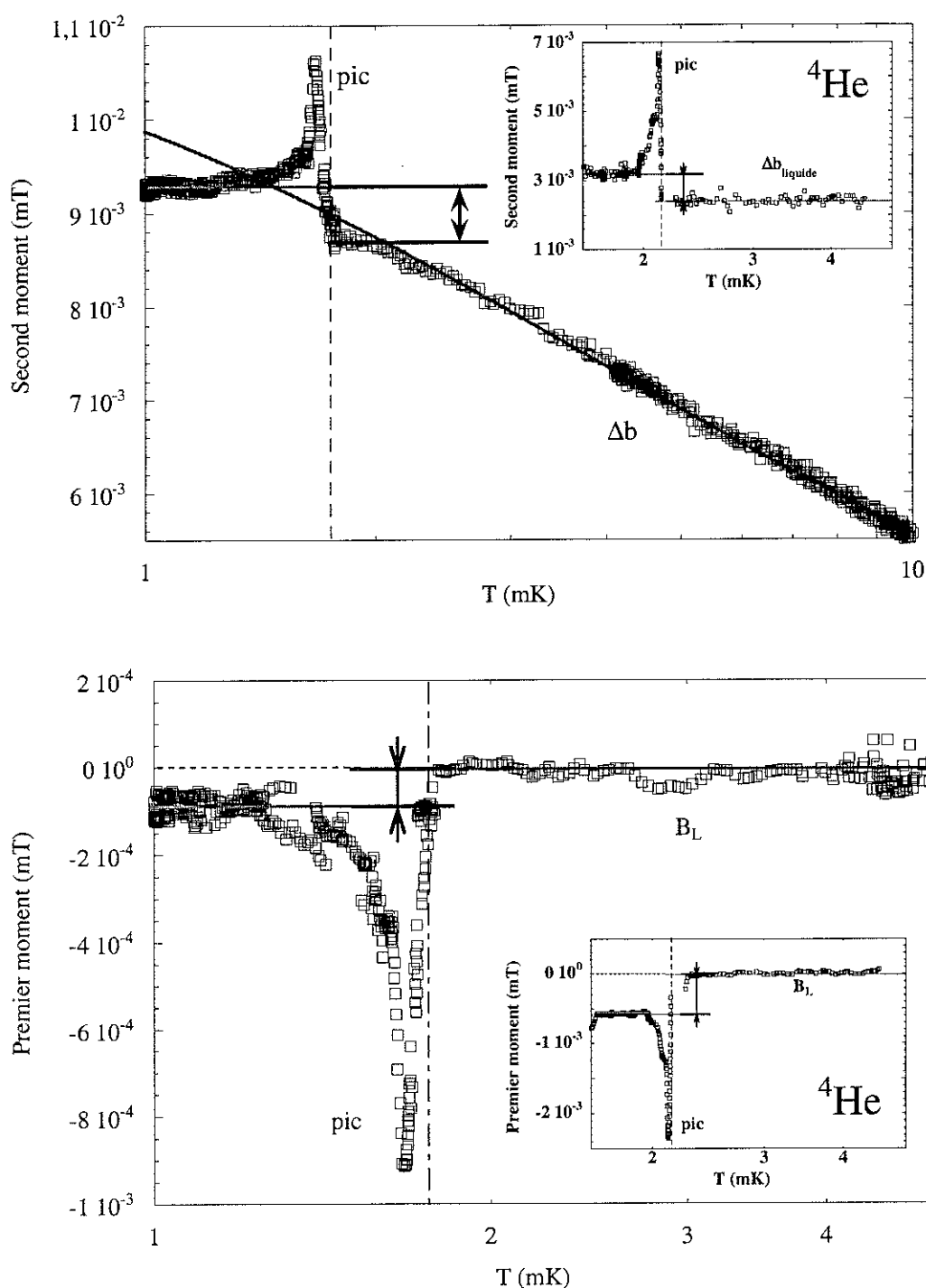


FIG. 11.21: En haut, largeur RMN par la mesure du second moment à 8,1 bar, dans 37,3 mT. Il s'agit d'un agrandissement de la figure précédente, l'ajustement haute température étant du même type (sur ce graphique, la convergence de l'ajustement est limitée aux températures inférieures à 10 mK). En bas, position de la raie RMN par la mesure du premier moment, dans les mêmes conditions. En encart, nous montrons les mêmes paramètres mesurés à 17 bar dans 37,3 mT, lorsque les couches magnétiques ont été complètement supprimées. Les lignes pointillées sont $T_{C,b}$, B_L représente le champ de Larmor (pris comme zéro). Nous notons les faibles décrochements d'environ $0,5 \cdot 10^{-3}$ mT (flèches doubles), commentés dans le texte, ainsi que les pics pointus générés par la séparation des pics satellites de la raie principale. Au-dessous de $T_{C,b}$, et au-dessus de $T_{C,a}$, position et largeur sont constants, dans nos barres d'erreur (non représentée).

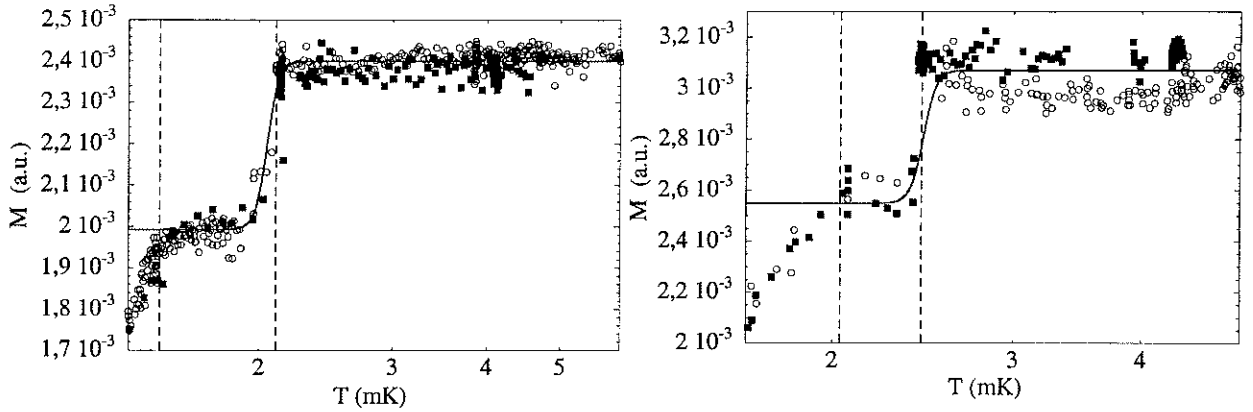


FIG. 11.22: Aimantation $M(T)$ du pic principal dans 37,3 mT. A gauche, pour 17 bar. Les symboles ■ représentent nos données obtenues lorsque tout l' ^3He adsorbé a été remplacé par de l' ^4He , Les ○ sont obtenus lorsque 21 % du solide magnétique est encore présent, après soustraction de sa contribution en $C/(T - \Theta_W)$. Les données sont en bon accord, à notre résolution près. A droite : même résultat mesuré à 29,5 bar, dans le cas ^3He pur (○) et après adjonction d' ^4He (■). Dans ce dernier cas 8 % de solide était encore présent. Ici encore, nous avons soustrait les contributions en $C/(T - \Theta_W)$. Les lignes pointillées verticales sont $T_{C,b}$ et $T_{C,a}$, les lignes pleines sont un guide pour les yeux indiquant une perte de 17 % du signal. La diminution de l'aimantation au-dessous de $T_{C,a}$ fait l'objet de la discussion en section 11.4. Les barres d'erreur sont d'environ 2 % à 17 bar, et 5 % à 29,5 bar (non représentées).

la forte contribution solide qui tend à masquer les effets fins.

Le dernier effet visible sur le pic principal est une réduction de l'aimantation du liquide de 17 % environ, lorsque l'on refroidit le système au-dessous de $T_{C,b}$. Cet effet semble être systématique sur nos données, mais il est très difficile à mettre en évidence en présence d' ^3He solide. En effet, la soustraction de la contribution majoritaire en $C/(T - \Theta_W)$, demande une précision sur la mesure de M et de T de l'ordre du %, si l'on ne veut pas trop perdre en résolution. Nous représentons nos résultats en fig. 11.22 à gauche pour 17 bar, dans le cas où tout le solide magnétique a été remplacé par de l' ^4He , et dans le cas où 21 % de solide était encore présent (cette contribution a été soustraite évidemment). Insistons sur le fait que cette aimantation $M(T)$ est obtenue pour le liquide présent dans le pic principal, les pics satellites ne sont pas concernés. Cet effet se retrouve visiblement sur toute pression, entre autre à 29,5 bar où nous avons également effectué, en plus de la mesure ^3He pur, une mesure avec ^4He (fig. 11.22 à droite). Là encore, il semble que l'existence de la phase A pour l' ^3He massif au-dessus de 22 bar, n'affecte en rien ce résultat. L'effet semble être également indépendant de la quantité d' ^3He solide. En revanche, nous ne possédons pas de mise en évidence claire de cet effet en champ magnétique plus faible, bien qu'il soit probable qu'il soit indépendant de $\vec{B}$ (par analogie, car tous les paramètres mesurés jusqu'ici sont indépendants du champ, nous sommes dans

la limite faible champ). Ce résultat n'a jamais été rapporté auparavant, par exemple³⁸ Sprague et al. [135] 1996 et Haard [208] 2001 n'en font pas mention. En toute rigueur, ces auteurs soustraient à l'aimantation au-dessous de $T_{C,b}$ la contribution d'un pic satellite qu'ils observent également. Leur analyse au-dessus de $T_{C,b}$ n'est par contre pas mentionnée ; il est probable qu'ils aient simplement recalé leur données en considérant que le satellite n'est qu'un artefact de leur cellule, ce qu'ils semblent soutenir par ailleurs.

Avant de conclure sur cette section, il nous faut commenter l'influence de ces pics satellites sur ces résultats (discutés plus avant en section ci-après). Leur aimantation représente entre 6 % et 20 % de l'aimantation du liquide dans notre expérience, alors que $M_{solide}/M_{liquide} \approx 5,5$ vers 1 mK pour les pressions intermédiaires, dans le cas ^3He pur. Il est donc impossible que leur mesure, ou leur non-mesure influence le " blocage " de la largeur de raie RMN. En revanche, il sont à l'origine des pics prononcés obtenus sur la largeur de raie et la position, dans nos graphiques à $T_{C,b}$ (fig. 11.20 et fig. 11.21). Ils pourraient également être la cause des faibles décrochements observés dans la largeur et la position des raies RMN, que l'on attribuerait à un léger changement de forme de la raie principale. La perte des 17 % d'aimantation liquide s'expliquerait également de façon simple en disant que ces spins se retrouvent dans les pics satellites. L'explication alternative serait une transition de phase vers un nouvel état de l' ^3He liquide, non-superfluide et non-liquide de Fermi, caractérisé par un saut dans l'ensemble de ces paramètres. Nous revenons sur ce point particulier dans notre discussion sur les pics satellites.

Enfin, les mesures de propagation du son dans un aérogel 97 % réalisée par Hristakos et al. [163] 2001 sont certainement à rapprocher de nos résultats. Les auteurs ne mesurent par cette technique presque aucun décalage entre $T_{C,b}$ et $T_{C,a}$. Il semble donc que la phase " intermédiaire " soit par ses propriétés acoustiques à rapprocher de la phase superfluide. Au contraire, les résultats de Alles et al. [137] 1998 montrent que les $T_{C,a}$ tirés de l'oscillateur de torsion et des mesures RMN sont en bon accord, mais différent de $T_{C,b}$. Dans leur cas, la phase " intermédiaire " se rapproche du liquide normal.

Pour conclure, nos résultats indiquent que la phase " intermédiaire " est particulière, et se distingue à la fois des phases normale et superfluide. C'est sur cette base que nous abordons le deuxième type de signature obtenu, les pics satellites, pour ensuite conclure sur cette section.

³⁸Rappelons que l'échantillon du groupe de Northwestern provient également de Mulders, et qu'il semble avoir les mêmes caractéristiques que le nôtre ($T_{C,a}$ en fig. 11.19, et quantités de solide à 30 bar équivalentes).

11.3.2 *Pics satellites*

Alors que l'on refroidit le système au-dessous de $T_{C,b}$, nous notons dans nos raies de RMN des pics satellites qui se séparent du pic principal (exemple en fig. 11.17), pour toute pression et toute quantité d' ^4He ajoutée. Force est de conclure que pour le cas ^3He pur, une fraction du liquide n'est plus en échange rapide avec le solide. De plus, seule la superfluidité d'un groupe d'atomes macroscopique, sous une quelconque de ses formes, peut expliquer un tel effet (via le champ dipolaire, sous-section 10.1.2). Trois explications peuvent être données pour rendre compte de leur présence :

- Il peut s'agir d'une portion d' ^3He massif de la cellule expérimentale qui se trouverait suffisamment proche de la bobine RMN de détection pour être vue dans nos mesures (par exemple, l'espace entre l'aérogel et les parois de la cellule). Dans ce cas, les pics satellites sont un simple artefact expérimental imputable à la cellule, point de vue proposé originellement par Alles et al. [137] 1998 puis Cousins et al. [162] 2000 (échantillon E2 de Grenoble, nous revenons sur ce point), et Haard [208] 2001.
- Si l'homogénéité de l'aérogel est médiocre, il se peut qu'il possède, par endroits, de très grands pores qui pourraient se comporter comme de l' ^3He massif, et donner lieu à ces pics satellites. Cependant Bunkov et al. [145] 2000 rejettent cette explication, la proportion de défauts que devrait présenter la structure de silice étant trop importante (jusqu'à 50 %, échantillon E1 de Grenoble). D'ailleurs, les chimistes considèrent que de tels défauts ne devraient en principe pas exister, si l'aérogel a été réalisé proprement (voir, par exemple, les discussions sur Berkeley [118]).
- Enfin, la dernière explication, et la plus intéressante, est que ces pics pourraient être générés par l' ^3He confiné dans les pores, même les plus petits, de l'aérogel. Il s'agirait alors de quelques objets topologiques particuliers, créés lors du refroidissement dans cette " phase intermédiaire " que nous avons décrite précédemment, possédant certaines propriétés du superfluide alors que le liquide environnant ne l'est pas, et qui contiendraient environ 20 % du nombre de spins du liquide. Ce scénario est associé au mécanisme de Kibble (Kibble [166] 1976).

Avant de pouvoir discuter ces trois points sur la base de nos résultats, il nous faut décrire la " zoologie " de ces pics satellites.

En réalisant cette étude incontournable, nous nous sommes aperçus qu'il fallait considérer deux cas : les pressions inférieures à 22 bar, où dans l' ^3He massif sous faible champ seule la phase *B* est stable, et les pressions supérieures à 22 bar où près de $T_{C,b}$ nous rencontrons toujours, pour l' ^3He massif, une faible fraction d' $^3\text{He-A}$.

Sur l'ensemble de nos mesures, de part et d'autre de 22 bar, nous différencions deux types de satellites. Insistons sur les difficultés à les détecter, et à mettre en évidence leur comportement. Considérons le cas de l' ^3He pur, qui est le plus problématique. La première classe de satellites a une hauteur, à $T_{C,b}$, de l'ordre de 4 % du pic principal (composé de liquide/solide). La seconde classe de pics a une hauteur de l'ordre de 10 % de la raie principale à $T_{C,b}$. Alors que le système se refroidit, leur hauteur décroît et, par exemple pour les pics de première espèce vers 700 μK , dans le cas où la superfluidité n'est pas observée dans l'aérogel (au-dessous de 5 bar environ), elle ne représente plus que 0,2 % du pic principal. L'aimantation totale de tous ces pics satellites, aux pressions intermédiaires vers 1 mK représente environ 3 % de l'aimantation totale mesurée. Leur résolution est donc difficile, et il est parfois impossible de les détecter (c'est le cas des mesures sur E4 en faible champ, par exemple). Aussi, ces satellites se décalent très rapidement du champ de Larmor B_L , d'une façon a priori similaire au superfluide massif (décalage négatif en champ), et il devient rapidement impossible de mesurer les satellites et le pic principal simultanément, dans des conditions décentes.

Pour des raisons de commodité de langage que nous expliciterons, nous notons dans la suite $T_{sat\,i}$ les températures, proches de $T_{C,b}$, où nous voyons le satellite i disparaître, si l'on considère que l'on réchauffe la cellule expérimentale. Lorsque la discussion ne concerne qu'un seul pic, nous notons simplement T_{sat} .

Les résultats présentés dans les sous-sections suivantes, sont obtenus en ajustant sous les satellites, lorsqu'ils sont loin du pic principal, une ligne de base droite. Lorsqu'ils sont trop proches de la raie principale, nous les résolvons soit par un ajustement quadratique de la ligne de base (ajustant le pied de la raie principale) lorsque celui-ci est raisonnable, soit en soustrayant une raie RMN où le satellite n'était pas présent, mais où la raie principale était similaire. Cette dernière méthode n'est malheureusement pas parfaite, car la raie principale change assez rapidement en taille, position et largeur (section 11.2).

L'ensemble des difficultés de résolution présentée ici expliquent en partie la dispersion dans les graphiques ci-dessous, avant tout sur l'aimantation des pics satellites. Cependant, nous montrons que le comportement de ces pics est tout à fait particulier, et mérite d'être étudié. Ces mesures n'ont jamais été rapportées jusqu'à présent de façon aussi extensive.

11.3.2.1 Au-dessous de 22 bar

Le cas des pressions inférieures à 22 bar est de loin le plus simple. En fig. 11.23 nous représentons trois mesures typiques de satellites, à 5,2 bar et 8,1 bar en ^3He pur, et 17 bar

après avoir remplacé les couches solides par de l' ^4He (nous parlons souvent dans la suite de mesures sur système dopé en ^4He). Pour chacune d'elles, deux températures différentes sont représentées.

Pour toute cette gamme de pressions, toutes les températures étudiées, et toutes les

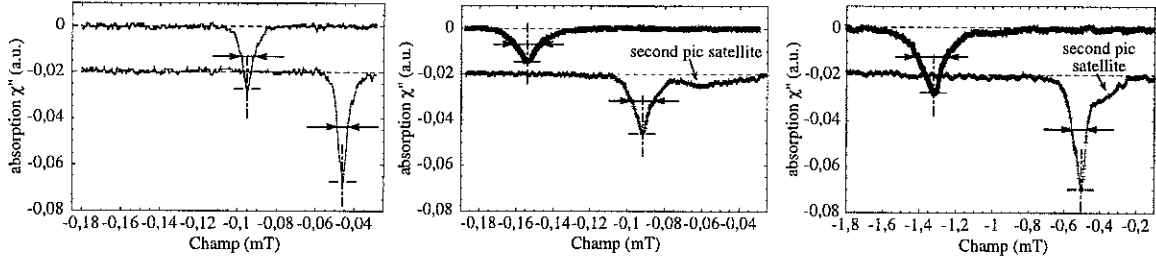


FIG. 11.23: Exemples de pics satellites obtenus au-dessous de 22 bar, dans 37,3 mT. Nous représentons l'absorption χ'' en fonction du champ magnétique dans nos unités arbitraires, le zéro étant le champ de Larmor B_L donné par la position du pic principal (non représenté). Pour des raisons de commodité, les mesures ont été décalées en ordonnée, les données les plus froides étant en haut des graphiques. A gauche, le pic satellite mesuré à 5,2 bar pour $T/T_{C,b}$ valant 0,74 et 0,90. Au milieu, le pic satellite mesuré à 8,1 bar pour $T/T_{C,b}$ valant 0,82 et 0,94. Ces deux pressions ont été mesurées en ^3He pur. A droite, le pic satellite mesuré à 17 bar après dopage en ^4He (le solide magnétique a été remplacé), pour $T/T_{C,b}$ valant 0,84 et 0,94. Sur les données centrale et de droite, une seconde bosse, très faible, est visible, et semble marquer l'existence d'un second satellite, trop aplati pour être étudié, apparaissant lorsqu'on se rapproche de $T_{C,b}$. Pour ces températures, son aire peut être évaluée grossièrement à environ 40 % du pic satellite principal. Positions (hauteurs) et largeurs à mi-hauteurs sont représentés par les croix et les doubles flèches sur ce graphique.

quantités d' ^4He ajoutées, seul un satellite est clairement identifiable à basse pression. Cependant lorsqu'on s'approche de $T_{C,b}$, une seconde bosse, très faible, est visible sur nos données les meilleures, entre le pic satellite étudié et la raie principale (fig. 11.23 au centre et à droite). Il est malheureusement impossible dans nos conditions d'en faire une étude systématique, mais comparons déjà qualitativement ces résultats à ceux rapportés par Chen [204] 1999 sur l'échantillon E2 de Grenoble : dans ses expériences réalisées de 5 bar à 17 bar, l'auteur détecte en effet deux satellites.

La similitude entre les échantillons E2 et E4 pour toutes leurs autres propriétés³⁹ nous pousse à identifier (du moins dans sa nature) notre pic satellite avec le pic satellite principal de Chen [204] 1999. Le second pic que nous distinguons à peine, entre la raie principale et le pic satellite étudié, correspond alors naturellement au second pic vu par Chen [204] 1999 (se trouvant également entre le premier satellite et la raie principale). Dans son travail, l'auteur montre que ce second pic se détache plus tard du pic principal (soit $T_{sat2} < T_{sat1}$), et tend à le rejoindre en suivant une tendance plus rapide, pour ne plus former qu'un seul pic large et mal défini aux plus basses températures. D'aimantation environ équivalente

³⁹Dans les sections précédentes nous avons montré que E2, E3 et E4 possédaient les mêmes quantités de solide adsorbé, ainsi que les mêmes $T_{C,a}$. Nous avons ajouté à cette liste l'échantillon du groupe de Northwestern (Halperin et al. [125]). Les résultats de cette section sont également comparés à ceux de ce groupe.

à l'aimantation du satellite principal, son comportement reste incertain, à notre sens par manque de résolution. Nous allons montrer que cette identification des pics satellites donne une vision cohérente des phénomènes observés. Pour information, mentionnons que l'étude préliminaire de Chen [204] 1999 sur E1 (échantillon a priori différent) fait également part de deux satellites, mais trop aplatis pour être séparés proprement.

Le pic satellite étudié a une forme compliquée, très pointue, avec une base plus évasée (fig. 11.23). De plus, à mesure qu'il se décale du champ de Larmor, il s'aplatit (sa largeur augmente). Sans rentrer dans des considérations trop complexes, nous avons donc repéré dans ce travail la position de ce pic (minimum de l'absorption), sa largeur (à mi-hauteur) ainsi que son aire. Connaissant ce paramètre, sa hauteur nous donne également une information sur sa largeur, via la relation simple $\delta' = \frac{2}{\pi} M/H$ déjà citée en section 11.2.

Nous l'avons dit qualitativement, la largeur du pic augmente à mesure que l'on refroidit le système, et qu'il se décale du champ de Larmor. En fig. 11.24 nous représentons la largeur du satellite étudié, en fonction du décalage de sa résonance.

Cette largeur semble grossièrement proportionnelle au décalage en résonance du pic satellite, pour toutes ces pressions. Nous considérons qu'il s'agit là d'une caractéristique qui leur est intrinsèque, et qui montre que largeur et position sont simplement dûes au même phénomène physique, un décalage/élargissement de type superfluide. Notons que le pic satellite est bien défini, il ne s'agit pas d'une distribution de champ démarrante au champ de Larmor B_L (comme c'est par exemple le cas pour la texture " flare-out ", sous-section 10.1.2). Néanmoins, la dispersion sur ce graphique est attribuée à la forme exacte complexe du satellite, qui n'est visiblement pas exactement identique à chaque désaimantation. Aux plus basses températures (décalages les plus grands en valeur absolue), la largeur tend à grandir de plus en plus, ou au contraire reste stable, la tendance est variable. Notons que les mesures après adjonction d' ^4He sont en accord avec les mesures en ^3He pur.

La largeur de raie RMN que nous extrapolons à $T_{C,b}$ est de l'ordre de $2 \cdot 10^{-3}$ mT en toutes conditions (à un facteur deux près).

Le paramètre le plus difficile à mesurer est certainement l'aire (l'aimantation) des satellites. Nous présentons en fig. 11.25 l'aimantation du pic satellite normée à l'aimantation du liquide, pour les différentes pressions étudiées, en fonction de T/T_{sat} .

Malgré la dispersion de l'ordre de $\pm 30\%$ dans ces résultats, nous notons clairement une décroissance de l'aimantation du satellite, à mesure que la température s'abaisse. Ce résultat s'ajuste raisonnablement par la relation (10.1) obtenue pour l'aimantation de la

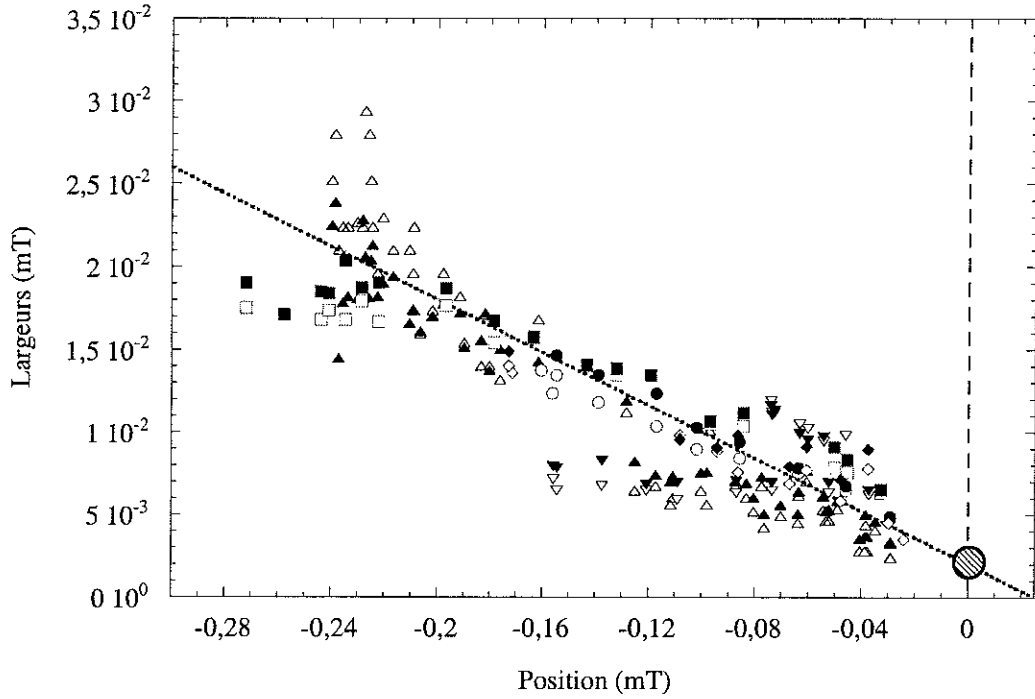


FIG. 11.24: Largeur à mi-hauteur du pic satellite étudié au-dessous de 22 bar sur E4 (champ de 37,3 mT), en fonction de son décalage de résonance. Δ : 5,2 bar, ^3He pur. $\circ$: 8,1 bar, ^3He pur. ∇ : 12 bar, ^3He pur. $\square$: 17 bar sans ^3He solide (dopé en ^4He). $\diamond$: 20,8 bar, ^3He pur. Sont également représentées les largeurs calculées via la hauteur et l'aire du pic satellite, recalée sur les précédentes par un facteur d'environ 1,30 provenant de sa forme exacte (et complexe, non Lorentzienne, mêmes symboles que ci-dessus, mais pleins au lieu de creux). La verticale pointillée représente la position de référence $T \approx T_{\text{sat}}$. La droite pointillée est un guide pour les yeux d'équation $2 \cdot 10^{-3} - 0,08x$, qui semble montrer que largeur et position sont simplement proportionnels (à notre dispersion près, de l'ordre de $\pm 5 \cdot 10^{-3}$ mT, que nous attribuons à la forme exacte du pic satellite). La largeur extrapolée à $T_{C,b}$ est de l'ordre de $2 \cdot 10^{-3}$ mT (cercle hachuré).

phase B (sous-section 10.1.2, et ligne pleine sur la figure).

Remarquons que pour chaque pression, les barres d'erreur semblent être plutôt de l'ordre de $\pm 15\%$. La différence d'une mesure à l'autre semble alors être dans la quantité exacte de spins impliqués dans le satellite (facteur multiplicatif global, même figure en encart). Il apparaît qu'à chaque mesure le satellite peut varier en amplitude de 6 % à 12 % environ de la quantité totale de liquide. Il faut être prudent en commentant ce résultat, à la limite de notre résolution. Il se peut que ces variations soient en partie dues à l'inclusion, sur certaines données, du second pic très aplati dans le premier. Encore une fois, les données à 17 bar mesurées en présence d' ^4He (sans couches magnétiques) sont parfaitement conformes aux résultats sur le système ^3He pur. Dans ce cas la valeur de 8,5 % (élevée si comparée aux 6 %) obtenue pour le satellite pourrait également s'expliquer par une meilleure définition du pic, car la raie principale est à la fois plus faible en amplitude et moins large (section 11.2). Ce point est à nouveau invoqué en sous-section suivante.

Les irrégularités dans la quantité exacte de spins impliqués dans le satellite nous amènent

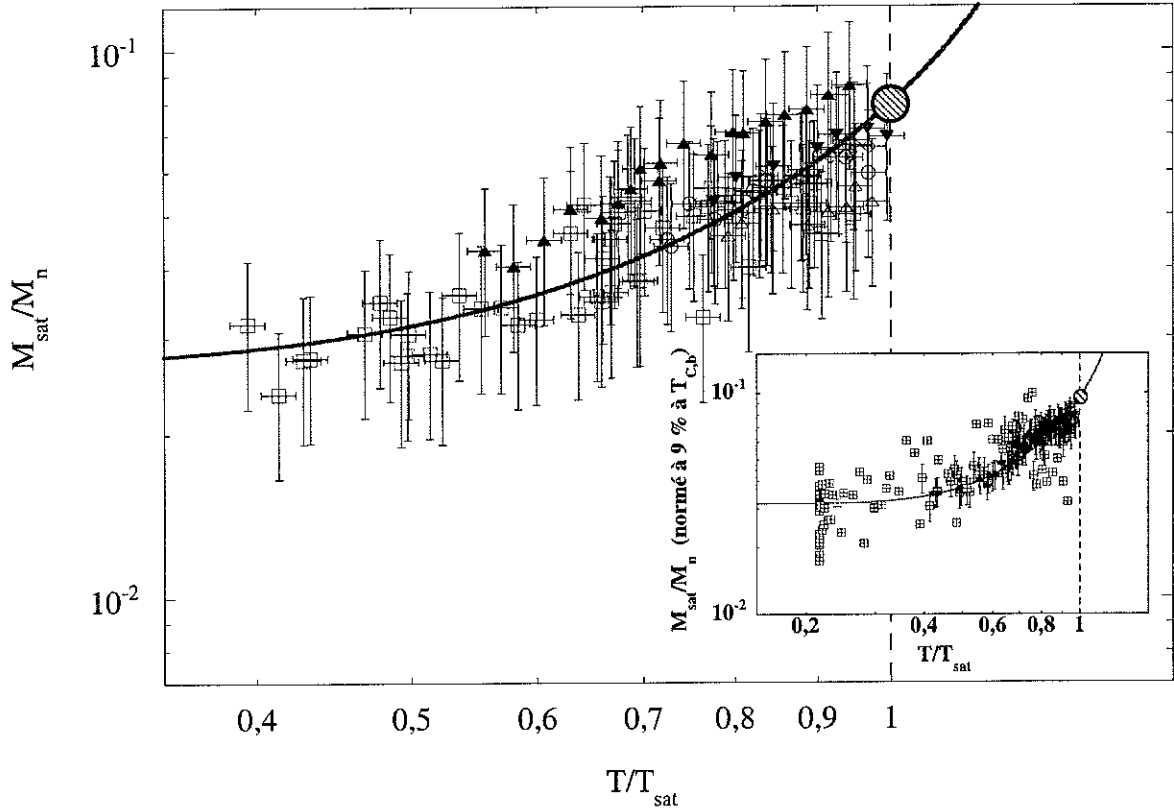


FIG. 11.25: Aimantation du satellite résolu au-dessous de 22 bar sur E4 (champ de 37,3 mT), en fonction de T/T_{sat} . Cette aimantation est normée à celle du liquide (normal) massif. $\square$: 5,2 bar, ^3He pur. $\triangle$: 8,1 bar, ^3He pur. $\circ$: 12 bar, ^3He pur. $\blacktriangle$: 17 bar, après adjonction d' ^4He , 73 % du solide restant. $\blacktriangledown$: 17 bar sans ^3He solide. $\diamond$: 20,8 bar, ^3He pur. Les barres d'erreur sur la température donnée par le fil vibrant sont de l'ordre de 2,5 %. Toutes ces données montrent la même tendance, que l'on peut représenter par la décroissance de l'aimantation obtenue typiquement pour la phase B de l' ^3He massif (équation (10.1) en section 10.1.2, ligne pleine). La dispersion (d'environ $\pm 30\%$) peut être diminuée de moitié si l'on s'autorise à recaler les données via un facteur multiplicatif sur l'aimantation (quantité exacte de spins impliqués dans le satellite). Le résultat est montré en encart, l'ajustement étant toujours le même. La dispersion obtenue est alors de l'ordre de $\pm 15\%$, et la quantité moyenne de spins dans le satellite est indiquée par l'extrapolation (cercle hachuré, 9 %). Les données de Chen [204] 1999 à 5 bar sont également représentées ($\boxplus$). Les verticales pointillées représentent la position de référence $T \approx T_{sat}$. Pour information, le calcul de l'aimantation dans la phase B utilise l'approximation de la fonction de Yoshida proposée par Carless et al. [178] 1983 : $Y_0(t) = \frac{1}{\sqrt{t}} e^{-1,76388/t} (3,454 - 0,88t + 4,625t^2 - 1,367t^3)$ si $t = T/T_C$, valable à 0,5 % près. Nous négligeons les corrections de couplage fort, et prenons simplement $F_0^a \approx -3/4$ (valeur usuellement retenue pour l' ^3He massif à $\pm 3\%$ près pour toute pression, la section 11.2 nous confirmant que les paramètres de Landau ne sont visiblement pas modifiés par l'aérogel).

à commenter les T_{sat} que nous définissons. Ils correspondent simplement à l'extrapolation linéaire du décalage de la résonance du satellite, tel qu'il est mesuré près de $T_{C,b}$, jusqu'au champ de Larmor mesuré par la position de la raie RMN principale. Le comportement précis de ce décalage est décrit au paragraphe suivant. Aucun pic satellite n'a été vu au-dessus du champ de Larmor. En première approximation, ces températures T_{sat} coïncident avec $T_{C,b}$, mesuré aussi bien par RMN ("blocage" de la largeur de raie, aimantation totale

du solide) que par le fil vibrant (thermomètre de la cellule expérimentale). Cependant en seconde approximation, nous nous apercevons que ces T_{sat} peuvent différer légèrement de la transition de l' ^3He massif.

Qualitativement encore, ces résultats sont conformes à ceux rapportés par Chen [204] 1999 pour son pic satellite principal (aimantation à 5 bar également représentée en encart, fig. 11.25). Son aimantation (de type $^3\text{He-B}$) est évaluée à environ 12 % de la quantité liquide. Le décalage entre T_{sat} et $T_{C,b}$ correspond à ce que cet auteur observe pour son second pic satellite ($T_{sat2} < T_{sat1} \approx T_{C,b}$ dans son système). Ces points nous confortent à nouveau dans notre identification de nos pics satellites aux siens. En moyenne, nous obtenons pour E4 environ 9 % du liquide massif impliqué dans ce pic satellite bien défini. Le second pic, invisible sur la plupart de nos données, pourrait en contenir autant (fig. 11.23 et Chen [204] 1999).

La grandeur la plus facilement accessible, et qui contient certainement le plus d'information sur la physique des pics satellites, est leur position. Nous concluons cette sous-section en présentant nos résultats expérimentaux les concernant.

Considérant la relation (10.2) de la sous-section 10.1.2, soit $b_{\perp} = B_{\mathcal{L}} - F(A_{\mu\nu}) \frac{(\Omega_X/\gamma)^2}{2B_{\mathcal{L}}}$, il est possible de recalculer la fréquence de Leggett Ω_X correspondant à nos mesures du satellite en différents champs magnétiques (nos données, et Chen [204] 1999). Du moins, ce calcul demande de "choisir" la valeur de $F(A_{\mu\nu})$, problème résolu pour les cas simples par les résultats théoriques (voir l'utilisation qui en est faite par Hakonen et al. [115] 1989, par exemple). Dans notre cas, le pic satellite est bien défini et correspond donc à une valeur donnée de $F(A_{\mu\nu})$ (à sa largeur près). Aucune solution n'est privilégiée, et nous nous proposons de réaliser nos graphiques en prenant simplement $F(A_{\mu\nu}) = 1$ par convention. Cette normalisation permet de s'affranchir du champ magnétique, et autorise les comparaisons directes. Aussi, les ajustements présentés pour ce Ω_X "normé" mettent en jeu différentes valeurs de $F(A_{\mu\nu})$; ils sont commentés dans la suite.

En fig. 11.26 sont représentées nos données à 17 bar, pour différentes quantités d' ^4He ajoutées. Dans nos barres d'erreur (en T/T_{sat}), nous ne distinguons aucune variation du décalage Ω_X avec la quantité d' ^4He . En toute rigueur, il est vrai que cette plage en température est pour certaines de ces données assez réduite, et une comparaison complète aurait demandé de suivre le satellite, pour toutes nos mesures, jusqu'aux plus basses températures.

En fig. 11.27 est représenté le décalage de la résonance du satellite mesuré à 5,2 bar. Les résultats de Chen [204] 1999 sont également présentés pour le satellite principal.

Encore une fois, la cause majeure d'erreur se trouve sur l'axe des températures de ce

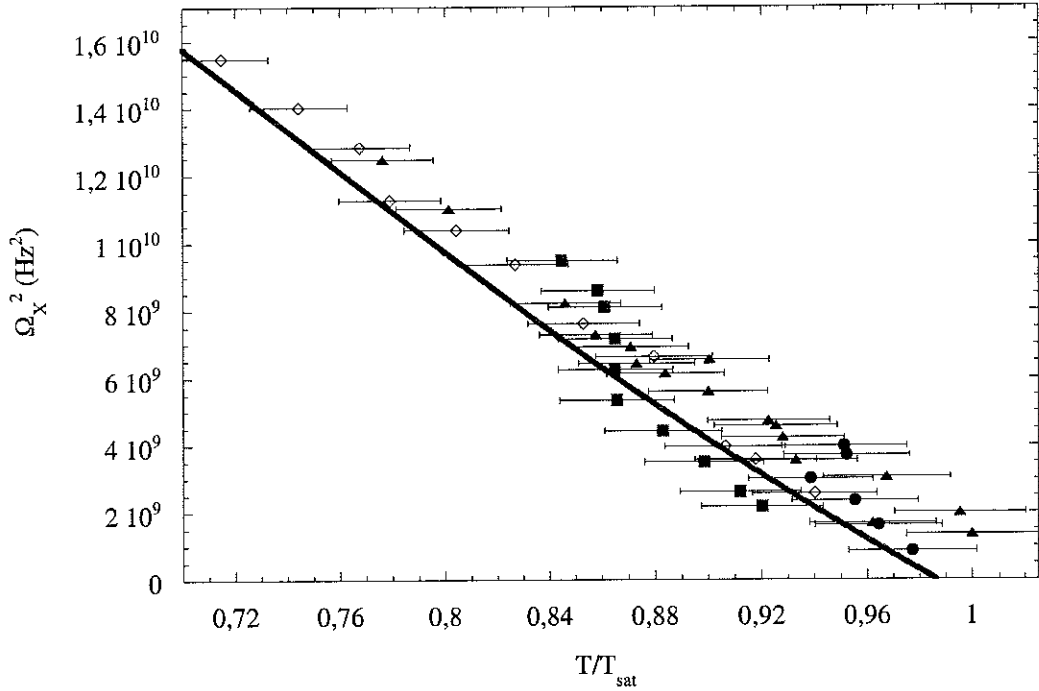


FIG. 11.26: Décalage de la résonance du satellite résolu en fonction de T/T_{sat} , exprimé en fréquence de Leggett Ω_X^2 . Nous présentons nos données à 17 bar sur l'échantillon E4 dans 37,3 mT. ● : ^3He pur, puis après adjonction d' ^4He , ▲ : 73 % d' ^3He solide, ■ : 21 % d' ^3He solide et ◇ : 0 % d' ^3He solide. Les barres d'erreur sur les ordonnées sont inférieures à la taille des symboles, sur l'axe des abscisses elles sont de l'ordre de 2,5 %. L'ajustement (ligne pleine) est tiré des mesures de l'article de Hakonen et al. [115] 1989. Nous considérons le cas de la phase B, et prenons $F(A_{\mu\nu}) = 0,52$ pour la position du satellite. L'obtention de cet ajustement est commenté explicitement dans la suite du texte.

graphique. Dans le cas des mesures de Chen [204] 1999, nous l'avons dit, le fil vibrant n'avait pas été recalibré, donnant lieu à des aberrations (perte d'aimantation à $T_{C,b}$ pour le solide, décalage de Leggett Ω_X supérieur à son maximum autorisé). Pour nos expériences, le fil vibrant a été spécialement calibré contre la RMN du Platine (section 5.4). Aussi, la similitude des échantillons E2 et E4 nous a poussé à identifier les quantités de solide adsorbé sur l'aérogel. Ces couches sont alors un véritable thermomètre, que nous avons utilisé pour recalculer l'échelle de température de Chen [204] 1999. Les résultats ainsi obtenus sont tout à fait cohérents, entre autres nous obtenons une dépendance presque identique de Ω_X pour E2 et E4 vers 5 bar (fig. 11.27). Ce résultat nous conforte encore dans l'identification de nos pics satellites sur E4 à ceux de E2.

L'ensemble des résultats de Grenoble sur les pics satellites principaux obtenus au-dessous de 22 bar est représenté en fig. 11.28. Les ajustements proposés en fig. 11.26, fig. 11.27 et enfin fig. 11.28 sont tirés des données de Ω_X de l'article de Hakonen et al. [115] 1989. La décroissance de l'aimantation du pic satellite nous pousse à considérer le

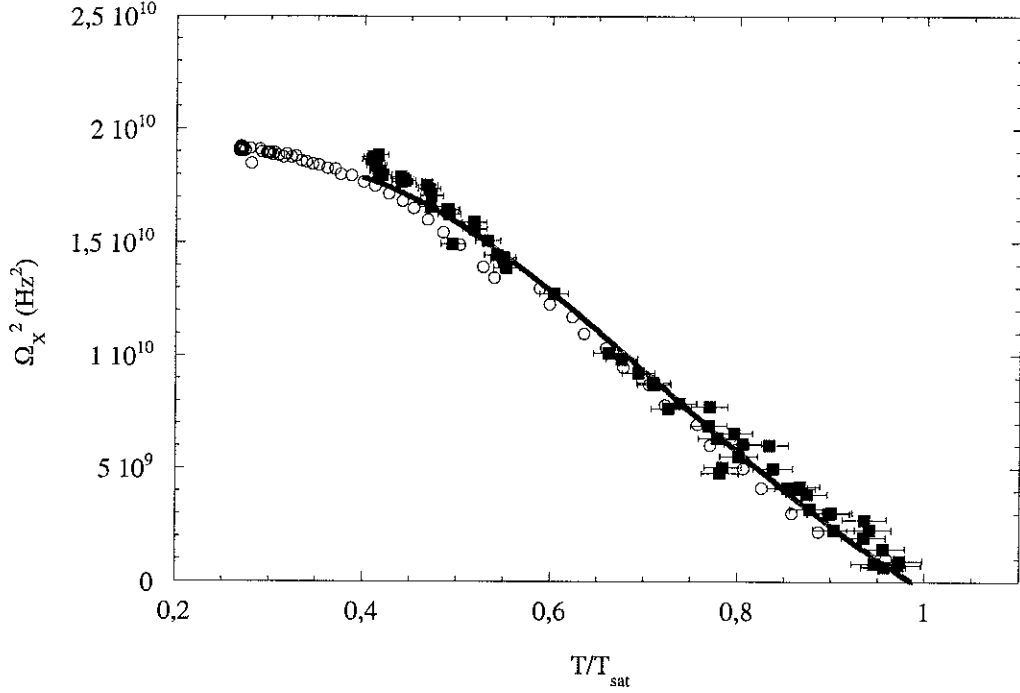


FIG. 11.27: Décalage de la résonance du satellite principal en fonction de T/T_{sat} , exprimé en fréquence de Leggett Ω_x^2 (cas ^3He pur). Nous montrons nos données sur le pic satellite que nous résolvons pour E4 (37,3 mT) à 5,2 bar (■), ainsi que les données de Chen [204] 1999 pour son pic satellite principal (O) sur E2 (31,3 mT) à 5 bar. L'ajustement (ligne pleine) est tiré des mesures de l'article de Hakonen et al. [115] 1989. Nous considérons le cas de la phase B , et prenons $F(A_{\mu\nu}) = 0,60$ pour la position du satellite. L'obtention de cet ajustement est commenté explicitement dans la suite du texte.

cas $X = B$, a priori le seul relevant pour les basses pressions (au-dessous 22 bar). Nous ajustons les données lissées de Hakonen et al. [115] 1989 en remarquant que toutes leurs mesures en pression sont simplement proportionnelles. Ainsi, les pressions intermédiaires non fournies dans cet article sont déduites des autres par un recalage tenant compte de l'ensemble de leurs données, où nous extrapolons aux pressions nécessaires le coefficient de proportionnalité.

Les ajustements sont tout à fait convaincants pour les données de E2, mais sont de moins bonne qualité pour E4, du fait de la plage en température plus réduite. Il semble effectivement raisonnable de décrire le satellite résolu à chaque pression par un seul nombre $F(A_{\mu\nu})$. Même si les résultats sur E2 et E4 coïncident aux alentours de 5 bar, et que la forme de ces courbes est toujours la même, l'évolution en pression de leur $F(A_{\mu\nu})$ est différente.

En fig. 11.29 nous représentons ces paramètres $F(A_{\mu\nu})$ caractérisant le pic satellite principal des échantillons E2 et E4, au-dessous de 22 bar. De façon surprenante, la tendance n'est pas la même pour les deux échantillons. La discussion concluant cette section revient sur ce point.

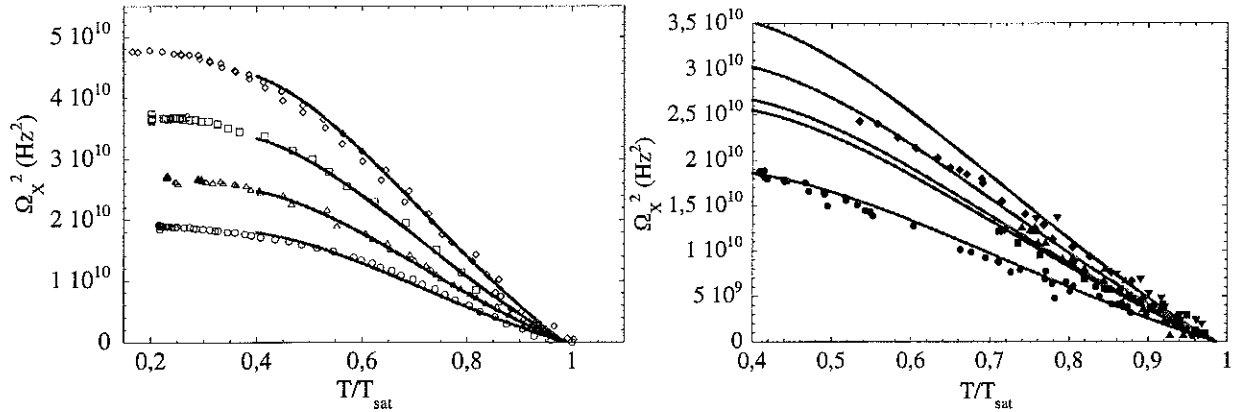


FIG. 11.28: Fréquence de Leggett Ω_X obtenues sur E2 (31,3 mT) et E4 (37,3 mT). Les différentes pressions sont représentées en fonction de T/T_{sat} , à gauche, données de Chen [204] 1999 (symboles creux) sur son pic satellite principal, et à droite nos données (symboles pleins). L'échelle de température pour E2 a été recalculée via l'aimantation des couches adsorbées. $\circ$: 5 bar, ^3He pur. $\bullet$: 5,2 bar, ^3He pur. Δ : 8 bar, ^3He pur. $\blacktriangle$: 8,1 bar, ^3He pur. $\square$: 12 bar, ^3He pur. $\blacksquare$: 12 bar, ^3He pur. $\diamond$: 17 bar, ^3He pur. $\blacklozenge$: 17 bar, dopé en ^4He . $\blacktriangledown$: 20,8 bar, ^3He pur. Les barres d'erreur sur la température (non représentées) sont de $\pm 2,5\%$. Les ajustements (lignes pleines) sont tirés de l'article de Hakonen et al. [115] 1989, et sont commentés dans le texte. Ils correspondent à la phase B avec différentes valeurs de $F(A_{\mu\nu})$. L'accord est convaincant, remarquons l'inversion sur le graphique des données à 12 bar et 8,1 bar pour E4 (il ne s'agit pas d'une coquille). La moins bonne qualité des ajustements sur nos données vient de la gamme de température réduite sur laquelle ils s'effectuent.

Insistons sur le fait que, malgré les quelques irrégularités citées, ces résultats semblent tout à fait reproductibles, sur un échantillon donné, quel que soit le dopage en ^4He . En toute rigueur, il est vrai que nous n'avons pu tester de façon isolée l'influence du champ magnétique sur le pic satellite. Les différences entre E2 et E4 pourraient y être attachées, bien que l'écart entre les champs utilisés est d'à peine 20 %.

En guise d'introduction à la sous-section suivante, insistons sur le fait que les propriétés de ce satellite sont tout à fait régulières jusqu'au plus basses températures étudiées ($T/T_{C,b} \approx 0,40$), par exemple nous ne notons aucune anomalie à $T_{C,a}$ (mesures à 17 bar en ^4He dans notre cas, et en ^3He pur de 8 bar à 17 bar par Chen [204] 1999).

11.3.2.2 Au-dessus de 22 bar

Le cas des pressions supérieures à 22 bar, où dans l' ^3He massif en champ nul la phase A est stabilisée près de $T_{C,b}$, est éminemment plus complexe. Trois types de satellites peuvent être identifiés sur ces données (suivant le domaine de températures étudié). Nous allons montrer qu'ils suivent une classification en deux groupes distincts seulement, mais qui ne sont pas indépendants.

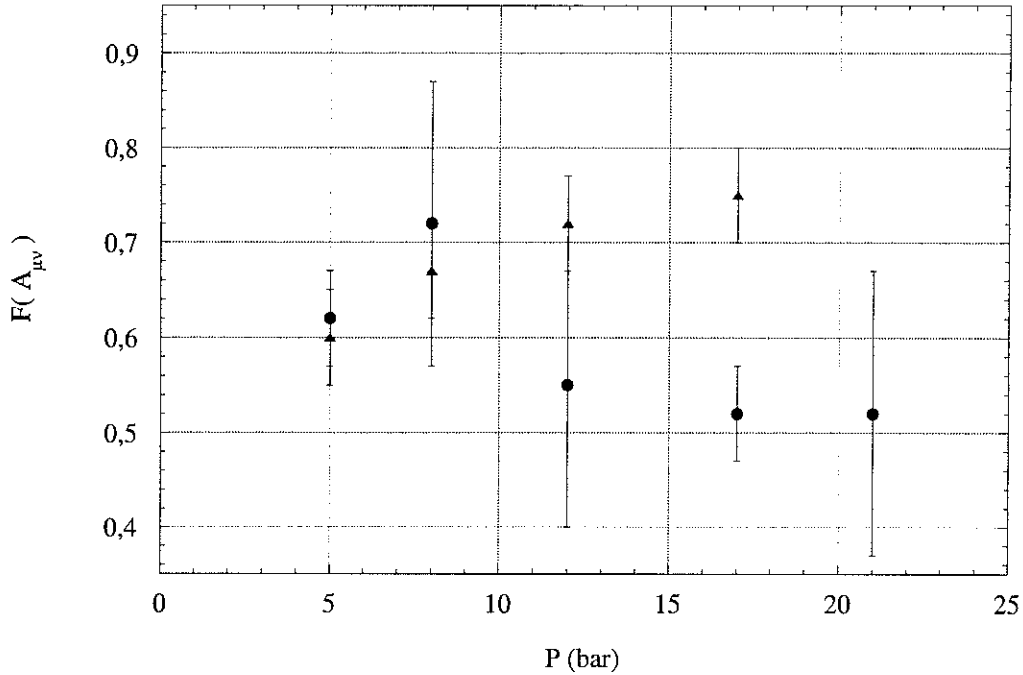


FIG. 11.29: Paramètres $F(A_{\mu\nu})$ pour E2 (31,3 mT) et E4 (37,3 mT) en fonction de la pression (au-dessous de 22 bar), concernant le pic satellite principal. Ils sont obtenus via l'ajustement des données de Chen [204] 1999 (E2, ▲), et de nos données (E4, ●), suivant la procédure explicitée dans le texte. Les barres d'erreur sur ce graphique indiquent la plage sur laquelle $F(A_{\mu\nu})$ peut varier, si l'on considère que l'erreur en température est de l'ordre de $\pm 2,5\%$.

Suivant en réchauffement l'évolution d'un premier pic satellite, systématiquement aux alentours de T_{AB} , température de transition entre les phases A et B de l' ^3He massif⁴⁰, nous notons l'apparition d'un nouveau pic satellite (qui dans certaines données semble préexister sous la forme d'une très légère bosse). Le comportement du premier pic satellite repéré ici n'est d'ailleurs pas toujours le même : dans certains cas il disparaît très rapidement, ne laissant qu'une légère bosse dans la ligne de base marquant encore sa présence, parfois son atténuation est plus progressive (22,8 bar et 24,8 bar), alors que dans d'autres circonstances il y survit (29,5 bar). D'ailleurs, pour les deux pressions les plus basses ce pic apparaît entre le premier satellite et la raie principale, alors que pour 29,5 bar il est au-dessous du premier satellite. Ces points sont illustrés en fig. 11.30, où nous avons également porté nos résultats à 29,5 bar en présence d' ^4He . La numérotation de ces satellites est explicitée dans la suite.

⁴⁰Nous parlons de la transition T_{AB} telle qu'elle est définie par le réchauffement d'une cellule expérimentale (condition de nos mesures). En effet, dans l' ^3He massif cette transition exhibe un sur-refroidissement, lorsqu'on abaisse la température. Bien que dans notre cas, les températures assignées aux satellites puissent être légèrement décalées vis-à-vis de celles de l' ^3He massif (point cité dans la sous-section précédente), pour toutes ces données l'apparition du second satellite correspond assez bien à T_{AB} .

Insistons encore une fois sur le fait que ces résultats sont reproductibles, et ne sont pas

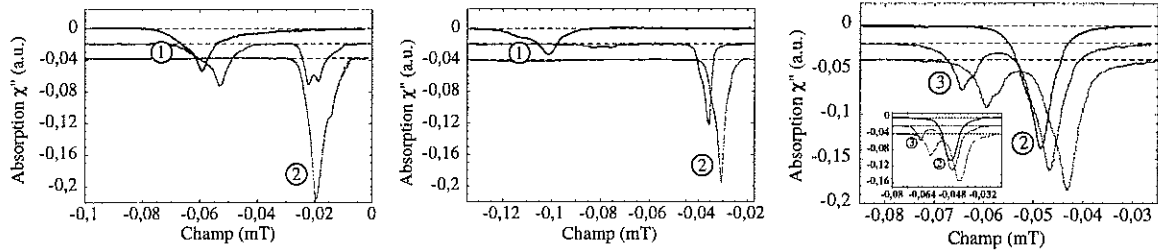


FIG. 11.30: Pics satellites obtenus aux pressions supérieures à 22 bar, dans 37,3 mT autour de T_{AB} (à $\pm 5\%$). Nous représentons l'absorption RMN χ'' en fonction du champ (le zéro est Larmor), dans nos unités arbitraires. A gauche, mesures à 22,8 bar, au milieu, mesure à 24,8 bar et à droite mesure à 29,5 bar, toutes en ^3He pur. En encart de ce dernier graphique, nous représentons nos données à 29,5 bar, en présence d' ^4He (8 % de l' ^3He solide adsorbé est encore présent). Pour chaque cas, trois températures sont représentées (nous réchauffons le cryostat depuis sa température de base). Les données sont décalées pour optimiser la lisibilité, les températures les plus froides étant en haut dans ces graphiques. Nous voyons que pour ces pressions et températures, des satellites apparaissent ou disparaissent, de façon plus ou moins brutale. Nous les numérotons pour des raisons de commodité qui apparaîtront dans la suite.

influencés par la couverture en ^4He .

Les pics satellites des pressions 22,8 bar, 24,8 bar et de la pression 29,5 bar ne sont visiblement pas de même nature. Cependant, une "transition" entre pics du même type qu'à 24,8 bar est trouvée à 29,5 bar, mais à une température plus faible (fig. 11.31, environ 1,75 mK, pour information température bien inférieure à $T_{C,a}$). Le premier satellite disparaît alors que le second apparaît, plus proche de la raie principale. La encore, l'accord entre données en ^3He pur et ^3He dopé en ^4He est tout à fait convaincant.

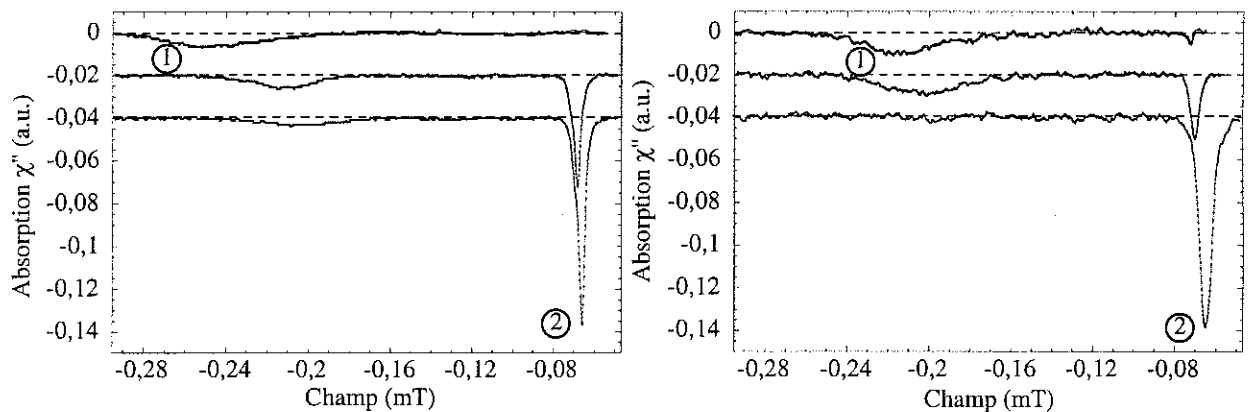


FIG. 11.31: Seconde "transition" entre pics satellites observée à 29,5 bar, sur l'échantillon E4 aux alentours de 1,75 mK. Nous représentons l'absorption RMN χ'' en fonction du champ (le zéro est Larmor), dans nos unités arbitraires. A gauche, données en ^3He pur à 1,70 mK. A droite, données après dopage en ^4He , à 1,80 mK. La convention pour les symboles utilisés est la même que sur la figure ci-dessus (les données sont décalées en y). La numérotation fait l'objet de la discussion de cette section.

Ces résultats semblent assez complexes et parfois incompréhensibles. Cependant, il semble que l'on puisse classer ces pics en deux groupes. Les pics satellites obtenus aux plus basses températures sont appelés ici pics satellites de première espèce (notés ① sur les graphiques). Lorsqu'apparaissent les seconds pics, que nous désignons sous le terme de pic satellite de seconde espèce (notés ②), ces premiers pics tendent à disparaître. Les pics de seconde espèce apparaissent toujours entre la raie principale et le pic de première espèce. C'est tout à fait ce que est vu par Haard [208] 2001 dans un échantillon similaire au nôtre. Simplement, il ne détecte que le pic de seconde espèce, car la fenêtre en champ (fréquence) qu'il étudie est trop étroite pour voir le pic de première espèce. Qu'en est-il alors du troisième pic (noté ③) vu en fig. 11.30, à 29,5 bar ? Il semble qu'il s'agisse du pic de première espèce qui réapparaît sur l'absorption RMN, pour des raisons inconnues (mais, encore une fois, reproductibles).

Le premier pic (tant que le second n'est pas apparu), se comporte sur sa largeur de raie et son aimantation comme les pics mesurés à basse pression. Nous montrons en fig. 11.32, en haut, sa largeur en fonction de sa position. En encart est représenté son aimantation en fonction de T/T_{sat1} pour les différentes pressions étudiées. Sa largeur croît alors qu'il se décale (se refroidit) depuis une valeur d'environ $2 \cdot 10^{-3}$ mT également à $T_{C,b}$, et son aimantation à la transition correspond aux 9% de spins inclus dans le pic résolu à basse pression, avec la même tendance en température, de type $^3\text{He} - B$. Aux plus basses températures il semble s'aplatir, phénomène également vu sur la fig. 11.24 pour les données à 5,2 bar. Les pics numérotés ③ peuvent s'insérer sur ce graphique, simplement leur aimantation est légèrement plus faible.

Les pics de seconde espèce, représentés en fig. 11.32 en bas, ont une largeur RMN qui semble être constante en température, voir même semble varier en sens contraire des précédents aux plus basses températures (ils se rétrécissent). De plus, la variation de leur aimantation, également croissante avec T , est bien plus abrupte (voir l'encart). Notons qu'elle n'est visiblement pas universelle en T/T_{sat2} , une autre échelle d'énergie doit être prise en compte pour la décrire (peut-être T_{AB} , température d'apparition des pics). Leur aimantation extrapolée à $T_{C,b}$ est équivalente à celle des pics de première espèce (soit 8 % environ), lorsque ce premier pic est présent sur la raie RMN, et peut être résolu indépendamment (cercle hachuré inférieur sur le graphique). En revanche près de $T_{C,b}$, soit le premier pic n'a pas réapparu, soit il vient à se confondre au deuxième pic, et l'aimantation obtenue pour ce pic de seconde espèce correspond à la totalité des spins satellites, soit 9%+8% environ (cercle hachuré supérieur sur le graphique).

Comme précédemment, la définition des $T_{sat i}$ est l'extrapolation des positions de ces deux classes de pics satellites sur le pic principal, lorsque l'on réchauffe la cellule expérimentale.

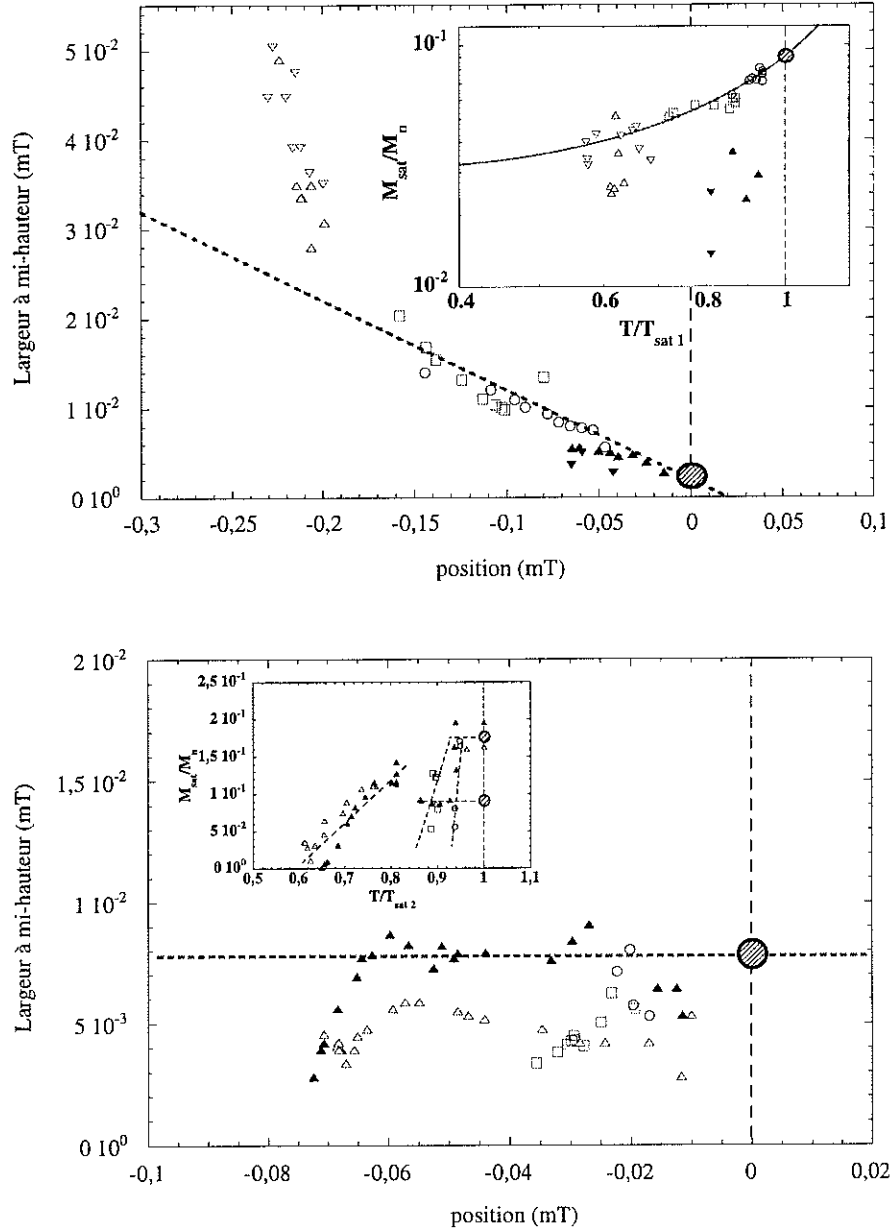


FIG. 11.32: Classification des pics satellites en deux groupes, échantillon E4 à 37,3 mT. Nous représentons la largeur du pic satellite i , en fonction de son décalage en résonance. En haut, satellites comparables au pic résolu à basse pression (au-dessous de 22 bar), nommés de première espèce. Nos données à 22,8 bar ($\circ$), 24,8 bar ($\square$) et 29,5 bar en ^3He pur ($\triangle$), et après élimination des couches solides par de l' ^4He (∇ , 8 % de solide était encore présent cependant). A 29,5 bar, les symboles pleins représentent les mêmes conditions expérimentales, mais concernent le troisième pic détecté. Il semble s'agir du premier satellite, qui réapparaît après avoir disparu. Les verticales pointillées représentent le point de référence $T \approx T_{\text{sat } i}$. L'ajustement représente une droite d'équation $2 \cdot 10^{-3} - 0,10x$, du même type que celui présenté en fig. 11.24. En encart de cette figure, mêmes conditions pour l'aimantation des satellites de première espèce (normée à l'aimantation liquide), en fonction de $T/T_{\text{sat } 1}$. L'ajustement représente la même loi que celle proposée à basse pression en fig. 11.25. Par souci de clarté, nous n'avons pas représenté les mesures où ce pic s'atténue progressivement. En bas, les pics satellites que nous ne détectons qu'au-dessus de 22 bar, nommés de seconde espèce. Les symboles sont les mêmes. En encart, l'aimantation de ces satellites, normée à l'aimantation du liquide. Notons que la dépendance en température de ces satellites n'est pas universelle en $T/T_{\text{sat } 2}$ (à ce titre, les lignes pointillées sont des guides pour les yeux). Les points hachurés représentent les valeurs extrapolées en $T_{C,b} \approx T_{\text{sat } i}$ pour ces deux classes de satellites, et leur différentes propriétés.

Ces températures peuvent être légèrement différentes entre elles, et exhibent également de légers écarts à $T_{C,b}$, comme pour le cas des pressions inférieures à 22 bar. La valeur exacte des quantités de spins impliquées dans chaque pic satellite pourrait être également le sujet d'une étude plus poussée, si la résolution le permettait.

Remarquons que nous ne décelons aucune différence à 29,5 bar dans nos données d'aimantation satellite après dopage en ^4He . Ce point ne correspond pas à ce qui est rapporté par Halperin et al. [164] 1996 et Haard [208] 2001. Dans leur travaux, ces auteurs détectent un satellite (de seconde espèce) représentant environ 14 % du liquide, en accord semi-quantitatif avec nos résultats. Cependant, après adjonction d' ^4He , ils prétendent que son aimantation passe à 27 %. A notre sens, il ne peut s'agir que d'un problème de résolution. Nous avons déjà exposé les problèmes expérimentaux rencontrés par ce groupe, et l'ensemble des difficultés à détecter les satellites. L'adjonction d' ^4He change la raie principale, et donc les conditions d'extraction de cette information, pouvant donner lieu à des erreurs systématiques.

En fig. 11.33 nous présentons l'aimantation totale des satellites, somme des aimantations des deux pics satellites que nous pouvons rencontrer aux différentes températures étudiées.

Nous remarquons que cette aimantation tend en $T_{C,b}$ vers les 17 % manquant dans la raie principale (correspondant au liquide/solide, sous-section 11.3.1). Dans le cas où le pic satellite de première espèce disparaît, mais ne réapparaît pas, force est donc de conclure que ces spins sont passés dans le second pic (ce qui est d'ailleurs visible à l'œil dans les raies présentées en fig. 11.30 et fig. 11.31). Au contraire près de $T_{C,b}$ à 29,5 bar, les deux pics sont présents et d'aire comparable (fig. 11.30, et fig. 11.32). Nos 17 % de spins manquants se répartissent donc suivant les satellites : soit moitié-moitié, soit tous les spins dans le pic de seconde espèce.

Force est donc de conclure que les deux assemblées de spins ne sont pas indépendantes, ou du moins qu'il existe un phénomène permettant de les considérer comme liées. Il est alors tentant de réaliser une analogie avec le cas des basses pressions (au-dessous de 22 bar). En effet, le pic que nous y résolvons se comporte comme les pics de première espèce à haute pression. Nous le nommons donc également pic de première espèce. Le second satellite que nous ne pouvons presque pas distinguer dans l'étude basse pression correspondrait alors à ce que nous nommons un pic de seconde espèce à plus haute pression. Il contiendrait les 8 % de spins du liquide encore manquants dans l'étude des pressions inférieures à 22 bar. Sa position, entre le satellite principal (de première espèce), et la raie principale est alors également analogue aux cas des pressions supérieures à 22 bar. Simplement, les propriétés

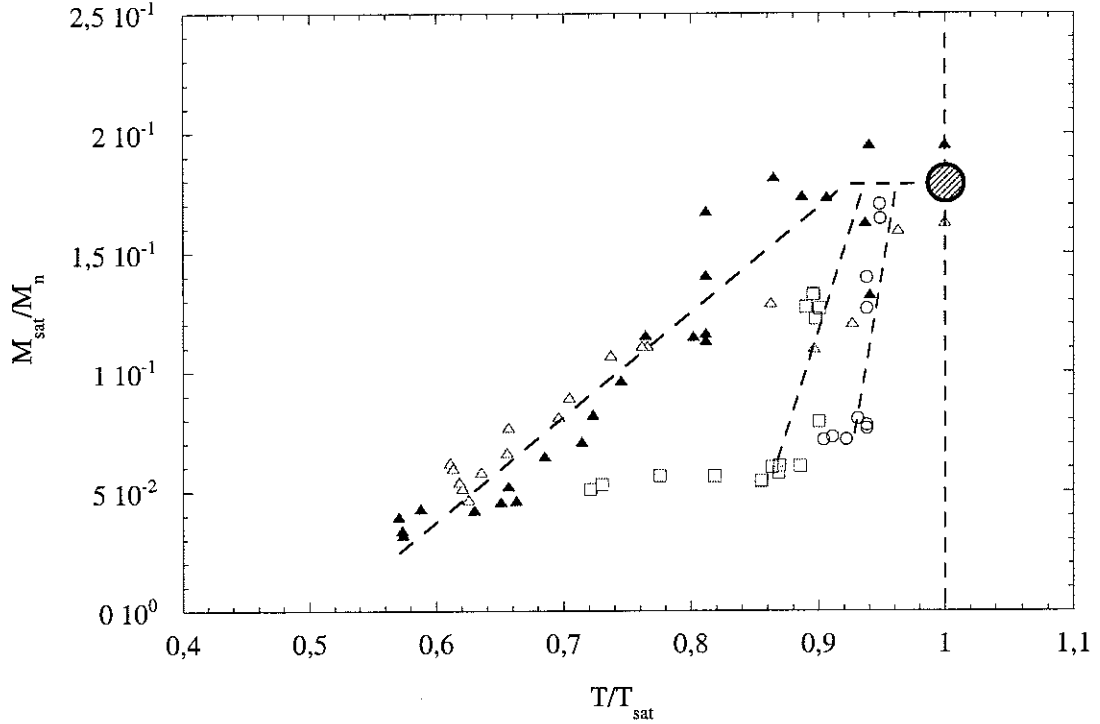


FIG. 11.33: Aimantation totale des satellites obtenus à haute pression (au-dessus de 22 bar), fonction de T/T_{sat} (champ de 37,3 mT), normée à l'aimantation du liquide. T_{sat} représente la moyenne des $T_{sat,i}$. Nos données à 22,8 bar ($\circ$), 24,8 bar ($\square$) et 29,5 bar en ^3He pur (Δ), et après élimination des couches solides par de l' ^4He ($\blacktriangle$, 8 % de solide était encore présent cependant). Les lignes pointillées sont des guides pour les yeux, marquant l'évolution de l'aimantation des pics de seconde espèce (qui n'est pas universelle en $T/T_{sat,2}$). Les verticales pointillées indiquent la référence $T \approx T_{sat,i}$. Le cercle hachuré représente la valeur extrapolée en $T_{C,b} \approx T_{sat,i}$ pour l'aimantation totale des satellites : nous obtenons les 17 % manquant dans le pic RMN principal (constitué du liquide/solide).

de ces pics changent drastiquement au-dessus de cette limite en pression : le pic de seconde espèce devient clairement visible sur nos mesures aux alentours de T_{AB} (changement dans sa largeur de raie, semble-t-il), et il influence les propriétés du premier pic (pouvant même l'éteindre complètement). Les décalages en résonance, présentés ci-dessous, sont également particuliers. L'ensemble de ces propriétés est discuté dans la suite du manuscrit.

Comme pour les basses pressions, le paramètre le plus facilement accessible et certainement le plus important est la position des pics satellites.

Nous donnons en fig. 11.34 le décalage de la résonance de nos deux groupes de spins satellites. Encore une fois, remarquons que nous ne décelons aucune différence entre les données acquises en ^3He pur, et en ^3He dopé en ^4He . Pour le pic satellite de première espèce, nous effectuons la même analyse que pour les basses pressions (au-dessous de 22 bar), c'est-à-dire que nous l'assimilons à de la phase B , et le décrivons par un seul paramètre $F(A_{\mu\nu})$. Etant donné la plage réduite de température étudiée et ses barres d'erreur de l'ordre de

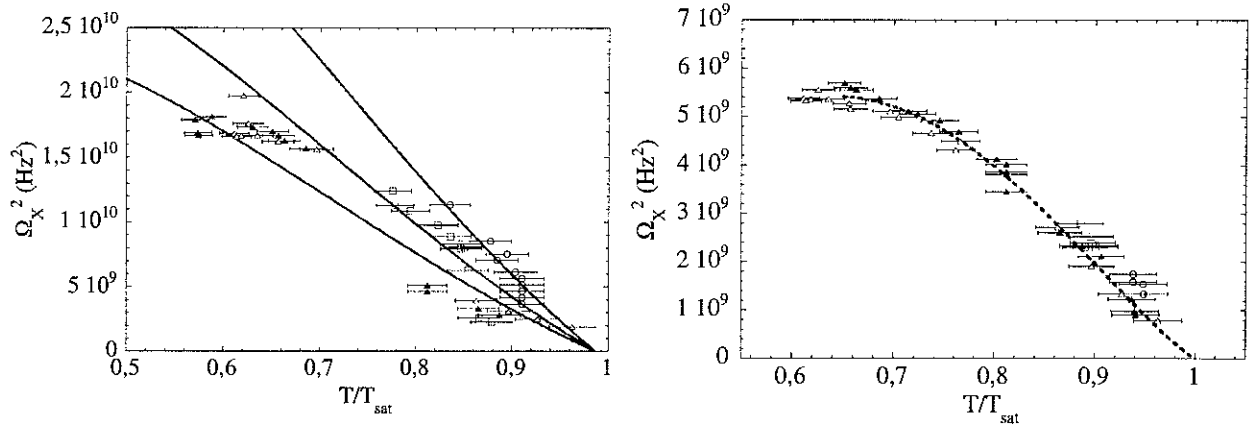


FIG. 11.34: Décalage de la résonance en fonction de T/T_{sat} , exprimé en fréquence de Leggett Ω_X^2 sur E4 dans 37,3 mT. A gauche, le pic satellite de première espèce, à droite le pic de deuxième espèce. $\circ$: 22,8 bar. $\square$: 24,8 bar. $\triangle$: 29,5 bar. $\blacktriangle$: 29,5 bar, dopé en ^4He (8 % du solide magnétique est encore présent). Les lignes pleines, sur le graphique de gauche, représentent des ajustements du même type que ceux réalisés sur les données concernant le pic satellite résolu au-dessous de 22 bar (à partir des données de Hakonen et al. [115] 1989, pour la phase B). Nous obtenons $F(A_{\mu\nu}) = 0,60$, $F(A_{\mu\nu}) = 0,40$ et $F(A_{\mu\nu}) = 0,27$ pour les trois pressions étudiées, dans leur ordre croissant. En revanche, aucun ajustement satisfaisant n'a pu être obtenu pour le satellite de seconde espèce, et la ligne pointillée n'est qu'un guide pour les yeux. Les barres d'erreur sur la température sont de l'ordre de $\pm 2,5\%$.

$\pm 2,5\%$, ces résultats sont évidemment à prendre avec précaution. D'ailleurs, l'ajustement des données obtenues à 29,5 bar est assez peu convaincant, laissant penser qu'un seul paramètre ajustable $F(A_{\mu\nu})$ n'est pas suffisant. Néanmoins, les valeurs des $F(A_{\mu\nu})$ ainsi extraits semblent s'insérer correctement sur le graphique fig. 11.29, en poursuivant la même tendance en pression (non représentée, valeurs fournies en légende de la fig. 11.34).

Le pic satellite de seconde espèce affiche un décalage en fréquence de forme similaire au pic de première espèce, mais d'amplitude bien plus faible. Ceci semble montrer qu'il s'agit de phase A (dans l' ^3He massif, $\Omega_A < \Omega_B$), ce qui éclairerait son apparition à T_{AB} . Remarquons cependant que l'aimantation de ces pics n'est pas constante en température, contrairement à celle de la phase A (sous-section 10.1.2). Aussi, les mesures de Haard [208] 2001 apportent $\Omega_X^2 \approx 6,1 \cdot 10^9 \text{ Hz}^2$ pour $T/T_{C,b} \approx 0,8$ à 28,6 bar, en accord avec nos résultats. Ceci confirme à nouveau que cet auteur détecte le satellite de seconde espèce. En revanche, si l'on s'autorise quelques % d'erreur sur la thermométrie (l'erreur sur la position est négligeable, sauf au plus près de $T_{C,b}$), nous ne trouvons aucune variation en pression pour la position du second pic satellite. Ceci peut s'interpréter à nouveau par la compétition de deux effets : la croissance de Ω_A avec la pression, et la décroissance du paramètre $F(A_{\mu\nu})$ décrivant les satellites de seconde espèce. Cependant, il ne nous a pas été possible d'ajuster de façon raisonnable ces données à l'aide des valeurs de Ω_A déjà publiées. Un seul paramètre $F(A_{\mu\nu})$ par pression ne semble pas suffisant à leur description.

Remarquons simplement que l'amplitude du décalage en résonance du second satellite est de l'ordre d'un facteur dix inférieur aux valeurs publiées pour Ω_A^2 , aux plus basses températures.

11.3.2.3 *Discussion*

Nos pics satellites correspondent donc à deux assemblées (macroscopiques) de spins, représentant 8 % et 9 % environ de l' ^3He liquide total, et possédant des propriétés RMN comparables à celles des phases superfluides A et B , mais avec leur particularités. Ces groupes de spins, qui sont extraits de la partie liquide de la raie principale liquide/solide, ne sont pas en échange rapide avec le solide, et sont reliés d'une certaine façon entre eux, qui permet d'expliquer leurs apparitions/disparitions corrélées.

Il nous est à présent possible de discuter les trois causes invoquées pour rendre compte de leur présence.

Rejetons de suite la possibilité de macro-pores au sein de l'aérogel. Comme cela a été remarqué par Bunkov et al. [145] 2000, les quantités de défauts correspondantes dans la structure de silice sont bien trop grandes (jusqu'à 50 % pour E1). De plus, s'il s'agissait de pores, chaque taille de pores particulière donnerait un T_{sat} particulier (toujours réduit par rapport à $T_{C,b}$), ce qui donnerait une distribution de pics satellites (conformément à l'approche de Harris, voir pour exemple la discussion de Gabay [207] 2001, appliquée au cas de l' ^4He superfluide confiné).

Pour réconcilier cette vision des choses avec nos résultats, il faudrait imaginer exactement deux assemblées de pores de taille similaires. De surcroît, ces défauts devraient être comparables pour E2 et E4 (les deux mêmes types d'ensemble de cavités contenant le même nombre de spins, 9 % de liquide environ), ce qui est très improbable.

Le seul lien existant entre ces cavités est alors leur nature identique (de l' ^3He superfluide), et l'apparition/disparition des pics satellites de première espèce lorsqu'apparaissent les pics de seconde espèce s'expliquerait en disant que la phase A y est stabilisée au détriment de la phase B . La réapparition des pics satellites de première espèce aux plus fortes pressions très près de $T_{C,b}$ est incompréhensible dans ce modèle.

Aussi, une telle vision rendrait compte de l'aimantation des pics de première espèce, variant comme la phase B . En revanche, la décroissance très rapide de l'aimantation des pics de seconde espèce ne correspond pas à de la phase A , d'aimantation constante.

Enfin, les paramètres $F(A_{\mu\nu})$ déduits des décalages en résonance seraient dus à la texture qui prendrait place dans ces cavités, dont la forme exacte serait a priori compliquée. La

valeur de ce paramètre et sa variation en pression, différente pour E2 et E4, serait alors liée à la forme et la taille exacte des pores, ce qui semble peu raisonnable⁴¹.

Intéressons-nous maintenant à la seconde possibilité : il pourrait s'agir de zones de la cellule expérimentale, vues par la bobine RMN, où l' ^3He aurait les propriétés de l' ^3He massif. Dans notre géométrie, quatre zones sont à considérer (chapitre 3) : le haut de l'aérogel, c'est-à-dire le ballast thermique d' ^3He (baignant le fil vibrant), le bas de l'aérogel où il se pourrait qu'un espace libre existe entre le fond de la cellule et l'échantillon, les côtés de l'aérogel qui pourraient ne pas s'ajuster exactement au cylindre de la cellule, et enfin l'écran thermique d' ^3He extérieur à la cellule aérogel.

Considérons le cas de l'écran thermique extérieur à la cellule aérogel. Cette explication permettrait de rendre compte des légers écarts entre les $T_{\text{sat } i}$ et $T_{C,b}$. Pour ce qui est des autres caractéristiques des pics satellites, nous renvoyons à la discussion ci-dessous sur les autres zones de la cellule, qui est sur ces points similaire.

Cette possibilité est néanmoins difficile à accepter, pour au moins deux raisons expérimentales. La première est que pour notre échantillon E4, la cellule interne est très finement ajustée à la cellule externe, et il est donc difficile de croire à un signal provenant de cette région. Le second point, est que nos pics satellites se refroidissent jusqu'à des températures de l'ordre de 0,5 mK. Or il est reconnu que la température minimale de cet écran thermique n'est que de l'ordre du mK (Bunkov [165]).

Pour ce qui est du haut (ballast thermique) et du bas de la cellule aérogel, différentes raisons nous poussent à les rejeter.

L'aimantation de type *B* des pics satellites de première espèce pourrait être expliquée ainsi, mais la décroissance de l'aimantation des pics de seconde espèce, qui n'est pas universelle en $T/T_{\text{sat } 2}$ reste mystérieuse. Aussi, la texture qui prendrait place à ces endroits serait assez proche de la texture de l' ^3He dans une cellule de volume infini : pour l' ^3He -*B*, il s'agirait d'une raie non décalée, il n'y aurait donc pas de pic satellite visible. Dans ce modèle, la transition entre pics de première et seconde espèce s'expliquerait par la stabilisation de la phase *A* à forte pression (tout comme pour le cas des cavités discuté ci-dessus).

A ce niveau, commentons à nouveau les résultats du groupe de Northwestern (cités dans Haard [208] 2001). Ils concernent deux cellules cylindriques orthogonales au champ magnétique, l'une vide (de référence) et l'autre contenant un aérogel ajusté dans un tube de verre. Après condensation de l' ^3He , ces auteurs mesurent la position de leur satellite (de seconde

⁴¹Pour la phase *B* par exemple, correspondant aux pics de première espèce, les échelles de longueur sont telles que la texture ne devrait pas être sensible à l'aérogel (section 10.1.2).

espèce), et de la raie RMN obtenue dans la cellule de référence, à l'aide du premier moment de ces raies. Leurs mesures s'effectuent en réchauffant le cryostat depuis les températures les plus froides qu'ils aient atteintes, tout comme nous. Ils assimilent leur pic satellite à une inclusion d' $^3\text{He-A}$ massif dans leur cellule aérogel, car le décalage en résonance qu'ils obtiennent pour ces deux signaux est identique à 28,6 bar. Une telle assimilation implique que les textures dans la cellule de référence, et dans la zone libre de la cellule aérogel, sont identiques. Or dans ces conditions, les auteurs concluent qu'il s'agit de l'extrémité de leur tube d'aérogel, qui n'est pas rempli par l'échantillon mais est également vu par la bobine RMN.

Comment expliquer alors que nous ayons qualitativement les mêmes résultats qu'eux, alors que nos géométries sont si différentes (les textures sont censées être très différentes, mais le décalage de leur pic satellite, de seconde espèce, est comparable au nôtre) ? En toute rigueur d'ailleurs, Haard [208] 2001 ne présente aucune mesure systématique du satellite. Cette similitude entre satellite et référence à 28,6 bar n'a visiblement pas été vérifiée aux autres pressions, et l'aimantation du satellite (dont nous savons qu'elle n'est pas constante, et ne correspond donc pas à de la phase A), n'a pas été étudiée, semble-t-il. En ce sens, nous considérons qu'une telle correspondance, bien que surprenante, est avant tout une coïncidence.

Concernant la possibilité discutée dans ce paragraphe, la dernière remarque que nous puissions faire est que dans notre géométrie (chapitre 3), le ballast thermique est assez loin de la bobine RMN (de l'ordre de plusieurs mm). L'aérogel a été placé bien au fond du tube formé par la cellule expérimentale, et il serait surprenant qu'un cinquième du signal en provienne (les deux satellites).

Reste l'espace au niveau des parois du cylindre, jouxtant l'aérogel. Pour la cellule de Northwestern et la nôtre (E4), cet espace était censé être nul (ajustement serré). En revanche, la cellule de E2 pouvait avoir un tel espace de l'ordre de 10 %. Pour conséquence, notons que la fuite thermique de notre échantillon l'empêche de se refroidir en deçà de $750\text{ }\mu\text{K}$, alors qu'E2 atteint $350\text{ }\mu\text{K}$. Cet espace est invoqué par Cousins et al. [162] 2000 pour expliquer la présence du premier satellite.

A ce titre, remarquons que l'explication est assez plaisante : elle rend compte de l'aimantation de type B des pics de première espèce. La texture, pour l' $^3\text{He-B}$, présente entre deux parois verticales donne une valeur de $F(A_{\mu\nu})$ proche de 0,6 (comme pour l'extrémité du spectre de la texture " flare-out "). C'est ce qui est vu, en moyenne, sur nos mesures. En revanche, les variations en pression de ce coefficient ne peuvent être expliquées.

Cependant, nous avons vu que les échantillons E2 et E4 sont tout à fait similaires. La seule

différence qualitative, dans nos mesures présentées jusqu'ici, est la quasi-absence dans notre spectre RMN du second pic satellite. Si l'un des pics doit être associé à cette paroi, force est donc d'associer le second satellite, et non le premier. Mais alors, à quoi correspond ce premier satellite, qui pourtant semblait correspondre assez bien à ce scénario, et comment expliquer à nouveau les apparitions/disparitions corrélées de satellites ? A nouveau, que dire de l'aimantation du pic associé à la phase A ? Ces divers points semblent inexplicables sur la base de ce modèle.

Pour conclure sur ces espaces libres pouvant être présents dans la cellule expérimentale, afin d'être exhaustif il nous faut envisager l'explication suivante : les différents pics satellites correspondent à différentes zones de la cellule. Nous avons conservé cette possibilité pour la fin de notre discussion, car elle n'affecte en rien les principaux points détaillés ci-dessus et ne fait que compliquer l'argumentation.

Nous nous acheminons donc vers la troisième possibilité : des assemblées de spins aux propriétés superfluides dans l'environnement constitué de " phase intermédiaire ". De telles entités seraient en nombre macroscopique, ou de taille macroscopique, afin de fournir le signal de 17 % de liquide que nous détectons.

Ces entités seraient des défauts topologiques, générés au passage au travers de $T_{C,b}$, lors du refroidissement nécessairement rapide de la cellule expérimentale. Rapide signifie : " rapide comparé au temps nécessaire à l'interconnexion (par le superfluide) des cavités de l'aérogel ". Un tel mécanisme, venant des travaux en cosmologie, est connu sous le nom de mécanisme de Kibble (Kibble [166] 1976, modifié par Zurek [167] 1985).

Expliquons rapidement ce processus, dans le cadre dans la transition superfluide de l' ^3He massif. Différentes régions de la cellule expérimentale passent dans l'état superfluide. Cette transition est une trempe suffisamment rapide pour que chaque zone, indépendante des autres, ait son propre paramètre d'ordre $A_{\mu\nu}$. Alors que la superfluidité croît, ces zones vont entrer en contact. Les zones de contact entre ces différents $A_{\mu\nu}$ vont créer des défauts topologiques, tout comme la croissance d'un cristal de glace dans les mêmes conditions donnerait lieu à un ensemble de mâcles. Les mâcles sont des défauts bidimensionnels, pour l' ^3He il se forme un ensemble interconnecté de défauts unidimensionnels, des vortex (sous-section 10.1.2).

Ce mécanisme, appliqué à l'espace-temps lui-même, pourrait avoir joué un rôle majeur dans la physique de l'Univers à ses premiers instants. La similitude entre les symétries de l' ^3He et celles de l'Univers est presque parfaite, une chance qui a donné lieu aux expériences de Grenoble-Lancaster (Bäuerle et al. [168] 1996) et Helsinki (Ruutu et al. [169] 1996).

Dans le cas de l'aérogel, la superfluidité macroscopique n'apparaît pas à $T_{C,b}$. En revanche, quelque chose se passe lorsque l'on entre dans la phase " intermédiaire ". La possibilité que nous envisageons est la formation de paires de Cooper, et donc d'un paramètre d'ordre, sans condensation de ces paires (idée originale de Nozières et Saint James [171] 1982). La valeur moyenne du paramètre d'ordre demeure nulle, mais ses fluctuations ne le sont pas ; dans ces conditions des défauts topologiques peuvent se créer, comme dans le cadre d'une transition de type Kosterlitz-Thouless (voir la discussion de Lévy [217], par exemple, et l'introduction qui y est donnée en section 7.8). Une explication corollaire à celle-ci serait la " semi-superfluidité " de l' ^3He confiné : seule la cohérence de phase serait perdue dans la phase " intermédiaire ", la cohérence dans les espaces de spin et d'orbite serait elle maintenue (Volovik [143], Bunkov et al. [145] 2000).

L'absence de réelle superfluidité, sur l'ensemble de l'échantillon, valide automatiquement l'hypothèse de non-connexion de certaines zones de l'échantillon. En ce sens, la présence de défauts topologiques piégés par la structure de silice devient presque incontournable⁴². A l'heure actuelle, les rares équipes disposant de moyens techniques autorisant l'étude de ces défauts topologiques sont le groupe d'Helsinki (voir par exemple Hakonen et al. [115] 1989, cryostat tournant), Lancaster (Bradley et al. [170] 1995, axé sur la cosmologie et la détection de particules⁴³), et le groupe de Grenoble. Récemment pour l' $^3\text{He-B}$, des mesures par fils vibrants semblent mettre en évidence l'extension spatiale d'une assemblée de vortex (Bradley et al. [172] 2001).

Dans le cas de nos mesures de RMN, la disparition/apparition des deux classes de pics satellites serait reliée à la présence de (au moins⁴⁴) deux types de défauts. Les propriétés des défauts topologiques sont différentes dans les phases A et B , ce qui explique de façon simple le changement de comportement du second satellite au-dessus de T_{AB} . Les aimantations de ces pics, qui pour ceux de première espèce suit assez bien la loi de la phase B , sont une signature de leur taille (qui visiblement se réduit à mesure que la température diminue). Enfin, les décalages en résonance, et les $F(A_{\mu\nu})$ que l'on peut en extraire, dépendent de la nature et de la dynamique de l'ensemble de ces défauts. D'ailleurs, il n'est pas nécessaire a priori qu'un seul chiffre $F(A_{\mu\nu})$ soit suffisant à leur description, ce qui rendrait compte de nos résultats sur le satellite de seconde espèce⁴⁵.

⁴²La question : " y a-t-il réellement des défauts topologiques dans l' ^3He confiné dans l'aérogel ? " se réduit alors à une discussion sur la stabilité (la durée de vie) de ces défauts, suivant leur nature.

⁴³L'aspect détection de particules est discuté brièvement en chapitre 5, sur la base de nos travaux concernant les fils vibrants.

⁴⁴La présence du troisième pic satellite, par certains aspects similaire au premier, pourrait être la signature d'un autre type de défauts, stable uniquement à haute pression très près de $T_{C,b}$.

⁴⁵Dans l'expérience de Hakonen et al. [115] 1989, les auteurs détectent la présence d'un soliton. Leur cellule admet un spectre RMN " flare-out ", dont le front le plus décalé de Larmor correspond à $F(A_{\mu\nu}) \approx 0,6$. Au-delà de ce front, ils mesurent un pic supplémentaire, à $F(A_{\mu\nu}) \approx 1$ (valeur maximale atteignable).

La reproductibilité, dans une certaine mesure, de nos résultats, n'est alors qu'un effet de moyenne sur l'ensemble des défauts du système. De même, l'insensibilité au (faible) dopage en ^4He , qui n'affecte que les couches solides, est tout à fait normale pour ce scénario.

Il ne nous a pas été possible de pousser plus avant l'analyse que nous présentons ici, par manque d'outils théoriques, mais surtout de temps. Nous avons néanmoins montré la pertinence de cette approche, inédite pour l'aérogel, et espérons que des développements futurs dans cette direction permettront de clarifier les résultats expérimentaux. Entre autres, certains résultats obtenus dans la phase superfluide peuvent être compris également sur la base de ce scénario.

11.4 Phase superfluide

Pour les pressions supérieures à 5 bar environ pour notre échantillon, l' ^3He confiné dans l'aérogel devient superfluide au-dessous d'une température $T_{C,a}$. Nous avons mesuré le signal d'absorption en RMN continue, dans la limite des faibles injections de radiofréquence⁴⁶ (chapitres 3, et 4). Cette transition se repère facilement par un décalage du pic RMN principal, et par son élargissement. Insistons de suite sur la reproductibilité de ces résultats (à une dispersion raisonnable des données près), la transition est bien définie, à l'échelle macroscopique, malgré le désordre introduit par l'aérogel. C'est ce qui autorise certains auteurs à parler d'impuretés diluées dans l' ^3He , et de superfluide " sale " (par analogie au cas des supraconducteurs).

L'une des grandes questions, qui a reçu dans la littérature des réponses contraires (voir par exemple Sprague et al. [129] 1995, et Alles et al. [142] 1999), est la nature de cette phase superfluide. Cette information est, du moins en principe, inscrite dans ces décalages de résonance et largeurs RMN. En pratique, l'extraire demande de connaître à la fois l'amplitude du paramètre d'ordre (du gap) $\bar{\Delta}$, qui est réduit par rapport à sa valeur dans l' ^3He massif, mais également la texture présente dans la cellule expérimentale (via $F(A_{\mu\nu})$, sous-section 10.1.2). A moins de se lancer dans des hypothèses drastiques (texture uni-

Ce pic est la signature d'un soliton, qu'ils peuvent détruire par l'accélération/décélération de leur cryostat.

⁴⁶ Aucune saturation, ou déformation du signal n'a pu être observée dans ces conditions. Même dans le cas ^3He dopé en ^4He (sans couches magnétiques), aucun effet du type présenté en section 11.2, relié à l'existence de temps de relaxation T_1 et T_2 , n'a été observé, ce qui est encore une signature de la superfluidité. Néanmoins aux fortes injections RMN continues, dans de forts gradients, nous avons observé un signal de type HPD (Homogeneously Precessing Domain, lié aux supercourants de spin) prenant son origine au sein de l'aérogel. Il a également été observé en RMN pulsée. La destruction du décalage superfluide de la résonance, rapporté par Sprague et al. [129] 1995 pour les fortes puissances, a également été qualitativement observée sur l'une de nos mesures pulsées. Ces résultats demandent néanmoins des confirmations quantitatives, via de nouvelles expériences.

forme inchangée par rapport à l' ^3He massif, par exemple), dont nous montrons ici qu'elles n'ont rien d'évident, il est évidemment impossible d'obtenir ces deux types d'informations simultanément.

L'information sur le type de phases superfluides stabilisé dans l'aérogel est également présente dans l'aimantation du liquide. En effet, pour l' ^3He massif, l'aimantation de la phase A est constante, et celle de la phase B décroît (sous-section 10.1.2).

Nous présentons en fig. 11.35 l'aimantation du liquide, au-dessous de $T_{C,a}$, mesurée pour différents taux en ^4He . Dans les deux cas, nous obtenons une nette décroissance de l'aimantation au-dessous de $T_{C,a}$, marquant l'existence d'une phase superfluide " de type B ". De plus, à 17 bar (basse pression, où dans l' ^3He massif la phase A n'est pas stable

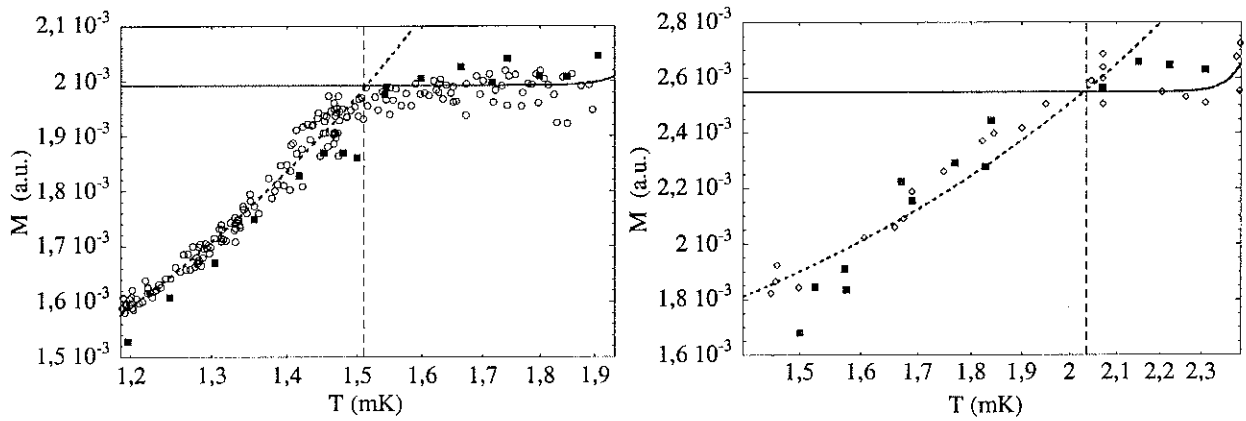


FIG. 11.35: Aimantation du liquide superfluide confiné, sur E4 dans 37,3 mT. A gauche, mesures à 17 bar : lorsqu'il ne reste que 21 % de solide magnétique ($\circ$), et lorsque tout l' ^3He adsorbé a été remplacé par de l' ^4He ($\blacksquare$). A droite, mesures à 29,5 bar : avant dopage en ^4He ($\circ$), puis lorsqu'il ne reste que 8 % du solide magnétique ($\blacksquare$). Pour toutes ces mesures, les contributions solides en $C/(T-\Theta_W)$, si elles étaient présentes, ont été soustraites des données brutes pour obtenir ces courbes. Toutes ces mesures ont été réalisées en réchauffant lentement le cryostat depuis sa température de base. La ligne pleine correspond à l'ajustement empirique, dans la phase " intermédiaire ", de la perte de 17 % du signal liquide, présenté en section 11.3. La ligne pointillée est un ajustement polynomial empirique, guide pour les yeux (il est explicité dans la suite du manuscrit). La verticale pointillée marque $T_{C,a}$. Les barres d'erreur, non représentées, sont de l'ordre de 2,5 % sur la température, de l'ordre de 2 % pour l'aimantation à 17 bar et 5 % sur l'aimantation à 29,5 bar.

en faible champ), tout comme aux plus fortes pressions étudiées (29,5 bar, où dans l' ^3He massif la phase A est stabilisée), nous obtenons le même résultat.

Pourquoi donc autant de discussions sur ce point dans la littérature, alors que cette mesure ne souffre pas des ambiguïtés du décalage en résonance ? Pour plusieurs raisons. D'abord, concernant le cas ^3He pur, nous l'avons déjà dit la soustraction de la composante en $C/(T-\Theta_W)$ demande une précision sur M et T de l'ordre du %, si l'on ne veut pas trop perdre en résolution au niveau du liquide, et s'il on veut réaliser le meilleur ajustement du

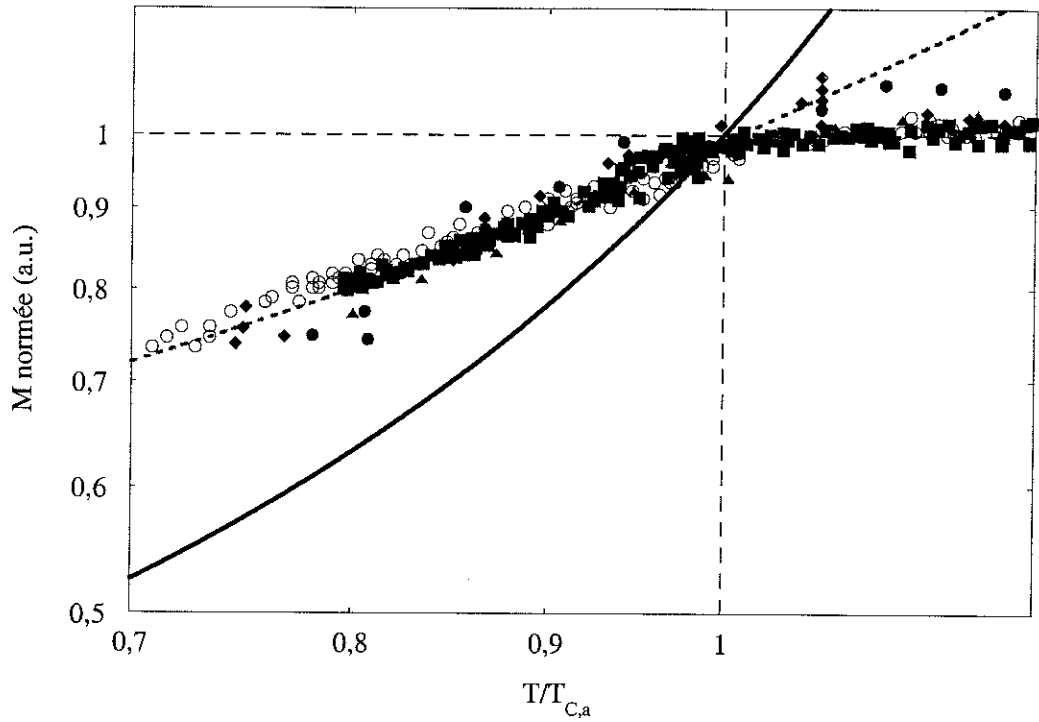


FIG. 11.36: Aimantation normée, en fonction de $T/T_{C,a}$ (le point (1 : 1) du graphique est la référence). ■ : nos données, 17 bar, 21 % d' ^3He solide. ▲ : nos données, 17 bar, 0 % d' ^3He solide. ● : nos données, 29,5 bar, 100 % d' ^3He solide. ◆ : nos données, 29,5 bar, 8 % d' ^3He solide. ○ : données de Haard [208] 2001 à 18,7 bar, 0 % d' ^3He solide. Nos données sont prises sur l'échantillon E4 de Grenoble, dans 37,3 mT. L'échantillon de Northwestern a été mesuré dans 147,5 mT. La ligne pleine représente l'ajustement correspondant à la phase B de l' ^3He massif. Pour information, nous utilisons l'approximation de la fonction de Yoshida proposée par Carless et al. [178] 1983 : $Y_0(t) = \frac{1}{\sqrt{t}} e^{-1.76388/t} (3,454 - 0,88t + 4,625t^2 - 1,367t^3)$ si $t = T/T_C$, valable à 0,5 % près. Nous négligeons les corrections de couplage fort, et prenons simplement $F_0^a \approx -3/4$ (ce qui est suffisant pour cette comparaison simple). La ligne pointillée est un ajustement polynomial empirique d'équation $0,4300 + 0,06825x + 0,49258x^2$. Les barres d'erreur (non représentées) sont du même ordre que pour le graphique précédent.

solide possible. A notre connaissance, nos données sont les seules dans leur genre.

Pour le cas où les couches d' ^3He solides ont été remplacées par de l' ^4He , d'autres groupes sont arrivés à la même conclusion que la nôtre (Barker et al. [173] 2000, et Sprague et al. [135] 1996, nous revenons sur la position particulière de ces derniers auteurs).

En fig. 11.36, nous représentons nos mesures d'aimantation du liquide à différentes pressions, ainsi que celle du groupe de Northwestern (reprise sur Haard [208] 2001). Toutes ces données sont normées en (1 : 1). A notre résolution près, sur la gamme de température où se recouvrent toutes ces données, le recalage est tout à fait raisonnable. Force est donc de constater que, au premier ordre du moins, toutes ces courbes sont universelles en échelle de $T/T_{C,a}$.

Sur cette fig. 11.36, sont également représentés deux ajustement. Celui correspondant à la phase B de l' ^3He massif passe largement au-dessous de nos données. Le deuxième ajuste-

ment est empirique, et de décroissance bien moins prononcée aux plus basses températures.

A ce point de notre discussion, il nous faut commenter la position très particulière du groupe de Northwestern, exposée dans Halperin et al. [164] 1996. Selon ces auteurs, la phase stabilisée en ^3He pur est de type *A* (ESP), et celle après remplacement des couches magnétiques solides par de l' ^4He est de type *B* (non-ESP). La raison physique invoquée, est la stabilisation de phases différentes par le changement de nature de l'interaction, sur les surfaces, entre le liquide et le réseau de silice (magnétique/non-magnétique). Ce point de vue les pousse à comparer l'ensemble de leur résultats en ^3He pur au cas de l' ^3He -*A*, la preuve expérimentale invoquée par les auteurs étant l'ajustement de l'aimantation totale du système ($M_{\text{liquide}}(T) + M_{\text{solide}}(T)$) par une simple loi $M_0 + C/(T - \Theta_W)$ (point de vue repris par Barker et al. [146] 1998). Pour donner tout son poids à cette démonstration, Sprague et al. [129] 1995 et Haard [208] 2001 montrent l'allure que devrait avoir l'aimantation si la phase superfluide stabilisée avait la même décroissance de l'aimantation que celle de l' ^3He -*B*.

Cette approche est inconsistante. En effet, la vraie décroissance de l'aimantation du liquide, mesurée également par les membres du groupe de Northwestern, est bien moins prononcée que celle de l' ^3He -*B*. Si l'on ajuste l'aimantation du liquide sur toute la gamme de température, au-dessous de $T_{C,a}$ à l'aide du polynôme empirique, dans la phase "intermédiaire" à l'aide de la perte d'aimantation de la section 11.3, et au-dessus de $T_{C,b}$ à l'aide de la valeur de l'aimantation (constante jusqu'à 60 mK) du liquide de Fermi (section 11.2), et que l'on ajoute à cette loi l'aimantation du solide en $C/(T - \Theta_W)$ ajustée au-dessus de $T_{C,a}$, nous obtenons le résultat présenté en fig. 11.37. Le comportement des satellites est négligé ici.

Ce résultat ajuste parfaitement nos données en ^3He pur (ligne pleine), bien que notre résolution sur ces mesures particulières ne nous permette pas de remonter, par soustraction de l'aimantation solide, à l'aimantation liquide. Ce cas est exactement la situation expérimentale des autres groupes étudiant l' ^3He confiné dans l'aérogel. En encart, nous montrons un agrandissement de cette courbe dans la zone $T_{C,a} - T_{C,b}$. Les oscillations générées d'une part, par la perte de 17 % d'aimantation liquide dans la phase "intermédiaire" (pour la raie RMN principale), et d'autre part par la décroissance de l'aimantation du superfluide, sont presque invisibles. D'ailleurs, il est parfaitement possible d'ajuster cette courbe par une simple loi $M_0 + C/(T - \Theta_W)$ qui masquera tout effet (ligne pointillée, fig. 11.37).

Nous concluons donc que la phase superfluide stabilisée dans l'aérogel, pour toute notre gamme de pressions, à bas champ magnétique, est toujours de type *B*. Nous rejetons la

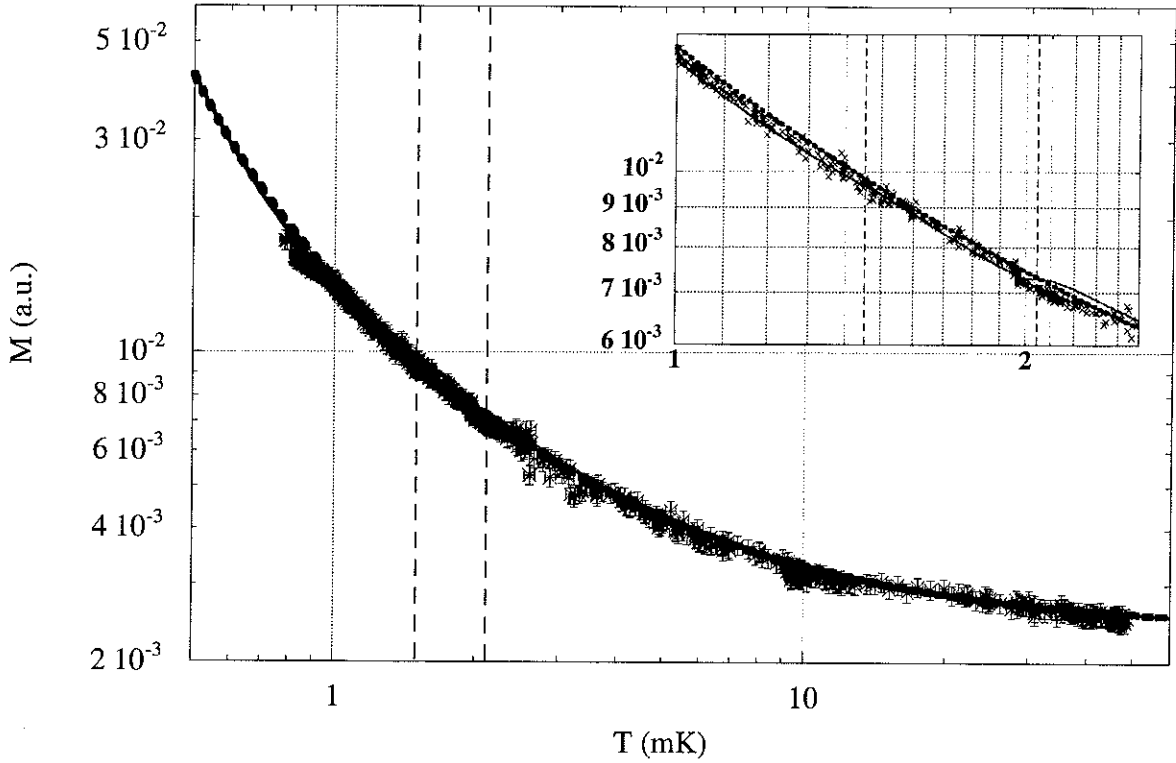


FIG. 11.37: Aimantation mesurée sur E4, dans 37,3 mT, pour le cas ^3He pur. La ligne pleine est obtenue en ajustant, empiriquement, le comportement du liquide seul mesuré en ^4He , puis en y ajoutant la loi obtenue pour le solide en ^3He pur (ajustée au-dessus de $T_{C,a}$). En encart, agrandissement dans la zone en température où l'aimantation du liquide marque des anomalies (en $T_{C,a}$ et $T_{C,b}$). Il est tout à fait possible d'ajuster ces données par une simple loi $M_0 + C/(T - \Theta_W)$ (ligne pointillée), en oubliant le comportement du liquide. Le paramètre M_0 est identique à celui de l'analyse correcte, C est sous-estimé de seulement environ 5%, et Θ_W reste dans nos barres d'erreur de $\pm 20\%$ environ. Les verticales pointillées représentent $T_{C,a}$ et $T_{C,b}$. Les barres d'erreur représentées ne sont que de 2,5% pour T , et 5% pour M . Elles sont plus grandes à plus hautes températures, et le léger désaccord entre mesure et ajustement (trait plein) près de $T_{C,b}$ est attribué au pic satellite. L'aimantation de ces pics est simplement négligée dans la présente discussion.

possibilité d'une transition de A à B , qui à notre sens n'est qu'un artefact de l'analyse de données effectuée. Nous étudions dans la suite les propriétés particulières de cette phase de type B .

11.4.1 Particularités de la transition

La transition superfluide est bien définie, et reproductible, à notre résolution en température près (usuellement $\pm 2,5\%$). Cependant, nous lui attribuons certaines particularités, qui peuvent expliquer en partie la dispersion légèrement supérieure obtenue sur certaines données.

Rappelons que pour obtenir nos résultats, nous refroidissons le cryostat puis mesurons en réchauffement les raies d'absorption RMN de l' ^3He confiné. Le ballast thermique, au-dessus de l'échantillon d'aérogel, atteignait dans nos expériences des températures de l'ordre de $300\ \mu\text{K}$.

Il est fait référence dans la littérature de légers décalages en résonance positifs en champ, juste au-dessus de $T_{C,a}$ (Barker et al. [173] 2000, Haard [208] 2001). Nous avons également remarqué cet effet, qui n'est pas systématique. Il semble accompagné d'un léger rétrécissement de la raie RMN.

Plus spectaculaire encore, la transition $T_{C,a}$ exhibe un comportement hystérétique entre refroidissement réchauffement. Nous montrons en fig. 11.38 nos mesures en ^3He pur à 24,8 bar concernant cet effet. Suivant notre procédure usuelle, nous avons réchauffé lentement le système jusque dans la phase normale (légèrement au-dessus de $T_{C,b}$). Ce chauffage s'est effectué localement au niveau du ballast thermique à l'aide d'un second fil vibrant de tantale, que nous excitons à forts courants. De là, nous avons coupé ce chauffage, et laissé l'étage à désaimantation nucléaire refroidir à nouveau le système. Nous constatons que le décalage en résonance, caractéristique de la transition vers la phase superfluide de type B stabilisée dans l'aérogel, apparaît plus bas en température.

Un résultat similaire est reporté par Barker et al. [173] 2000, mais dans le cas ^3He dopé en ^4He à 32 bar. Ces auteurs affirment voir le même effet dans les mêmes conditions de dopage à 25 bar. Nos mesures sont originales vis-à-vis de celles-ci pour au moins deux raisons :

- Nous présentons donc les premières mesures de cet effet dans le cas ^3He pur. Celui-ci requiert une extrême sensibilité, atteinte par nos amplificateurs RMN.
- Dans notre cas, l'échelle de température est recalculée précisément via l'aimantation des couches adsorbées d' ^3He . Plus précisément, nous utilisons l'aimantation totale du système, et supposons simplement que le comportement des pics satellites est grossièrement reproductible⁴⁷. Ce thermomètre est directement à l'intérieur

⁴⁷En toute rigueur pour ces mesures, les pics satellites sont difficilement identifiables (trop faible injection RMN). Une autre série de données nous montre que ces pics satellites représentent ici de l'ordre de

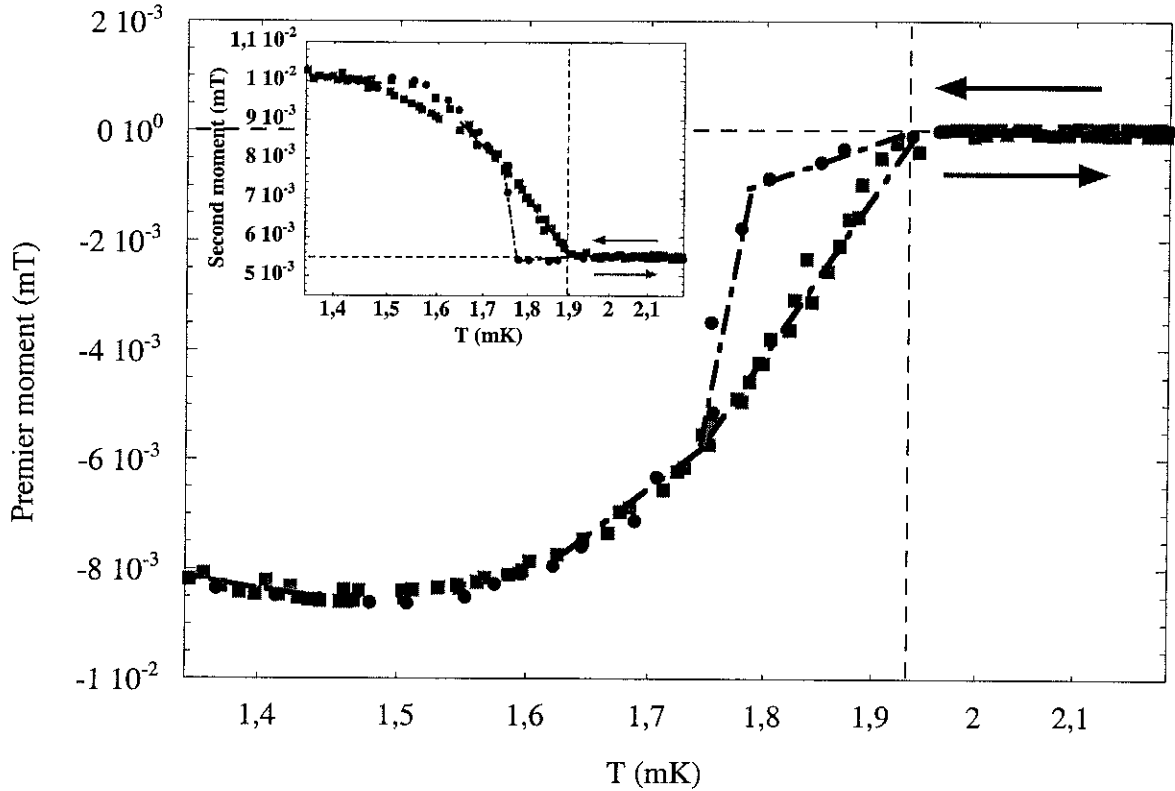


FIG. 11.38: Hystérésis de la transition superfluide, mesurée à 24,8 bar et 37,3 mT. Nous représentons, en fonction de la température, la position de la raie en réchauffement (■) depuis la température de base, et en refroidissement rapide (●). Réchauffement et refroidissement sont symbolisés par les flèches. Deux cycles de réchauffement sont représentés. Les détails techniques sont expliqués dans le texte, l'échelle de température est fournie par les couches adsorbées. En encart, mêmes données pour le second moment. La verticale pointillée est $T_{C,a}$ tel qu'il est mesuré au réchauffement, et les horizontales pointillées sont le champ de Larmor, et la largeur de raie en phase "intermédiaire" (zéros du graphique). Les droites tiretées sont des guides pour les yeux, marquant les tendances au refroidissement et au réchauffement. Notons l'anomalie dans la largeur de raie pour deux réchauffements différents.

de l'aérogel, et nous permet d'oublier la discussion sur le découplage thermique de l'échantillon vis-à-vis de notre thermomètre principal (le fil vibrant). La situation thermique de l'expérience de Barker et al. [173] 2000 est sur ce point bien moins claire.

Cet effet hystérétique, mis en valeur sur les données en fig. 11.38, se retrouve sur plusieurs mesures où nous avons acquis le signal RMN au cours de la désaimantation nucléaire. Le résultat est qualitativement le même, mais les mesures sont de moins bonne qualité (du fait de la distorsion de la raie, induite par le champ des bobines de désaimantation). Aussi,

5 % de l'aimantation totale au voisinage de $T_{C,a}$. Du fait de la très faible dispersion sur notre courbe, et de l'excellent accord entre chauffage et refroidissement dès que le comportement de type *B* est restauré, nous considérons que notre approche est suffisante.

il montre que le refroidissement du système est un processus rapide, comparé à l'échelle de temps nécessaire à l'établissement de la superfluidité dans l'aérogel.

Enfin, certaines mesures, où le cryostat ne descendait plus au-dessous de 1 mK montrent un comportement assez différent des précédents résultats : le décalage de la résonance est beaucoup plus faible, et semble suivre la loi correspondant au refroidissement rapide (fig. 11.38, ligne pointillée supérieure). Il semble que dans ces cas-ci, le système n'est jamais passé dans sa phase superfluide habituelle.

Barker et al. [173] 2000 concluent, de cet effet hystérétique et des légers décalages positifs en champ de la résonance au voisinage de $T_{C,a}$, à l'existence d'une faible fraction de phase de type A , présente même à des pressions aussi basses que 12 bar pour 28,4 mT. Ils font simplement l'analogie avec le surrefroidissement qu'exhibe la transition $A - B$ dans l' ^3He massif, lorsqu'on abaisse la température.

Cette proposition est assez hardie. Il pourrait tout aussi bien s'agir d'une propriété intrinsèque à la phase "intermédiaire", et des défauts topologiques que nous lui attribuons.

11.4.2 Champs de résonance et texture

Nous avons vu que les propriétés du liquide normal et du solide correspondaient à la limite des champs magnétiques faibles (section 11.2). Il convient de vérifier que nous nous trouvons également dans cette limite pour le superfluide, à savoir vérifier que la relation (10.2) de la section 10.1.2, soit $b_{\perp} = B_{\mathcal{L}} - F(A_{\mu\nu})\frac{(\Omega_X/\gamma)^2}{2B_{\mathcal{L}}}$, s'applique effectivement. En toute rigueur, cette vérification n'a jamais été rapportée pour un même échantillon, et la dispersion sur les résultats des différents groupes ne permettait pas jusqu'à présent de conclure.

Pour cette raison, nous avons effectué sur E4 des mesures de RMN dans deux champs magnétiques différents : 37,3 mT, et 17,3 mT. Nous montrons ces résultats en fig. 11.39 pour deux pressions de référence. Les données bas champ ont été recalées sur les données fort champ, conformément à la relation (10.2). Afin de nous affranchir des problèmes de découplage thermique aux plus basses températures, l'échelle en T est donnée par l'aimantation des couches d' ^3He adsorbé. Cette échelle de température est utilisée systématiquement dans la suite pour les températures inférieures à 750 μK . A la dispersion près de nos données⁴⁸ (élevée pour les champs faibles), aucune différence n'est observée qui pourrait être due au champ magnétique, aussi bien pour la position moyenne de la

⁴⁸Des anomalies pourraient être vues dans la courbe du décalage de résonance. Ce point est discuté dans la suite.

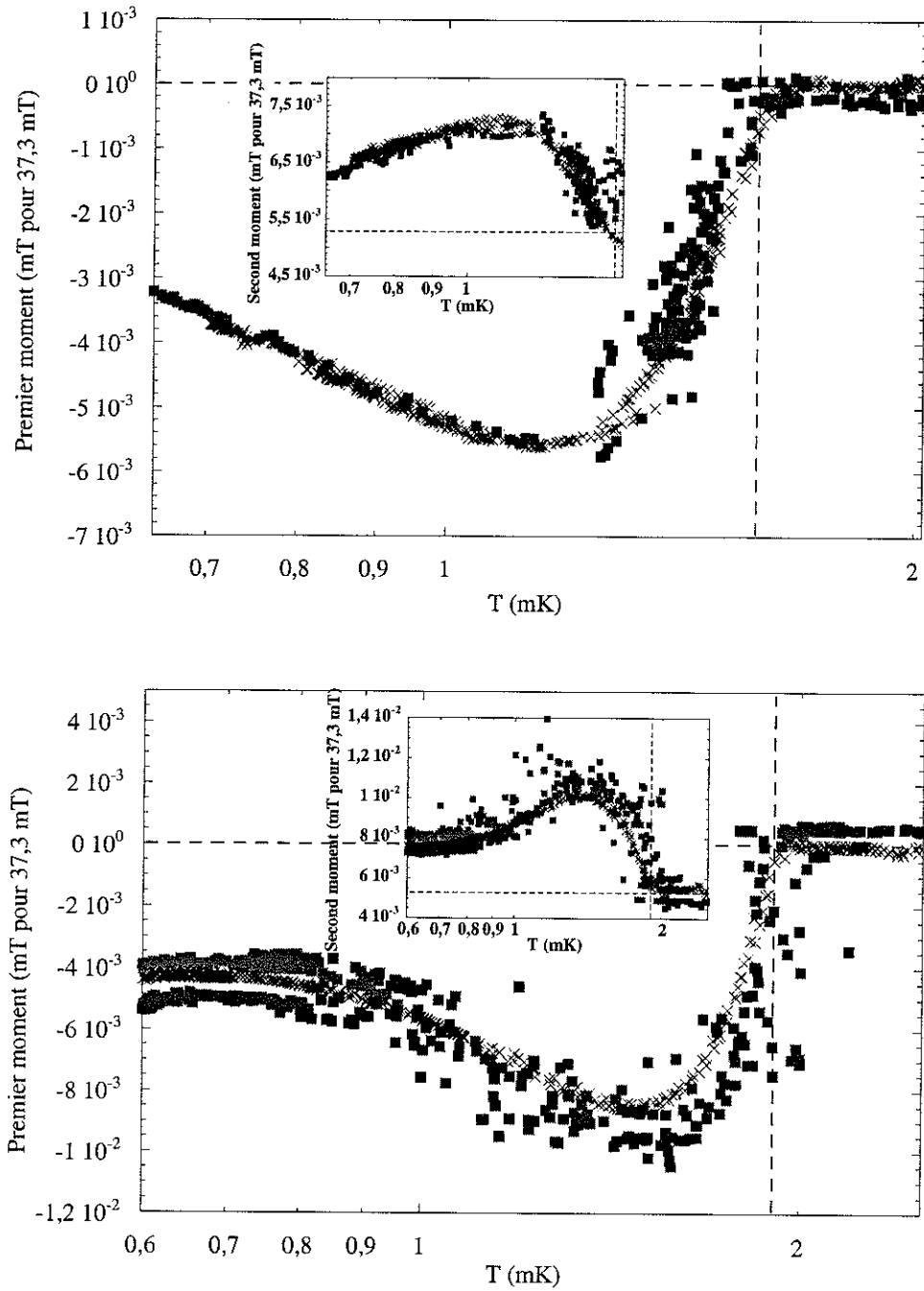


FIG. 11.39: Paramètres RMN tirés de l'absorption. En haut, données acquises à 17 bar sur E4, en bas données à 24,8 bar. Nous représentons le premier moment, en fonction de la température (échelle recalculée par l'aimantation des couches solides, pour s'affranchir de la saturation thermique au-dessous de $750 \mu\text{K}$). En encart, mêmes conditions pour le second moment. Les données bas champ ($\blacksquare$, 17,3 mT) ont été recalées sur les données fort champ ($\times$, 37,3 mT), conformément à la relation (10.2). Les barres d'erreur, non représentées, sont fortement augmentées à bas champ (nous perdons un facteur 45 sur la sensibilité). L'horizontale pointillée représente le champ de Larmor (en encart la largeur pour la zone "intermédiaire", dans le meilleur gradient), et la verticale pointillée $T_{C,a}$. En toute rigueur, la largeur RMN en zone "intermédiaire" à bas champ a été recalée sur les mesures fort champ, car l'homogénéité du champ magnétique sur la cellule expérimentale n'était pas aussi bonne. La courbe complète est discutée à nouveau à la fin de cette section.

raie (premier moment), que pour sa largeur (second moment). Ceci est vrai que l'on soit au-dessous de 22 bar, ou au-dessus (où dans l' ^3He massif, la phase A est stable). Nous concluons donc que nous nous trouvons effectivement dans la limite des champs faibles, visiblement pour toute pression. Au passage, notons que ces résultats valident également la reproductibilité des mesures⁴⁹. La texture du paramètre d'ordre générée au sein de l'aérogel n'est pas sensible à l'amplitude du champ magnétique. Cependant, sa direction est essentielle à l'établissement cette texture : malgré l'aérogel, l' ^3He "détecte" la direction du champ (expérience de Barker et al. [146] 1998 pour 28,4 mT). Notons que compte tenu des longueurs caractéristiques $\xi_A^{\vec{B}}$ et $\xi_B^{\vec{B}}$ attachées au champ magnétique⁵⁰, comparées à l'orientation forcée par les surfaces, une telle influence ne peut être qu'une signature d'une phase de type B .

Dans la phase normale, l' ^3He adsorbé est en échange rapide avec le liquide (section 11.2). En revanche, les propriétés de la phase intermédiaire sont sur ce point surprenantes ("blocage" de la largeur de raie, section 11.3). L'hypothèse d'échange rapide dans le superfluide, utilisée par tous les auteurs, demande donc également à être vérifiée.

En fig. 11.40, nous présentons nos résultats RMN pour différents dopages en ^4He . Les premier et second moments du liquide sont recalculés en supposant que nous sommes dans la limite de l'échange rapide, et que les équations (11.2) et (11.3) s'appliquent (respectivement $b = \frac{M_{\text{solide}} b_{\text{solide}} + M_{\text{liquide}} b_{\text{liquide}}}{M_{\text{solide}} + M_{\text{liquide}}}$ et $\Delta b = \frac{M_{\text{solide}} \Delta b_{\text{solide}} + M_{\text{liquide}} \Delta b_{\text{liquide}}}{M_{\text{solide}} + M_{\text{liquide}}}$). L'échelle de température est donnée par le fil vibrant, mais ne descend malheureusement pas très bas en température, les conditions expérimentales étant moins favorables après l'adjonction d' ^4He . Néanmoins, la superposition des données est tout à fait raisonnable, dans nos barres d'erreur. Il semble néanmoins qu'il puisse exister une structure fine complexe dans ces courbes, qui n'est visiblement pas parfaitement reproductible. La tendance générale, elle, l'est parfaitement.

Nous concluons donc que le liquide superfluide et le solide sont effectivement en échange rapide. Malgré les travaux de différents groupes en ^3He pur et en ^3He dopé en ^4He , ce résultat n'a jamais été mis en avant aussi clairement, l'une des raisons pouvant être la mauvaise résolution sur la quantité exacte de solide adsorbé.

⁴⁹En toute rigueur, cette reproductibilité des résultats est claire pour toutes nos mesures où le cryostat a été amené aux températures les plus basses (ballast thermique au-dessous de 300 μK). En revanche, des comportements erratiques ont été observés lorsque le réfrigérateur n'atteignait plus que le mK, ce point a été cité dans la discussion concernant l'hystérésis de la transition.

⁵⁰Ces longueurs $\xi_A^{\vec{B}}$ et $\xi_B^{\vec{B}}$ sont introduites en sous-section 10.1.2. Leurs valeurs numériques dépendent directement de T_C , et sont donc du même ordre dans l' ^3He massif et l' ^3He confiné dans l'aérogel pour les pressions élevées (où la réduction $T_{C,a}/T_{C,b}$ est de l'ordre de 0,5). Pour la phase A , il s'agit de μm , et pour la phase B de mm. Pour la phase A , les surfaces fixent le vecteur $\vec{l}$ orthogonalement à elles, alors que dans la phase B la tendance est plus molle (sous-section 10.1.2).

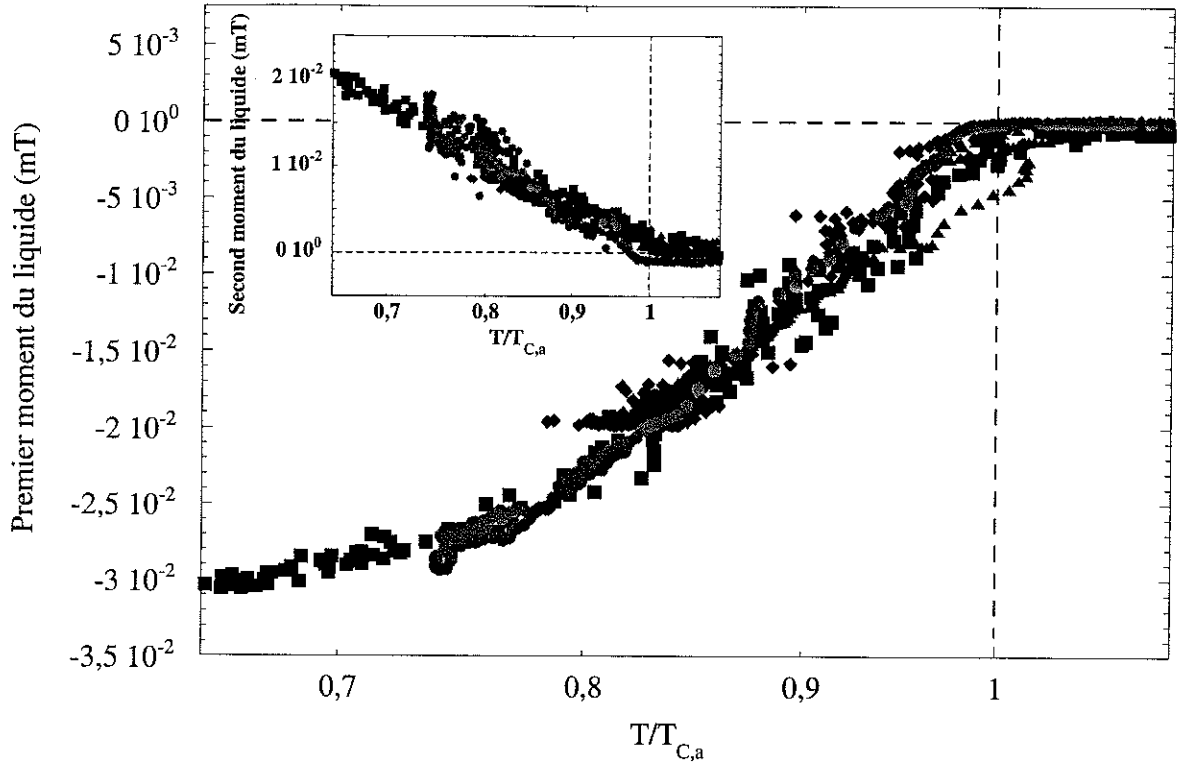


FIG. 11.40: Nos données RMN sur E4 dans 37,3 mT, à 17 bar. Nous représentons les premiers et second moment (en encart), en fonction de $T/T_{C,a}$, pour différentes quantités d' ^4He : ■ : cas ^3He pur. ♦ : 73 % du solide magnétique est présent. ▲ : 21 % du solide magnétique est présent. ● : il n'y a plus d' ^3He adsorbé. L'horizontale pointillée représente le champ de Larmor B_L (en encart la largeur du liquide dans le meilleur gradient), la verticale pointillée marque la transition. Ce graphique en $T/T_{C,a}$ permet de s'affranchir des possibles légères erreurs de définition de $T_{C,a}$.

11.4.3 Particularités de la phase superfluide

Nous avons montré que la phase superfluide stabilisée est de type B , pour toute pression semble-t-il, que nous nous trouvons dans la limite des faibles champs et que le solide magnétique adsorbé et le liquide sont en échange rapide. Cependant, l'exploitation des décalages en résonance, pour remonter à la suppression du paramètre d'ordre (du gap) de cette phase, n'est pas si simple. En fig. 11.41, nous comparons les décalages de résonance mesurés sur différents échantillons similaires, en ^3He pur. Les données sont recalées sur le champ de 37,3 mT, et l'axe des abscisses est en $T/T_{C,a}$. Cette normalisation de la température permet de s'affranchir des légères différences dans la détermination de ce paramètre.

Nous avons vu que les quatre échantillons de la fig. 11.41, de porosité 98 % (à $\pm 0,5$ % près), sont presque identiques : leurs températures de transition $T_{C,a}$ ne diffèrent, pour les pressions étudiées, de pas plus de 20 % dans les cas les plus extrêmes, leurs proportions de

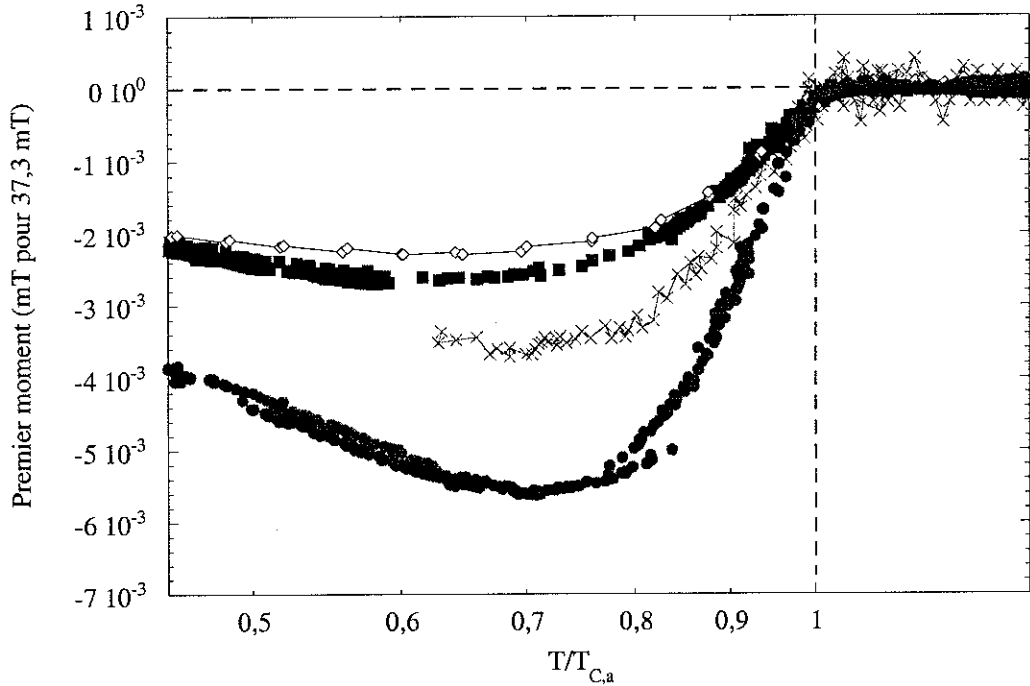


FIG. 11.41: Comparaison du décalage de résonance RMN pour différents échantillons, considérés jusqu'ici comme similaires. Ces données de premier moment ont été recalées sur le champ magnétique de 37,3 mT, elles sont représentées en échelle de $T/T_{C,a}$, afin de s'affranchir de la définition de $T_{C,a}$. $\diamond$: E2 (Chen [204] 1999) à 17 bar, champ de 31,3 mT. $\blacksquare$: E3 à 17 bar, champ de 37,4 mT. $\bullet$: E4 à 17 bar, champ de 37,3 mT. $\times$: échantillon de Northwestern (Haard [208] 2001) à 18,3 bar, champ de 111,7 mT. Notons que nos cellules sont des cylindres verticaux, alors que celle de Northwestern est un cylindre horizontal, le champ magnétique étant vertical dans les deux cas. La ligne verticale pointillée indique la référence $T = T_{C,a}$, l'horizontale pointillée désignant le champ de Larmor. Nous ne représentons pas le second moment, car il dépend directement de l'homogénéité du champ obtenu dans chaque expérience.

solide sont les mêmes (le rapport surface/volume est le même), avec un accord de l'ordre de quelques dizaines de % à nouveau (recalage pour 30 bar effectué en section 11.2), et les propriétés du solide (Θ_W) sont certainement équivalentes, car leur méthode de fabrication est également identique (même état de surface). Et pourtant, malgré la relative concordance des résultats obtenus sur E2, E3 et l'échantillon de Northwestern⁵¹, l'échantillon E4 possède un décalage de résonance environ deux fois supérieur aux autres.

Il est essentiel de noter qu'au moins E3 et E4 ont été mesurés dans exactement les mêmes conditions⁵² : même cryostat, même équipement (spectromètre RMN, bobines de champ,

⁵¹En toute rigueur, la pression présentée (données de Haard [208] 2001) est 1 bar supérieure à la nôtre. La courbe correspondant à 17 bar passe donc légèrement au-dessous de ces données, mais certainement pas plus d'une vingtaine de % à nouveau. Aussi, le champ magnétique correspondant est trois fois supérieur au nôtre et pourrait, du moins en principe, dépasser la limite des champs faibles (que nous n'avons vérifiée qu'au-dessous de 37,3 mT). Disons simplement qu'il est probable que nous nous trouvons largement dans cette limite, si l'on considère les ordres de grandeur introduits pour l' ^3He massif. Enfin, leur cellule cylindrique est orthogonale au champ, nous revenons sur ce point dans le texte.

⁵²Le champ magnétique utilisé était également identique, à mieux que le %. Notons qu'une erreur dans la calibration du thermomètre de E3 n'affecte en rien le résultat discuté ici (l'axe des ordonnées n'est pas

cellule expérimentale identique), et mêmes expérimentateurs ! Force est donc de conclure que, bien que l'ordre de grandeur du décalage en résonance observé soit toujours le même (réduit d'une part par l'aimantation du solide, relation (11.3), et par la suppression du paramètre d'ordre), sa valeur exacte peut varier fortement (alors que les autres paramètres sont presque identiques).

De deux choses l'une : soit la nature de la phase superfluide stabilisée pour E3 et E4 est tout simplement différente, ce qui étant donné la concordance des autres paramètres (entre autre $T_{C,a}$) est peu probable, soit la distribution de champ de résonance dans l'aérogel, donc la texture, est différente. Comment justifier alors de telles différences de texture ? L'analyse de Alles et al. [142] 1999 suppose d'ailleurs que la texture (dans leur cellule sphérique), est gouvernée par les mêmes considérations que dans l' ^3He massif.

Dans ces conditions, il nous faut à nouveau faire référence aux défauts topologiques que nous supposons présents dans l'aérogel. Ces défauts sont une déformation (topologiquement stable, sous-section 10.1.2) du paramètre d'ordre, leur moyennage sur l'ensemble de la cellule expérimentale donnant lieu, à notre sens, aux deux types de pics satellites observés, dont la plupart des propriétés sont reproductibles (sous-section 11.3.2). La raie RMN principale correspond alors à la texture de l' ^3He superfluide présente entre ces défauts, dont on peut imaginer qu'elle est assez tourmentée⁵³, et de structure imposée par ces défauts. Sa complexité, et ses détails, peuvent donc se justifier par l'assemblée de défauts topologiques (nous revenons sur ce point), et sa globale reproductibilité correspond simplement à la reproductibilité, au moins en moyenne, de cet ensemble de défauts.

Notons que selon Barker et al. [146] 1998, le spectre RMN change lorsque l'on tourne le champ magnétique (dans un champ de 28,4 mT, inférieur à notre champ élevé). Un certain alignement de la texture par le champ magnétique existe donc, preuve de la cohérence macroscopique, et la structure du réseau de défauts topologiques n'est pas simplement guidée par l'aérogel. On pourrait imaginer qu'ils s'alignent en partie avec le champ, et sont suffisamment souples pour le suivre (Barker et al. [146] 1998 ne note aucun effet hystérétique lorsque le champ est tourné, puis remis dans sa configuration initiale). Dans ces conditions, le relatif accord entre nos données sur E2 (ou E3) avec l'échantillon de Northwestern en fig. 11.41, alors que nos échantillons sont des cylindres parallèles aux champs et que le leur lui est orthogonal (la texture y est donc a priori différente), serait encore une marque de l'influence de l'aérogel sur la texture stabilisée.

affecté).

⁵³L'hypothèse est donc que pour chaque cavité où ces défauts topologiques sont piégés, leur nombre, leur taille, et leur distribution spatiale sont suffisants pour influencer l' ^3He qui y est confiné. Rappelons qu'ils représentent 17 % de la quantité totale de spins dans le liquide, un atome sur cinq environ est inclus dans un défaut topologique.

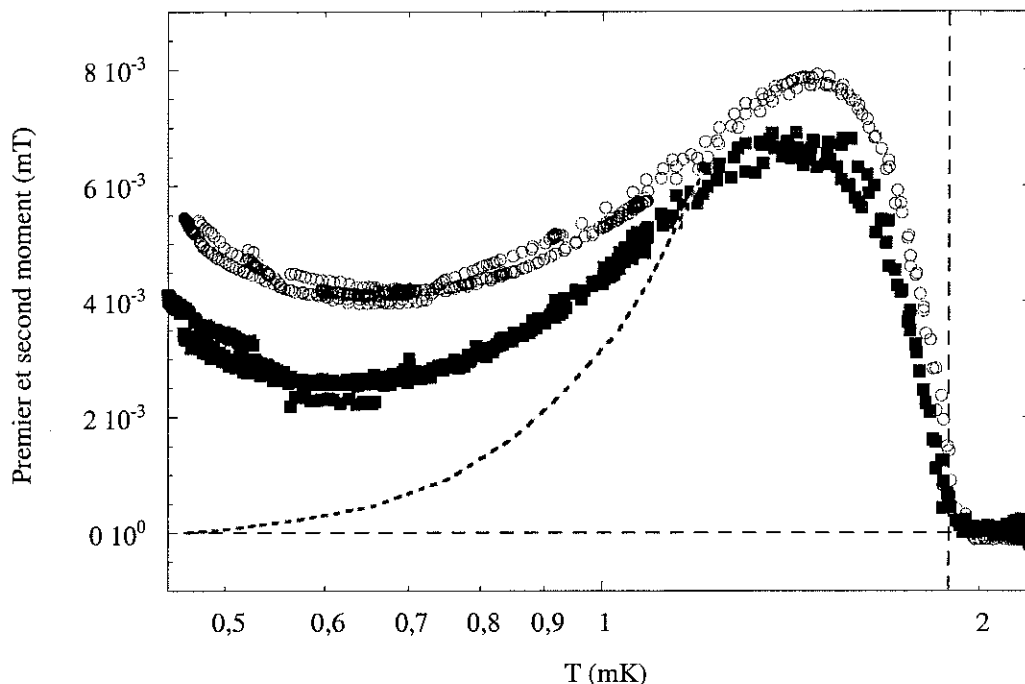


FIG. 11.42: Décalage du premier (○), et élargissement du second (■) moment de la raie RMN à 24,8 bar, obtenue pour 37,3 mT, en fonction de la température (calculée via l'aimantation du solide). L'homogénéité du champ est bien réglée, la raie RMN est fine et les deux grandeurs montrent le même comportement. Aux plus basses températures, nous notons une inversion de tendance, très mystérieuse au premier abord. Pour indication, la ligne pointillée est le comportement "standard" qui aurait été attendu. Ces points sont commentés dans le texte. L'horizontale pointillée représente le champ de Larmor, et la largeur de raie en phase "intermédiaire" (pris comme zéros). La verticale pointillée est $T_{C,a}$.

La texture au sein de l'aérogel est effectivement compliquée, donnant lieu à des signatures RMN particulières. Pour nos échantillons E2 et E4, et toutes pressions où la superfluidité est observée, aux plus basses températures, le décalage de la résonance se met à croître très rapidement (fig. 11.42). Ce résultat est surprenant. Dans la limite de l'échange rapide, selon (11.2), $b = \frac{M_{solide} b_{solide} + M_{liquide} b_{liquide}}{M_{solide} + M_{liquide}}$. Si le décalage $b_{liquide}$ de la phase superfluide est une fonction monotone qui ne change pas de concavité (comme pour l' ^3He massif), et si b_{solide} est simplement le champ de Larmor B_L , l'augmentation de l'aimantation du solide réduit, aux plus basses températures, le décalage en résonance de $b_{liquide}$ pour finalement atteindre $b \approx 0$, en ne montrant qu'un maximum (ligne pointillée en fig. 11.42).

Nous avons donc trois possibilités. Passons-les en revue afin de définir la solution la plus probable :

- La première hypothèse serait que liquide et solide ne sont plus en échange rapide au-dessous d'une certaine température. Nous n'avons vérifié expérimentalement

l'échange rapide qu'au-dessus de 1 mK. Un tel changement de comportement, entre 1 mK et 0,5 mK, serait néanmoins très surprenant.

- Considérons la deuxième possibilité : le solide se décale du champ de Larmor B_L , et cette tendance est la seule visible aux plus basses températures, du fait de la pondération par $M_{solide}(T)$. Il est difficile d'imaginer que le solide " ressent " le champ dipolaire du liquide, puisqu'il n'est pas supposé être cohérent avec le superfluide. De même, il est peu probable qu'il subisse une transition de phases vers un état ferromagnétique ou antiferromagnétique, qui comme pour l' ^3He solide massif aurait des propriétés de décalage en résonance (Osheroff et al. [174] 1980). En effet, une telle transition n'a jamais été observée pour l' ^3He adsorbé, même aux températures $T \ll \Theta_W$ (chapitre 8).

En revanche, il est connu pour les couches solides, que la polarisation P du film amène un décalage en résonance (section 4.3). Pour une couche dense, parallèle au champ magnétique, l'ordre de grandeur de ce décalage est $0,6 P \text{ mT}$ (section 7.6). Dans notre cas, la polarisation aux pressions intermédiaires, vers 0,5 mK, n'est que de l'ordre de 10 % au maximum. Ainsi, l'ordre de grandeur n'excède pas $6 \cdot 10^{-2} \text{ mT}$. Mais cette valeur est encore à diviser par un facteur d'au moins dix : la dépendance de ce champ dipolaire à l'orientation de la couche est $(1 - 3 \cos^2 \theta)$, où θ est l'angle entre la normale à la surface et le champ magnétique. Si la distribution de surfaces est isotrope, ce qui est raisonnable en première approximation pour l'aérogel, la moyenne de ces champs sur l'angle solide $d\Omega$ est nul : la raie s'élargit mais ne se décale pas. Si la distribution n'est pas parfaitement isotrope, on s'attend à une légère valeur non nulle, disons peut-être dix fois plus faible (donc environ $6 \cdot 10^{-3} \text{ mT}$ vers 0,5 mK). Cet ordre de grandeur correspond grossièrement à ce qui est vu fig. 11.42. Cependant, largeur et position de résonance suivent la même tendance : si cet effet était réellement dû au champ dipolaire du solide, la largeur devrait être bien supérieure au décalage en résonance. De plus, le sens de cette déviation n'aurait aucune raison d'être identique pour différents échantillons. La vérification non ambiguë de ce point aurait été une mesure à ultra-basses températures sans couches d' ^3He solide. Pour des raisons techniques, elle n'a pu être réalisée.

- Il nous faut donc discuter la dernière possibilité : cette forme compliquée est intrinsèque à $b_{liquide}$, décalage superfluide du liquide. Là encore, une tendance compliquée de ce type ne peut se justifier que par la texture présente dans la cellule.

En grande partie, l'échange rapide du liquide avec le solide lisse la raie de résonance, et ne laisse transparaître que ses tendances principales. A ce titre, il est intéressant de

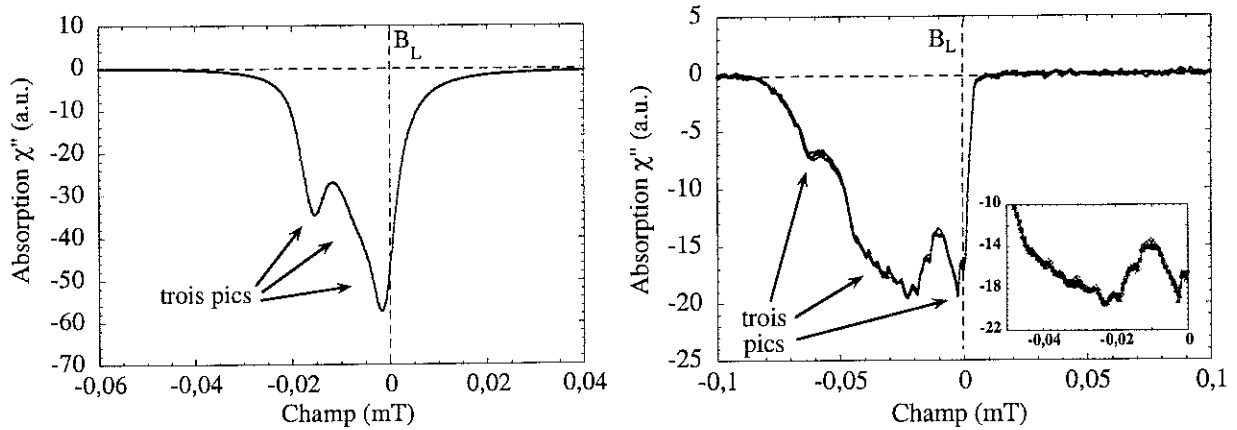


FIG. 11.43: Raies de résonance obtenues aux températures les plus basses atteintes, en ^3He pur et après addition d' ^4He (les couches magnétiques ont été complètement supprimées). Dans les deux cas, le champ est de 37,3 mT. Nous représentons l'absorption RMN χ'' en fonction du champ magnétique, elle a été normée à son aire. A gauche, raie à 24,8 bar en ^3He pur, à 450 μK . A droite, raie à 17 bar après remplacement des couches magnétiques par de l' ^4He (température de 1,20 mK). Nous présentons deux raies à faible injection RMN ($\diamond$, et $\triangle$, H_1 à $3,8 \cdot 10^{-9}$ T), et une raie à forte injection ($\blacksquare$, H_1 à $1,5 \cdot 10^{-8}$ T). La verticale pointillée représente Larmor (le zéro). Sur ces deux raies RMN, nous notons une forme en triple pic. Elle est caractéristique de la texture présente dans la cellule. Pour le cas où l' ^3He adsorbé a été remplacé par de l' ^4He , le second pic, au milieu de la raie, montre une structure complexe constituée d'une forêt de petits pics (agrandissement en encart).

comparer les raies RMN les plus froides que l'on ait pu obtenir en ^3He pur, et celles sans couches magnétiques adsorbées.

En fig. 11.43, nous montrons une telle comparaison. Dans le cas ^3He pur, malgré le moyennage par l'échange rapide, l'homogénéité du champ est telle que l'on distingue une forte distorsion de la raie RMN. Elle semble se composer d'au moins trois pics. Une forme complexe de ce type se retrouve sur les données sans couches d' ^3He adsorbées ; mais cette fois, en plus de trois bosses bien définies, toute une structure fine est discernable sur la raie d'absorption.

Si l'on étudie les raies RMN dans la gamme de température où se produit la remontée du décalage en résonance, on s'aperçoit qu'elle est due au troisième pic, dans le spectre, qui commence à sortir de l'ensemble de la raie aux plus bas champs. Même si nous n'avons pu réaliser la comparaison directe citée ci-dessus (même pression et température, avec et sans ^3He solide), l'analogie entre les spectres de la fig. 11.43 semble confirmer que l'effet discuté est produit par la texture du paramètre d'ordre.

La présence d'un pic au champ de Larmor, et d'un pic qui marque le front inférieur du décalage, rappelle les raies RMN de la texture "fiare-out" (on peut se référer à Hakonen et al. [115] 1989, par exemple). Cependant, la déformation de notre structure n'est pas homogène, comme dans le cas standard, puisque nous obtenons ce changement de tendance du premier moment aux plus basses températures (^3He pur, fig. 11.42). De plus, la structure

complexe présente entre les deux pics extrêmes (bosse en fig. 11.43, ^3He dopé en ^4He), ne se retrouve pas sur les raies RMN du cas standard. Cette forme de raie (en trois pics) est également rapportée par Halperin et al. [164] 1996, alors que leur cellule est orthogonale au champ magnétique, et donc n'est de toute façon pas supposée (dans le cas de l' ^3He massif) abriter une texture " flare-out ". Ce spectre tout particulier, bien qu'influencé par la direction du champ magnétique (Barker et al. [146] 1998), est avant tout une propriété de l' ^3He confiné dans l'aérogel.

Enfin, on distingue sur la bosse centrale (fig. 11.43, ^3He dopé en ^4He) une série de petits pics, dont l'origine est mal définie. Il pourrait s'agir d'ondes de spin, piégées par la texture complexe du paramètre d'ordre, elle-même piégée (sous la forme de défauts topologiques) par la structure de silice. Cette structure fine explique en partie la dispersion sur certains de nos graphiques ; remarquons que d'une raie RMN à l'autre elle n'est pas tout à fait reproductible (fig. 11.43 en encart).

Enfin, aucune dépendance particulière (hormis sur cette structure fine, dans le cas de l' ^3He dopé en ^4He) liée à la puissance radiofréquence n'a été décelée. Le groupe de Northwestern (Sprague et al. [129] 1995), en RMN pulsée à très forte puissance, rapporte la disparition du décalage de résonance superfluide pour une puissance critique donnée⁵⁴. Dans notre étude, nous demeurons bien en deçà de cette limite.

Nous pouvons mesurer la position de ces trois pics principaux en fonction de la température, dans le cas dopé en ^4He . Le résultat est présenté en fig. 11.44.

Sur ce graphique, nous remarquons que le premier pic reste au champ de Larmor. Le second pic se décale, et possède pour cette température le plus de poids spectral, puisque le premier moment de la raie lui correspond (c'est également ce qu'obtiennent Halperin et al. [164] 1996). Enfin, le troisième pic se décale plus rapidement, mais ne possède pas assez de poids, à haute température, pour influencer la position moyenne de la raie RMN. En revanche, le changement de comportement aux plus basses températures se comprend par une redistribution de ce poids spectral, depuis le pic central au pic se décalant le plus fortement (guide pointillé en fig. 11.44, que nous n'avons malheureusement pu confirmer expérimentalement).

Nous pouvons néanmoins recalculer l'équivalent d'une fréquence de Leggett Ω_X^2 pour le

⁵⁴En RMN pulsée, elle correspond à une déflexion ϕ de l'aimantation macroscopique d'un angle de 35° . Dans leur article, les auteurs montrent la loi correspondant au cas de l' $^3\text{He-A}$ pour comparaison (dépendance en $(1 + 3 \cos \phi)$ à l'angle ϕ de déflexion). Nous avons montré que la phase stabilisée dans l'aérogel est de type B , cette comparaison n'est donc pas pertinente. Pour l' $^3\text{He-B}$ massif, il n'y a aucun effet de la puissance jusqu'à un angle de déflexion de $\phi \approx 104^\circ$. Dans les barres d'erreur de ces auteurs, il est tout à fait possible de considérer que de 0° à 35° , le décalage en résonance est stable. L'effet obtenu à 35° , qu'il s'agisse de phase de type A ou B , est dans tous les cas surprenant. En toute rigueur, il est mesuré dans le cas ^3He pur, il est donc en principe possible que le solide adsorbé y joue un certain rôle.

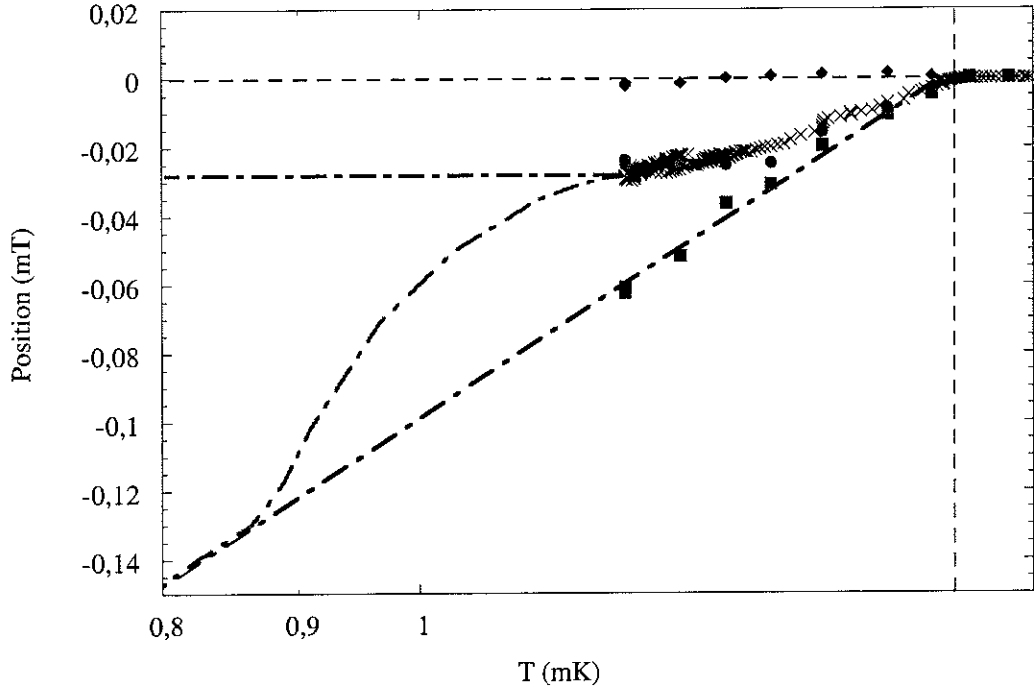


FIG. 11.44: Position des trois pics visibles sur les raies d'absorption RMN à 17 bar dans 37,3 mT, après retrait des couches magnétiques. Nous présentons, en fonction de la température, la position du premier pic qui semble rester au champ de Larmor (◆), du troisième pic qui se décale le plus rapidement (■, front du décalage superfluide), et enfin le second pic, large, se situant entre les deux précédents (dont nous repérons grossièrement le minimum, ●). Les symboles × représentent le premier moment de la raie, le guide pointillé représente le comportement basse température que nous attendons, d'après les arguments présentés dans le texte.

liquide, en oubliant cette structure compliquée (afin de suivre la démarche des autres groupes). Ce résultat est montré en fig. 11.45 pour 24,8 bar. Nous avons simplement pris $F(A_{\mu\nu}) = 1$.

Notons la forme compliquée de cette courbe, qu'il est évidemment impossible d'ajuster simplement à l'aide d'une réduction du gap $\bar{\Delta}$, et d'un seul facteur $F(A_{\mu\nu})$. La ligne verticale tiretée indique la limite en température accessible aux autres groupes (0,5 en $T/T_{C,a}$). N'ayant pas eu accès à ce comportement surprenant, on comprend qu'ils aient cherché à ajuster leurs données sur les situations (simples) obtenues dans l' ^3He massif (A pour Sprague et al. [129] 1995, et B pour Alles et al. [142] 1999).

Remarquons que cette structure RMN complexe peut être complètement masquée, en ^3He pur, par l'inhomogénéité du champ. La raie unique semble alors symétrique, même aux plus basses températures.

Plus surprenant, la tendance observée peut être inverse de celle de la fig. 11.42. Nous montrons en effet en fig. 11.46 le passage par la transition en $T_{C,a}$, tel qu'il est vu sur

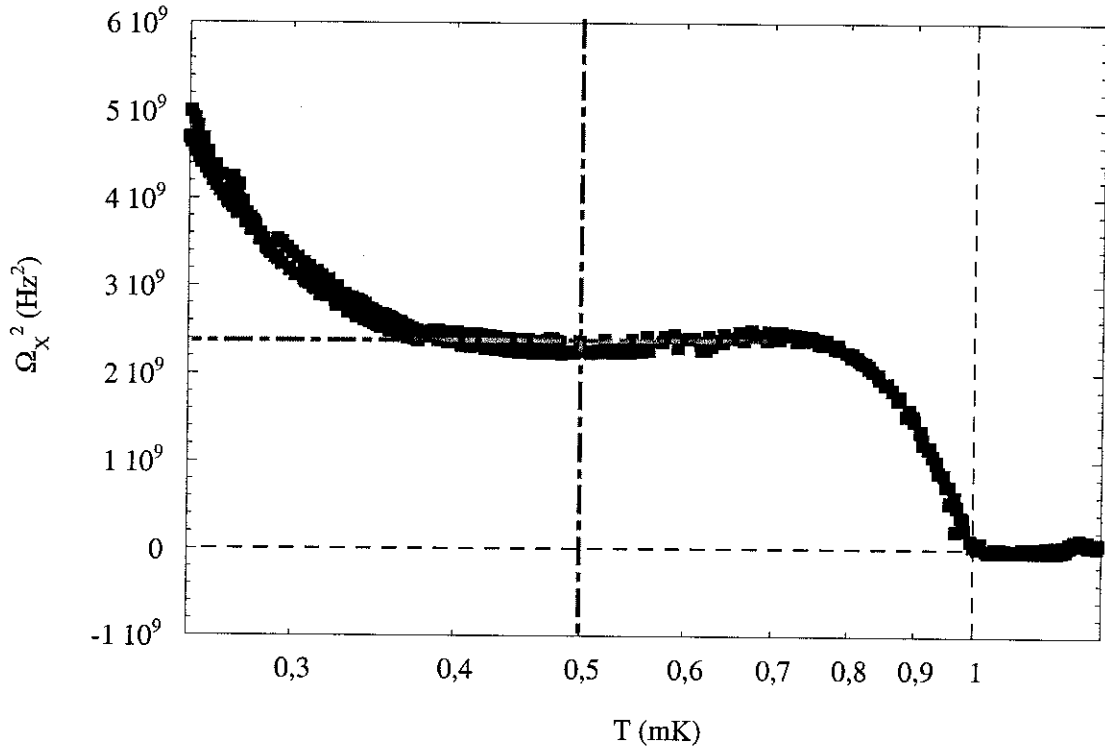


FIG. 11.45: Fréquence de Leggett Ω_X^2 calculée pour les données en ^3He pur, obtenue à 24,8 bar dans 37,3 mT (la loi de l'échange rapide a été utilisée). Ce résultat revient à oublier le phénomène de redistribution spectrale présenté ci-dessus. Cette analyse est effectuée usuellement dans la littérature, car les différents groupes n'atteignent que les températures de l'ordre de $0,5 T/T_{C,a}$ (verticale tiretée). Ils ne perçoivent donc qu'une apparente saturation (horizontale tiretée), à une valeur plus faible que les Ω_X^2 (X étant A ou B) publiés. Le changement de tendance au-dessous de cette limite rend une telle analyse caduque. Horizontale et verticale pointillées marquent la référence, comme pour les autres graphiques.

la largeur de raie RMN en mauvais gradient de champ (données identiques à celles de la fig. 11.39, bas champ, mais pour la largeur à mi-hauteur). Ce que nous distinguons sur ce graphique, semble être un brusque rétrécissement de la raie sous $T_{C,a}$, qui tend à rattraper le comportement en champ plus homogène (courbe de référence en fig. 11.46). Sur certaines de nos mesures, ce brusque rétrécissement est absent : l'effet global perçu est alors un rétrécissement monotone, au-dessous de $T_{C,a}$, de la raie RMN. C'est exactement ce qui est observé par Chen [204] 1999, et Haard [208] 2001.

A notre sens, ce rétrécissement de la raie est une marque de la cohérence de la phase ^3He confinée, sur l'ensemble de la cellule expérimentale (plus d'un centimètre de long). C'est sur cette distance que s'établit l'inhomogénéité du champ, que le système est capable de contre-balancer par le mouvement des atomes du superfluide.

Pour conclure sur les propriétés de la phase superfluide, nous constatons les anomalies thermiques auxquelles elle est sujette. Déjà Barker et al. [146] 1998 remarquent que la

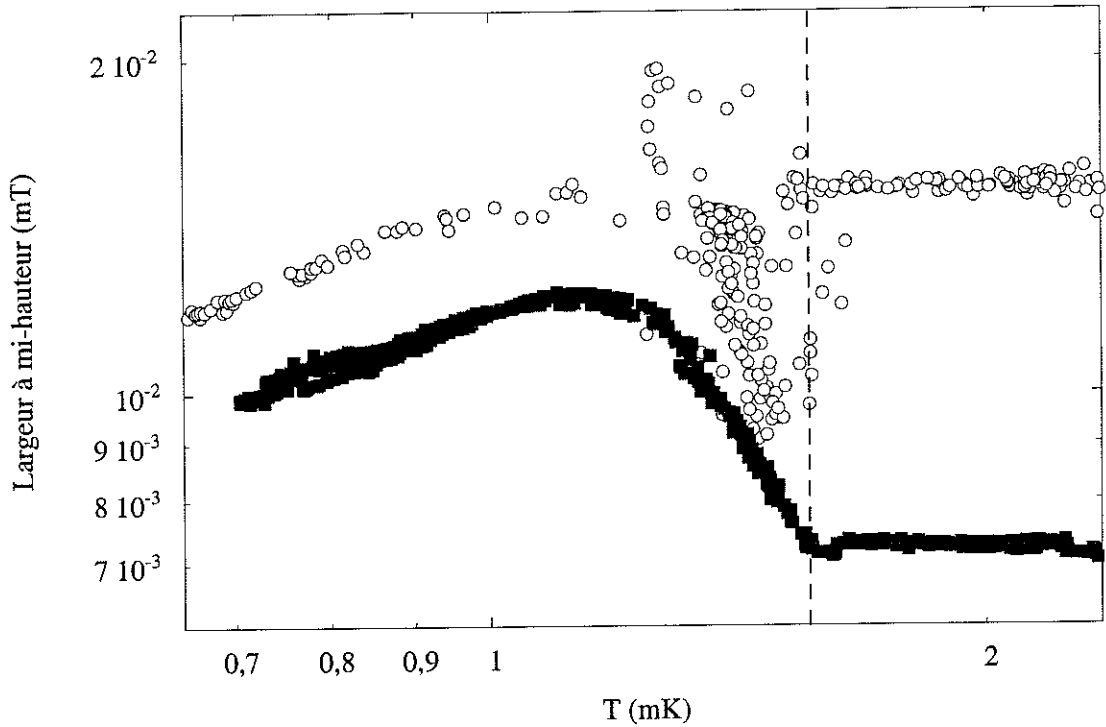


FIG. 11.46: Largeur de raie RMN mesurée par la largeur à mi-hauteur, en bon gradient (■) et mauvais gradient (○), en fonction de la température (mesures à 17 bar en ^3He pur). En toute rigueur, ces deux mesures sont acquises pour deux champs différents : bonne homogénéité de champ à 37,3 mT, et mauvaise à 17,3 mT. Aucun effet particulier n'est supposé être relié au champ, ces données sont les mêmes que celles de la fig. 11.39. La verticale pointillée représente $T_{C,a}$, les deux horizontales pointillées marquent les largeurs obtenues dans chaque cas pour la phase "intermédiaire".

conductivité thermique du superfluide semble se dégrader à mesure que l'on refroidit le système⁵⁵.

Pour nos échantillons E2 et E4, la fuite thermique depuis les côtés de la cellule, vers l'aérogel, limite les températures les plus basses où le couplage thermique entre l'échantillon et le fil vibrant (thermomètre) est raisonnable ($350\ \mu\text{K}$ et $750\ \mu\text{K}$ respectivement). C'est pourquoi, au plus basses températures dans le cas ^3He pur, il nous a fallu utiliser l'aimantation des couches solides pour remonter, sans ambiguïté⁵⁶, à la température au sein de l'aérogel.

Mais plus étonnant qu'un simple découplage thermique, nous observons un comportement erratique de la température (et/ou de l'aimantation totale) au sein de l'aérogel. Nous

⁵⁵Dans l' $^3\text{He-B}$ massif, tant que le libre parcours moyen des quasi-particules n'est pas limité, on montre (voir par exemple Vollhardt et Völkle [222]) que la conductivité thermique κ vérifie aux plus basses températures $T\kappa(T) \approx \text{Cste}$. Toute limitation du libre parcours moyen (par la taille de la cellule expérimentale, ou dans notre cas par la taille des pores de l'aérogel) se traduit par une diminution continue de la conductivité thermique lorsque $T \rightarrow 0$.

⁵⁶A quelques % près de résolution. Cette technique nous a également permis de recalculer la thermométrie des échantillons où le fil vibrant n'avait pas été recalibré (échelle précise de température pour E2 et E3).

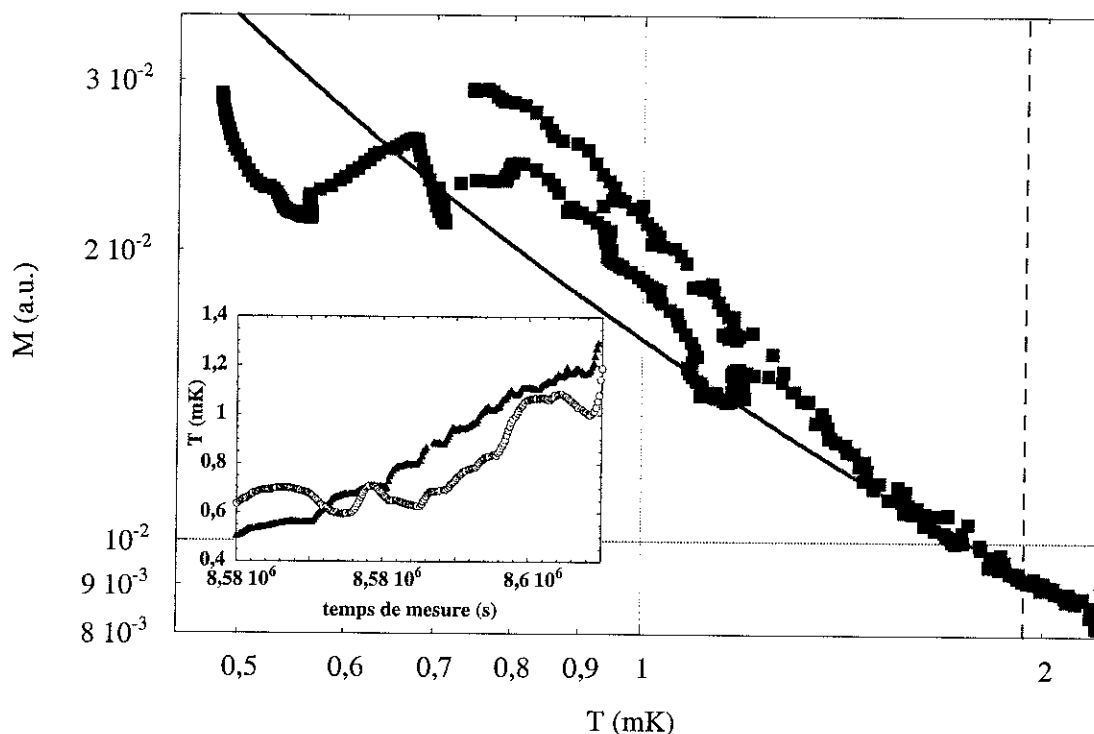


FIG. 11.47: Aimantation totale mesurée à ultra-basse température à 24,8 bar dans 37,3 mT, en fonction de la température du fil vibrant situé dans le ballast thermique. La ligne pleine représente l'ajustement réalisé en section 11.2. Cette courbe représente deux mesures en réchauffement : la branche inférieure le premier jour suivant la désaimantation nucléaire, et la branche supérieure le deuxième jour (le chauffage a été réalisé via le second fil de tantale présent dans le ballast thermique). Encart : tracé, en fonction du temps, de la température du fil vibrant ($\blacktriangle$) et de la température des couches magnétiques ($\circ$). Sur ce graphique et sur son encart, nous distinguons toute une série d'anomalies thermiques et/ou magnétiques.

montrons, par exemple, en fig. 11.47 l'aimantation totale du système (dominée par les couches solides), en fonction de la température du fil vibrant (le ballast thermique). Ici, le réchauffement de la cellule s'est fait via le second fil de tantale présent dans le ballast d' ^3He . Ce genre de comportement se retrouve, aux plus basses températures, sur différentes mesures, sans être parfaitement reproductible⁵⁷.

Nous distinguons plusieurs zones sur cette courbe où semble-t-il l' ^3He confiné se refroidit alors que le ballast thermique se réchauffe ! Alors que le fil vibrant marque un réchauffement homogène, la température recalculée par les couches solides marque des anomalies (encart fig. 11.47). Remarquons qu'au premier ordre, les propriétés RMN au sein de l'aérogel sont tout à fait lisses et reproductibles lorsque tracées les unes en fonction des autres. C'est d'ailleurs ce qui nous autorise à recalculer la température de l'échantillon à l'aide de l'aimantation totale (notons la qualité du résultat fig. 11.42, comparé à fig. 11.47). Au

⁵⁷Il se pourrait que ce découplage dépende du champ magnétique. Aucune conclusion claire n'a pu être tirée sur ce point.

second ordre, des anomalies non reproductibles apparaissent néanmoins aux plus basses températures sur la forme de cette raie RMN : des modifications soudaines de la forme de raie ont été observées aux ultra-basses températures.

Comment expliquer un tel comportement aux plus basses températures ? A notre sens, deux phénomènes sont à invoquer, à la fois des instabilités dans la texture du superfluide, et un comportement particulier de ses propriétés de transport. De façon naturelle, la structure de silice limite le libre parcours moyen des quasi-particules. On s'attend donc à observer une saturation (ou une décroissance) dans les propriétés de transport, analogue au résultat obtenu en diffusion de spin dans la phase normale (section 11.2). Mais ceci n'est pas suffisant pour expliquer les phénomènes erratiques.

Il nous faut, encore une fois, invoquer la présence de défauts topologiques dans l' ^3He confiné par la matrice de silice (créés par le mécanisme de Kibble [166] 1976). En effet, de tels défauts pourraient être le siège d'instabilités (ou de transitions, comme le passage d'un pic satellite à l'autre observé en section 11.17). Ils sont également une explication naturelle aux phénomènes de refroidissement alors que le reste de la cellule expérimentale se réchauffe : de tels défauts topologiques peuvent empêcher les quasi-particules de pénétrer dans l'aérogel du fait du mécanisme de réflexion d'Andreev (proposé originellement par Andreev [177] 1964). Une quasi-particule, au lieu de traverser le réseau de défauts, est réfléchiée sous la forme d'un quasi-trou (phénomène également à l'origine de l'amortissement mesuré par fil vibrant à ultra-basses températures, section 5.4). Cette réflexion des excitations thermiques sur un réseau de défauts a été récemment invoquée par Fisher et al. [175] 2001, pour expliquer les propriétés de deux fils vibrants placés en vis-à-vis.

Dans cette section, nous avons étudié les particularités de la phase superfluide. Le décalage en résonance Ω_B^2 est réduit par rapport au cas de l' ^3He massif, mais son étude est compliquée par la structure de la texture présente au sein de l'aérogel, dont la signature RMN se constitue d'au moins trois pics dont le poids spectral varie en température. Néanmoins, cette réduction est directement reliée à la réduction de T_C , et à la variation de l'aimantation dans cette phase superfluide de type B . Par comparaison avec la mesure de ρ_S , densité superfluide, obtenue en oscillateur de torsion (par exemple Porto et Parpia [128] 1995), nous espérons que dans l'avenir des informations fiables pourront être obtenues à la fois sur $\bar{\Delta}$ et sur la texture du superfluide, à l'aide de nouveaux développements théoriques. Il est probable que ces approches devront prendre en compte la présence de défauts topologiques générés lors du refroidissement au-dessous de $T_{C,b}$.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Dans cette partie, nous avons étudié les propriétés RMN de l' ^3He confiné dans l'aérogel, depuis des températures de l'ordre de 100 mK jusqu'aux ultra-basses températures. Nous nous sommes dans un premier temps intéressés à la phase liquide de Fermi, et aux propriétés du solide adsorbé.

Poursuivant l'étude de Triqueneaux [206] 2001, nous avons montré que les interactions entre spins du liquide normal ne sont pas affectées par la matrice de silice. Les températures de Fermi T_F^{**} et le libre parcours moyen à haute température (mesuré en diffusion de spin), sont ceux du liquide massif.

Nous avons mis en évidence la saturation du coefficient de diffusion de spin, à basse température mais au-dessus de $T_{C,b}$, marquant la limitation du libre parcours moyen par l'aérogel.

Nous montrons que la quantité de solide adsorbé croît avec la pression (en moyenne il correspond à 2 % de la quantité totale d' ^3He), alors que sa température de Curie-Weiss effective Θ_W diminue. Nous avons vérifié que ses propriétés hautes températures sont indépendantes du champ magnétique. Nous démontrons que le liquide et le solide sont en échange rapide.

Pour poursuivre cette étude, nous pouvons proposer plusieurs voies :

- Des mesures systématiques du coefficient de diffusion pour plusieurs pressions, de 0 bar à 30 bar, seraient nécessaires pour clarifier le mécanisme de saturation du libre parcours moyen. Nous avons proposé d'en rendre compte à l'aide d'une distribution de tailles de pores.
- Des mesures complémentaires en conductivité thermique et en acoustique permettraient des comparaisons intéressantes. Entre autres, les échelles de longueur extraites de ces mesures doivent rendre compte du mécanisme de collision entre les quasi-particules et les surfaces de l'aérogel.

Dans un second temps, nous avons étudié les propriétés remarquables de la phase que nous nommons "intermédiaire", présente entre $T_{C,a}$ et $T_{C,b}$. En RMN continue, nous observons des pics satellites se séparant de la raie RMN principale. Nous montrons que 17% environ des spins du liquide passent de la raie principale dans ces entités.

Nous observons que la raie RMN principale ne suit plus la loi de l'échange rapide dans ce régime. Au contraire, la largeur de raie RMN semble se "bloquer" sur une valeur constante, inférieure à la largeur RMN correspondant à l' ^3He solide adsorbé.

Nous observons que les pics satellites, au nombre de deux, ont un comportement relevant de la superfluidité. Ce comportement est indépendant de la présence ou de l'absence des couches d' ^3He adsorbées (dopage en ^4He). Ces pics satellites ont des propriétés surprenantes, et nous proposons qu'ils sont la signature de défauts topologiques créés dans l' ^3He confiné lors du passage au travers de $T_{C,b}$, suivant le mécanisme de Kibble [166] 1976.

Ces observations sont à l'heure actuelle assez mystérieuses, et demandent à être complétées. De même, une étude théorique incorporant la notion de défaut topologique (manquant à l'heure actuelle), devrait permettre de pousser plus avant notre analyse.

Enfin, nous nous sommes intéressés à la superfluidité de l' ^3He confiné dans l'aérogel. Nos données brutes et nos températures $T_{C,a}$ sont en accord avec celles des autres groupes. En revanche, notre interprétation diffère, du fait de notre meilleure sensibilité RMN et des ultra-basses températures atteintes. Même si les modèles simplistes de collisions entre les quasi-particules et les surfaces de silice rendent compte assez proprement de la réduction de la température de transition, nous mettons en évidence les points sur lesquels ils sont insuffisants.

Nous avons observé les propriétés hystérétiques de la transition superfluide. A notre sens, il pourrait s'agir d'une propriété de la phase "intermédiaire", plutôt que d'une preuve de l'existence d'une phase superfluide de type *A* au plus près de $T_{C,a}$.

Nous démontrons que la phase superfluide stabilisée est de type *B*, marquée par une réduction de l'aimantation du liquide bien plus faible que dans le cas de l' ^3He massif. Le décalage superfluide des raies RMN suit la loi usuelle en $1/|\vec{B}|$, et nous ne décelons aucun effet dépendant de l'amplitude du champ magnétique. Aussi, nous démontrons que le liquide superfluide et le solide adsorbé sont en échange rapide.

Les raies RMN obtenues sans ^3He adsorbé ont une structure complexe en triple pic. De plus, aux ultra-basses températures, nous obtenons un comportement non monotone du décalage de la résonance RMN du superfluide en fonction de la température. Ce résultat inédit nous pousse à conclure à une redistribution particulière du poids spectral dans nos raies de RMN, qui ne peut être comprise par les textures standard. Nous proposons que

cette structure particulière est imposée par les défauts topologiques cités ci-dessus.

Aux ultra-basses températures, nous observons des comportements erratiques sur la température et/ou l'aimantation de l' ^3He confiné. Encore une fois, nous considérons qu'il s'agit d'une marque de ces défauts topologiques présents dans la cellule expérimentale.

Pour poursuivre cette étude, nous pouvons proposer plusieurs voies :

- L'étude aux ultra-basses températures doit être poursuivie, afin de clarifier ce phénomène de redistribution spectrale. A ce titre, des expériences aux alentours de $300\mu\text{K}$, sans couches d' ^3He solides, permettraient d'étudier la structure fine des raies RMN du liquide.
- Sans information sur la texture présente dans la cellule, il est impossible d'extraire une réduction du gap superfluide $\overline{\Delta}$. La comparaison entre mesures de RMN, et d'oscillateur de torsion, alliée à de nouveaux développements théoriques, est nécessaire.
- Nous proposons également de continuer les expériences en RMN pulsée que nous n'avons pu que démarrer au laboratoire. Elles sont une source d'information complémentaire, et font apparaître des propriétés toutes particulières, comme la brusque disparition du décalage RMN de la résonance superfluide aux fortes puissances radio-fréquences (Sprague et al. [129] 1995).

Nos résultats novateurs appellent de nouveaux travaux tant expérimentaux que théoriques. Nous espérons que dans un futur proche, ils permettront de clarifier certains points encore controversés.

A

QUELQUES CONSTANTES PHYSIQUES

Notation	Nom	Valeur
$\mathcal{N}_A$	nombre d'Avogadro	$6,02205 \cdot 10^{23} \text{ at/mol}$
k_B	constante de Boltzman	$1,38066 \cdot 10^{-23} \text{ J/K}$
μ_0	permittivité magnétique du vide	$4\pi \cdot 10^{-7} \text{ S.I.}$
h	constante de Planck	$6,62618 \cdot 10^{-34} \text{ J.s}$
$\hbar$	constante de Planck réduite	$h/(2\pi)$
e	charge de l'électron	$1,602189 \cdot 10^{-19} \text{ C}$
μ_N	magnéton nucléaire	$5,05082 \cdot 10^{-27} \text{ J/T}$
$S_{^3\text{He}}$	spin nucléaire S de l' ^3He	$1/2$
$S_{^{195}\text{Pt}}$	spin nucléaire S du Platine* ^{195}Pt	$1/2$
$\mu_{^3\text{He}}$	moment magnétique nucléaire $g_N \mu_N S$ de l' ^3He	$-2,1274 \mu_N$
$\mu_{^{195}\text{Pt}}$	moment magnétique nucléaire $g_N \mu_N S$ du Platine* ^{195}Pt	$+0,6004 \mu_N$
$\gamma_{^3\text{He}}/(2\pi)$	facteur gyromagnétique de l' ^3He $g_N \mu_N/h$	$32,433 \text{ MHz/T}$
$\gamma_{^{195}\text{Pt}}/(2\pi)$	facteur gyromagnétique du Platine* ^{195}Pt $g_N \mu_N/h$	$9,153 \text{ MHz/T}$
$\mathcal{N}/V$	conversion ccSTP en millimole	$0,044615 \text{ mmol/ccSTP}$

TAB. A.1: Quelques constantes utiles.

* pour le Platine, l'élément possédant un spin nucléaire est le ^{195}Pt , d'abondance naturelle 33,8 %.

Rq. : les grandeurs citées sont obtenues à l'aide du Handbook [209]. Dans l'ensemble du manuscrit, les spins nucléaires usuellement notés I sont notés S pour des raisons de commodité. Le facteur de Landé (nucléaire) est noté g_N .

B

LISTE DES TRAVAUX

Fils Vibrants Microfabriqués

S. Triqueneaux, E. Collin, D. J. Cousins, T. Fournier, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov,
H. Godfrin
Journées du CRTBT 1999
Saint-Nizier du Moucherotte, France, 21-23 juin 1999

Superfluidity of ^3He Contained in Aerogel

D. J. Cousins, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, A.-S. Chen, E. Collin, H. Godfrin
International Conference on Low Temperature Physics LT-22
Espoo et Helsinki, Finlande, 4-11 août 1999
Physica B, **284**, 311 (2000)

Microfabrication of Silicon Vibrating Wires

S. Triqueneaux, E. Collin, D. J. Cousins, T. Fournier, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov,
H. Godfrin
International Conference on Low Temperature Physics LT-22
Espoo et Helsinki, Finlande, 4-11 août 1999
Physica B, **284**, 2141 (2000)

^3He Solide Antiferromagnétique 2D : Liquide de Spins ?

E. Collin, S. Triqueneaux, R. Harakaly, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
Physique en Clips 1999
Grenoble, France, 16 décembre 1999

2D- ^3He : A Strongly Frustrated Quantum Magnet

E. Collin, S. Triqueneaux, R. Harakaly, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
Conference of the European Physical Society
Condensed Matter Division Meeting CMD-2000
Montreux, Suisse, 13-17 mars 2000

Frustrated Magnetism in Two-Dimensional ^3He

E. Collin, R. Harakaly, S. Triqueneaux, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
Proc. International Conference on Quantum Fluids and Solids QFS-2000
Minneapolis, Minnesota, USA, 6-11 juin 2000

Nuclear Susceptibility of liquid ^3He

S. Triqueneaux, E. Collin, R. Harakaly, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
Proc. International Conference on Quantum Fluids and Solids QFS-2000
Minneapolis, Minnesota, USA, 6-11 juin 2000

Anomalous Superfluidity of ^3He confined inside Aerogel

E. Collin, R. Harakaly, A.S. Chen, D.J. Cousins, S. Triqueneaux, C. Bäuerle,
Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
Symposium E.U. Large Scale Facility User Meeting
Regensburg, Allemagne, 14-15 juillet 2000

Frustrated Quantum Magnet and " Spin Liquid " Phase in Two-Dimensional ^3He

E. Collin, S. Triqueneaux, R. Harakaly, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
Groupement De Recherche Oxydes à propriétés remarquables
Aussois, France, 13-15 septembre 2000

³He Solide 2-Dimensionnel : Frustration Quantique et Liquide de Spins

E. Collin, S. Triqueneaux, R. Harakaly, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
Séminaire CRTBT
Grenoble, France, 18 septembre 2000

Frustrated Quantum Magnet and " Spin Liquid " Phase in Two-Dimensional ³He

E. Collin, S. Triqueneaux, R. Harakaly, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
Groupement De Recherche Systèmes Fortement Corrélés
Aussois, France, 25-28 septembre 2000

Quantum Frustration and the " Spin Liquid " Phase of Two-Dimensional ³He

E. Collin, S. Triqueneaux, R. Harakaly, M. Roger, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
Phys. Rev. Lett., **86**, 2447 (2001)

Diffusion de Spins dans l'³He en Milieu Confiné

E. Collin, R. Harakaly, Yu. Mukhraskii, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
Physique en Clips 2001
Grenoble, France, 23 mars 2001

Nanoclusters Ferromagnétiques dans l'³He Solide Bidimensionnel

E. Collin, S. Triqueneaux, R. Harakaly, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
Journées du CRTBT
Saint-Hughes de Biviers, France, 16-18 mai 2001

Dissemination of the Ultra-Low Temperature Scale, PLTS-2000

R. Rusby, D. J. Cousins, D. Head, P. Mohandas, Yu. M. Bunkov, C. Bäuerle, R. Harakaly, E. Collin, S. Triqueneaux, C. P. Lusher, J. Li, J. Saunders, B. P. Cowan, J. Nyéki, M. Digby, J. Pekola, K. Gloos, P. Hernandez, M. de Groot, A. Peruzzi, R. Jochemsen, A. Chinchure, W. Bosch, F. Mathu, J. Flokstra, D. Veldhuis, Y. Hermier, L. Pitre, A. Vergé, F. Benhalima, B. Fellmuth, J. Engert
Proceedings of TEMPMEKO
Berlin, Allemagne, 19-21 juin 2001

³He Confined inside Aerogel

E. Collin, R. Harakaly, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
COSLAB Workshop
London, Angleterre, 7-10 Juillet 2001

Magnetic susceptibility of liquid ³He

E. Collin, R. Harakaly, S. Triqueneaux, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
International Conference on Quantum Fluids and Solids QFS-2001
Konstanz, Allemagne, 21-27 juillet 2001

Phase coexistence in 2D solid ³He adsorbed on ⁴He preplated Graphite

E. Collin, R. Harakaly, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
International Conference on Quantum Fluids and Solids QFS-2001
Konstanz, Allemagne, 21-27 juillet 2001

Mysterious properties of ³He confined inside Aerogel

E. Collin, R. Harakaly, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
International Conference on Quantum Fluids and Solids QFS-2001
Konstanz, Allemagne, 21-27 juillet 2001

2D-³He : Quantum Frustration and Spin Liquid

E. Collin, R. Harakaly, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin
Séminaire Royal Holloway
Londres, Angleterre, 26 septembre 2001

BIBLIOGRAPHIE

- [1] X. Duval, A. Thomy, *C.r. hebd. Séanc. Acad. Sci., Paris*, **259**, 4007 (1964)
- [2] G. Careri, M. Santini, G. Signorelli, *Proceedings of the IX Conference on Low Temperature Physics (LT9)*, **A**, 364 (1965)
- [3] D. F. Brewer, J. S. Rolt, *Phys. Rev. Lett.*, **29**, 1485 (1972)
- [4] A. I. Ahonen, T. Kodama, M. Krusius, M. A. Paalanen, R. C. Richardson, W. Schoepe, Y. Takano, *J. Phys. C*, **9**, 1665 (1976)
- [5] A. I. Ahonen, T. A. Alvesalo, T. Haavasoja, M. C. Veuro, *Phys. Rev. Lett.*, **41**, 494 (1978)
- [6] H. Godfrin, G. Frossati, D. Thoulouze, M. Chapellier, W. G. Clark, *Journal de Physique, Paris*, **39**, C6-287 (1978)
- [7] H. M. Bozler, T. Bartolac, K. Luey, A. L. Thomson, *Phys. Rev. Lett.*, **41**, 490 (1978)
- [8] Y. Okuda, A. J. Ikushima, H. Kojima, *Phys. Rev. Lett.*, **54**, 130 (1985)
- [9] H. Godfrin, R. E. Rapp, *Advances in Physics*, **44**, 113 (1995)
- [10] H. Godfrin, H.-J. Lauter, *Progress in Low Temperature Physics*, **XIV**, 213 (1995)
- [11] A. Golov, F. Pobell, *J. of Low Temp. Phys.*, **99**, 191 (1995)
- [12] A. Golov, F. Pobell, *Phys. Rev. Lett.*, **53**, 12647 (1996)
- [13] M. Morishita, H. Nagatani, H. Fukuyama, *Physica B*, **284**, 228 (2000)
- [14] F. Joly, C. Lhuillier, B. Bami, *Surface Science*, **264** 419 (1992)
- [15] M. W. Cole, D. R. Frankl, D. L. Goodstein, *Rev. Mod. Phys.*, **53**, 199 (1981)
- [16] R. A. Aziz, F. R. W. McCourt, C. C. K. Wong, *J. Molec. Phys.*, **61**, 1487 (1987)
- [17] B. E. Clements, E. Krotscheck, H.-J. Lauter, *Phys. Rev. Lett.*, **70**, 1287 (1993)
- [18] M. Roger, C. Bäuerle, H. Godfrin, L. Pricoupenko, J. Treiner, *J. of Low Temp. Phys.*, **112**, 451 (1998)
- [19] W. Heisenberg, *Z. Physik*, **38**, 441 (1926)
- [20] P. A. M. Dirac, *Proc. Roy. Soc.*, **112A**, 661 (1926)
- [21] D. J. Thouless, *Proc. Phys. Soc.*, **86**, 893 (1965)
- [22] H. Godfrin, D. D. Osheroff, *Phys. Rev. B*, **38**, 4492 (1988)
- [23] M. Roger, J. H. Hetherington, J. M. Delrieu, *Rev. Mod. Phys.*, **55**, 1 (1983)
- [24] J. M. Delrieu, M. Roger, J. H. Hetherington, *J. of Low Temp. Phys.*, **40**, 71 (1980)
- [25] M. A. Ruderman, C. Kittel, *Phys. Rev.*, **96**, 99 (1954)
- [26] J. B. Sokoloff, A. Widom, *Int. Quantum Crystals Conf., Colorado* (1977)
- [27] M. Héritier, *Journal de Physique, Paris*, **40**, L-451 (1979)
- [28] H. Jichu, Y. Kuroda, *Progr. Theor. Phys.*, **67**, 715 (1982)
- [29] S. Tasaki, *Progr. Theor. Phys.*, **79**, 1311 (1988); errata **80**, 922 (1988); **81**, 946 (1989); **82**, 1032 (1989)
- [30] R. A. Guyer, K. R. McCall, D. T. Sprague, *Phys. Rev. B*, **40**, 7417 (1989)
- [31] R. A. Guyer, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 1919 (1990)
- [32] M. Roger, *Phys. Rev. B*, **30**, 6432 (1984)
- [33] B. Bernu, D. M. Ceperley, C. Lhuillier, *J. of Low Temp. Phys.*, **89**, 589 (1992)
- [34] B. Bernu, D. M. Ceperley, *Quantum Monte Carlo Methods in Physics and Chemistry*, 161 (1999)
- [35] H.-J. Lauter, H. Godfrin, P. H. Schildberg, J. Trampenau, M. Meshke, communication privée ILL
- [36] H.-J. Lauter, H. Godfrin, V. L. P. Frank, P. H. Schildberg, *Physica B*, **165-166**, 597 (1990)
- [37] G. de Carvalho, R. E. Rapp, H. Godfrin, E. Lerner, *Physica B*, **284**, 218 (2000)
- [38] D. S. Greywall, P. A. Busch, *Phys. Rev. Lett.*, **62**, 1868 (1989)
- [39] D. S. Greywall, *Phys. Rev. B*, **41**, 1842 (1990)
- [40] H. Ikegami, R. Masutomi, K. Obara, H. Ishimoto, *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 5146 (2000)
- [41] M. Bretz, J. G. Dash, D. C. Hickernell, E. O. McLean, O. E. Vilches, *Phys. Rev. A*, **8**, 1589 (1973)
- [42] S. V. Hering, S. W. Van Sciver, O. E. Vilches, *J. of Low Temp. Phys.*, **25**, 793 (1976)
- [43] M. D. Miller, L. H. Nosanow, *J. of Low Temp. Phys.*, **32**, 145 (1978)

- [44] H. Ikegami, K. Obara, I. Daisuke, H. Ishimoto, *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 2478 (1998)
- [45] R. E. Rapp, H. Godfrin, *Phys. Rev. B*, **47**, 12004 (1993)
- [46] J. M. Kosterlitz, D. J. Thouless, *J. Phys. C.*, **6**, 1181 (1973)
- [47] G. Csathy, D. Tulimieri, J. Yoon, M. H. W. Chan, *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 4481 (1998)
- [48] J. Nyéki, R. Ray, B. P. Cowan, J. Saunders, *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 152 (1998)
- [49] M. Roger, J. M. Delrieu, *Jap. J. Appl. Phys.*, suppl. 3 **26**, 267 (1987)
- [50] H. Franco, R. E. Rapp, H. Godfrin, *Phys. Rev. Lett.*, **57**, 1161 (1986)
- [51] A. M. Dyugaev, *Sov. Sci. Rev. A Phys.*, **14**, 1 (1990)
- [52] J. Saunders, C. P. Lusher, B. P. Cowan, *Excitations in Two-Dimensional and Three-Dimensional Quantum Fluids*, Plenum Press, 453 (1991)
- [53] R. B. Hallock, *J. of Low Temp. Phys.*, **121**, 441 (2000)
- [54] A. Sachrajda, R. F. Harris-Lowe, J. P. Harrison, R. R. Turkington, J. G. Daunt, *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 1602 (1985)
- [55] K. Shirahama, F. Pobell, *Physica B*, **194**, 863 (1994)
- [56] A. V. Chubukov, *Phys. Rev. B*, **48**, 1097 (1993)
- [57] H. Takahashi, D. S. Hirashima, *J. of Low Temp. Phys.*, **121**, 1 (2000)
- [58] H. Wiechert, *Physica B*, **169**, 144 (1991)
- [59] M. Roger, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 297 (1990)
- [60] C. Bäuerle, Y. M. Bunkov, A.-S. Chen, D. J. Cousins, H. Godfrin, M. Roger, S. Triqueneaux, *Physica B*, **280**, 95 (2000)
- [61] M. Roger, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, A.-S. Chen, H. Godfrin, *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 1308 (1998)
- [62] A. P. Ramirez, *Handbook of Magnetism*, draft version (1999)
- [63] A. P. Ramirez, *Annu. Rev. Mater.*, **24**, 453 (1994)
- [64] V. Elser, *Phys. Rev. Lett.*, **62**, 2405 (1989)
- [65] B. Bernu, communication privée
- [66] J. Oitmaa, E. Bornilla, *Phys. Rev. B*, **53**, 14228 (1996)
- [67] M. Roger, *Phys. Rev. B*, **56**, R2928 (1997)
- [68] M. Roger, communication privée
- [69] M. Siqueira, J. Nyéki, B. P. Cowan, J. Saunders, *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 2600 (1997)
- [70] N. D. Mermin, H. Wagner, *Phys. Rev. Lett.*, **17**, 1133 (1966)
- [71] G. Misguich, B. Bernu, C. Lhuillier, C. Waldtmann, *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 1098 (1998)
- [72] P. W. Anderson, *Mater. Res. Bull.*, **8**, 153 (1973)
- [73] Th. Jolicœur, J. C. Le Guillou, *Phys. Rev. B*, **40**, 2727 (1989)
- [74] B. Bernu, C. Lhuillier, L. Pierre, *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 2590 (1992)
- [75] B. Bernu, P. Lecheminant, C. Lhuillier, L. Pierre, *Phys. Rev. B*, **50**, 10048 (1994)
- [76] T. Momoi, K. Kubo, K. Niki, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 2081 (1997)
- [77] K. Kubo, T. Momoi, *Z. Phys. B*, **103**, 485 (1997)
- [78] F. Strocchi, *International School for Advanced Studies, Lecture Series no. 3, Elements of Quantum Mechanics of Infinite Systems*, World Scientific, 115 (1985)
- [79] E. Y. Rudavskii, *Int. Symp. QFS, Konstanz* (2001)
- [80] J. He, T. G. Culman, H. H. Hjort, D. O. Edwards, *J. of Low Temp. Phys.*, **119**, 533 (2000)
- [81] A. Casey, H. Patel, M. Siqueira, C. P. Lusher, J. Nyéki, B. P. Cowan, J. Saunders, *Physica B*, **284**, 224 (2000)
- [82] C. P. Lusher, J. Saunders, B. P. Cowan, *Europhys. Lett.*, **14**, 809 (1991)
- [83] M. Héritier, P. Lederer, *Phys. Rev. Lett.*, **42**, 1068 (1979)
- [84] H. Patel, F. Ziouzia, J. Nyéki, B. P. Cowan, J. Saunders, *Int. Symp. QFS, Konstanz* (2001)
- [85] F. Ziouzia, H. Patel, J. Nyéki, B. P. Cowan, J. Saunders *Int. Symp. QFS, Konstanz* (2001)
- [86] J. Saunders, C. P. Lusher, B. P. Cowan, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 2523 (1990)
- [87] P. Schiffer, M. T. O'Keefe, D. D. Osheroff, *J. of Low Temp. Phys.*, **94**, 489 (1994)
- [88] H. Godfrin, communication privée
- [89] R. L. Elgin, J. M. Greif, D. L. Goodstein, *Phys. Rev. Lett.*, **41**, 1723 (1978)
- [90] D. S. Greywall, P. A. Busch, *Phys. Rev. Lett.*, **60**, 1860 (1988)

- [44] H. Ikegami, K. Obara, I. Daisuke, H. Ishimoto, *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 2478 (1998)
- [45] R. E. Rapp, H. Godfrin, *Phys. Rev. B*, **47**, 12004 (1993)
- [46] J. M. Kosterlitz, D. J. Thouless, *J. Phys. C*, **6**, 1181 (1973)
- [47] G. Csathy, D. Tulimieri, J. Yoon, M. H. W. Chan, *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 4481 (1998)
- [48] J. Nyéki, R. Ray, B. P. Cowan, J. Saunders, *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 152 (1998)
- [49] M. Roger, J. M. Delrieu, *Jap. J. Appl. Phys.*, suppl. 3 **26**, 267 (1987)
- [50] H. Franco, R. E. Rapp, H. Godfrin, *Phys. Rev. Lett.*, **57**, 1161 (1986)
- [51] A. M. Dyugaev, *Sov. Sci. Rev. A Phys.*, **14**, 1 (1990)
- [52] J. Saunders, C. P. Lusher, B. P. Cowan, *Excitations in Two-Dimensional and Three-Dimensional Quantum Fluids*, Plenum Press, 453 (1991)
- [53] R. B. Hallock, *J. of Low Temp. Phys.*, **121**, 441 (2000)
- [54] A. Sachrajda, R. F. Harris-Lowe, J. P. Harrison, R. R. Turkington, J. G. Daunt, *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 1602 (1985)
- [55] K. Shirahama, F. Pobell, *Physica B*, **194**, 863 (1994)
- [56] A. V. Chubukov, *Phys. Rev. B*, **48**, 1097 (1993)
- [57] H. Takahashi, D. S. Hirashima, *J. of Low Temp. Phys.*, **121**, 1 (2000)
- [58] H. Wiechert, *Physica B*, **169**, 144 (1991)
- [59] M. Roger, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 297 (1990)
- [60] C. Bäuerle, Y. M. Bunkov, A.-S. Chen, D. J. Cousins, H. Godfrin, M. Roger, S. Triqueneaux, *Physica B*, **280**, 95 (2000)
- [61] M. Roger, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, A.-S. Chen, H. Godfrin, *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 1308 (1998)
- [62] A. P. Ramirez, *Handbook of Magnetism*, draft version (1999)
- [63] A. P. Ramirez, *Annu. Rev. Mater.*, **24**, 453 (1994)
- [64] V. Elser, *Phys. Rev. Lett.*, **62**, 2405 (1989)
- [65] B. Bernu, communication privée
- [66] J. Oitmaa, E. Bornilla, *Phys. Rev. B*, **53**, 14228 (1996)
- [67] M. Roger, *Phys. Rev. B*, **56**, R2928 (1997)
- [68] M. Roger, communication privée
- [69] M. Siqueira, J. Nyéki, B. P. Cowan, J. Saunders, *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 2600 (1997)
- [70] N. D. Mermin, H. Wagner, *Phys. Rev. Lett.*, **17**, 1133 (1966)
- [71] G. Misguich, B. Bernu, C. Lhuillier, C. Waldtmann, *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 1098 (1998)
- [72] P. W. Anderson, *Mater. Res. Bull.*, **8**, 153 (1973)
- [73] Th. Jolicœur, J. C. Le Guillou, *Phys. Rev. B*, **40**, 2727 (1989)
- [74] B. Bernu, C. Lhuillier, L. Pierre, *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 2590 (1992)
- [75] B. Bernu, P. Lecheminant, C. Lhuillier, L. Pierre, *Phys. Rev. B*, **50**, 10048 (1994)
- [76] T. Momoi, K. Kubo, K. Niki, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 2081 (1997)
- [77] K. Kubo, T. Momoi, *Z. Phys. B*, **103**, 485 (1997)
- [78] F. Strocchi, *International School for Advanced Studies, Lecture Series no. 3, Elements of Quantum Mechanics of Infinite Systems*, World Scientific, 115 (1985)
- [79] E. Y. Rudavskii, *Int. Symp. QFS, Konstanz* (2001)
- [80] J. He, T. G. Culman, H. H. Hjort, D. O. Edwards, *J. of Low Temp. Phys.*, **119**, 533 (2000)
- [81] A. Casey, H. Patel, M. Siqueira, C. P. Lusher, J. Nyéki, B. P. Cowan, J. Saunders, *Physica B*, **284**, 224 (2000)
- [82] C. P. Lusher, J. Saunders, B. P. Cowan, *Europhys. Lett.*, **14**, 809 (1991)
- [83] M. Héritier, P. Lederer, *Phys. Rev. Lett.*, **42**, 1068 (1979)
- [84] H. Patel, F. Ziouzia, J. Nyéki, B. P. Cowan, J. Saunders, *Int. Symp. QFS, Konstanz* (2001)
- [85] F. Ziouzia, H. Patel, J. Nyéki, B. P. Cowan, J. Saunders, *Int. Symp. QFS, Konstanz* (2001)
- [86] J. Saunders, C. P. Lusher, B. P. Cowan, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 2523 (1990)
- [87] P. Schiffer, M. T. O'Keefe, D. D. Osheroff, *J. of Low Temp. Phys.*, **94**, 489 (1994)
- [88] H. Godfrin, communication privée
- [89] R. L. Elgin, J. M. Greif, D. L. Goodstein, *Phys. Rev. Lett.*, **41**, 1723 (1978)
- [90] D. S. Greywall, P. A. Busch, *Phys. Rev. Lett.*, **60**, 1860 (1988)

- [91] C. Bäuerle, A.-S. Chen, S. Triqueneaux, Y. M. Bunkov, H. Godfrin, M. Roger, *J. of Low Temp. Phys.*, **113**, 259 (1998)
- [92] C. Bäuerle, A.-S. Chen, Y. M. Bunkov, H. Godfrin, M. Roger, *J. of Low Temp. Phys.*, **113**, 287 (1998)
- [93] P. Schiffer, I. Daruka, *Phys. Rev. B*, **56**, 13 712 (1997)
- [94] B. Bernu, communication privée
- [95] A. Casey, H. Patel, J. Nyéki, B. P. Cowan, J. Saunders, *J. of Low Temp. Phys.*, **113**, 265 (1998)
- [96] K. Ishida, M. Morishita, K. Yawata, H. Fukuyama, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 3451 (1997)
- [97] C. Lhuillier, communication privée
- [98] T. Momoi, H. Sakamoto, K. Kubo, *Phys. Rev. B*, **59**, 9491 (1999)
- [99] R. Masutomi, Y. Karaki, H. Ishimoto, *Int. Symp. QFS, Konstanz* (2001)
- [100] H. Godfrin, R. R. Ruel, D. D. Osheroff, *Journal de Physique, Paris*, **49**, C8-2045 (1988)
- [101] P. Kopietz, P. Scharf, M. S. Skaf, S. Chakravarty, *Europhys. Lett.*, **9**, 465 (1989)
- [102] J. Saunders, discussion privée
- [103] H. M. Bozler, Y. Gu, K. S. White, C. M. Gould, *Physica B*, **284**, 226 (2000)
- [104] H. M. Bozler, Y. Gu, K. S. White, C. M. Gould, *J. of Low Temp. Phys.*, **121**, 459 (2000)
- [105] H. M. Bozler, communication privée
- [106] D. S. Greywall, *Phys. Rev. B*, **47**, 309 (1993)
- [107] E. Collin, *Mémoire de DEA* (1998)
- [108] L. D. Landau, *Sov. Phys. JETP*, **3**, 920 (1956)
- [109] J. Bardeen, L. N. Cooper, J. R. Schrieffer, *Phys. Rev.*, **108**, 1175 (1957)
- [110] D. D. Osheroff, R. C. Richardson, D. M. Lee, *Phys. Rev. Lett.*, **28**, 885 (1972)
- [111] T. A. Alvesalo, Yu. D. Anufriyev, H. K. Collan, O. V. Lounasmaa, P. Wennerström, *Phys. Rev. Lett.*, **30**, 962 (1973)
- [112] G. Barton, M. A. Moore, *J Phys. C*, **7**, 4220 (1974)
- [113] P. W. Anderson, P. Morel, *Phys. Rev.*, **123**, 1911 (1961)
- [114] R. Balian, N. R. Werthamer, *Phys. Rev.*, **131**, 1553 (1963)
- [115] P. J. Hakonen, M. Krusius, M. M. Salomaa, R. H. Salmelin, J. T. Simola, *J. of Low Temp. Phys.*, **76**, 225 (1989)
- [116] H. Smith, F. W. Brinkman, S. Engelsberg, *Phys. Rev. B*, **15**, 199 (1977)
- [117] P. J. Hakonen, G. E. Volovik, *J. Phys. C*, **15**, L1277 (1982)
- [118] Berkeley WebSite : <http://eande.lbl.gov/ECS/aerogels>
- [119] guide IUPAC, *Pure and Applied Chemistry*, **57**, 603 (1985)
- [120] R. Vacher, T. Woignier, J. Pelous, *Phys. Rev. B*, **37**, 6500 (1988)
- [121] R. Vacher, T. Woignier, J. Phalippou, J. Pelous, E. Courtens, *Revue de Physique Appliquée*, **24**, C4-127 (1989)
- [122] A. Boukenter, D. Champagnon, J. Dumas, E. Duval, J. F. Quinson, J. L. Rousset, J. Serughetti, S. Etienne, C. Mai, *Revue de Physique Appliquée*, **24**, C4-133 (1989)
- [123] F. Devreux, J. P. Boilot, F. Chaput, B. Sapoval, *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 614 (1990)
- [124] G. Tastevin, P.-J. Nacher, G. Guillot, *J. of Low Temp. Phys.*, **121**, 773 (2000)
- [125] W. P. Halperin WebSite : <http://spindry.phys.nwu.edu>
- [126] Programme Fortran calculant $\Delta f(T)$, communication privée
- [127] H.-J. Lauter, communication privée
- [128] J. V. Porto, J. M. Parpia, *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 4667 (1995)
- [129] D. T. Sprague, T. M. Haard, J. B. Kycia, M. R. Rand, Y. Lee, P. J. Hamot, W. P. Halperin, *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 661 (1995)
- [130] B. Serin, *Superconductivity*, R. D. Parks, 925 (1969)
- [131] A. A. Abrikosov, L. P. Gorkov, *Sov. Phys. JETP*, **12**, 1243 (1961)
- [132] A. I. Larkin, *JETP Lett.*, **2**, 130 (1965)
- [133] J. W. Serene, D. Rainer, *Phys. Rep*, **101**, 221 (1983)
- [134] K. Matsumoto, J. V. Porto, L. Pollack, E. N. Smith, T. L. Ho, J. M. Parpia, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 253 (1997)
- [135] D. T. Sprague, T. M. Haard, J. B. Kycia, M. R. Rand, Y. Lee, P. J. Hamot, W. P. Halperin, *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 4568 (1996)

- [136] D. T. Sprague, T. M. Haard, J. B. Kycia, M. R. Rand, Y. Lee, P. J. Hamot, W. P. Halperin, *J. of Low Temp. Phys.*, **101**, 185 (1995)
- [137] H. Alles, J. J. Kaplinsky, P. S. Wootton, J. D. Reppy, J. R. Hook, *Physica B*, **255**, 1 (1998)
- [138] E. V. Thuneberg, S. K. Yip, M. Fogelström, J. A. Sauls, *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 2861 (1998)
- [139] G. Lawes, S. C. J. Kingsley, A. Golov, N. Mulders, J. V. Porto, J. M. Parpia, *J. of Low Temp. Phys.*, **121**, 567 (2000)
- [140] R. Hänninen, E. V. Thuneberg, *Physica B*, **284**, 303 (2000)
- [141] S. L. Sondhi, S. M. Girvin, J. P. Carini, D. Shahar, *Rev. Mod. Phys.*, **69**, 315 (1997)
- [142] H. Alles, J. J. Kaplinsky, P. S. Wootton, J. D. Reppy, J. H. Naish, J. R. Hook, *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 1367 (1999)
- [143] G. E. Volovik, *Exotic Properties of Superfluid ^3He* , World Scientific, (1992)
- [144] J. Yoon, D. Sergatskov, J. Ma, M. H. W. Chan, *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 1461 (1998)
- [145] Yu. M. Bunkov, A.-S. Chen, D. J. Cousins, H. Godfrin, *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 3456 (2000)
- [146] B. I. Barker, L. Polukhina, J. F. Poco, L. W. Hrubesh, D. D. Osheroff, *J. of Low Temp. Phys.*, **113**, 635 (1998)
- [147] A. G. Mikhalechuk, K. S. White, H. M. Bozler, C. M. Gould, *J. of Low Temp. Phys.*, **309**, 309 (2000)
- [148] H. Ramm, P. Pedroni, J. R. Thompson, H. Meyer, *J. of Low Temp. Phys.*, **2**, 539 (1970)
- [149] S. Triqueneaux, communication privée
- [150] M. H. W. Chan WebSite : <http://www.phys.psu.edu/faculty/ChanM>
- [151] H. Godfrin, G. Frossati, B. Hébral, D. Thoulouze, *Journal de Physique, Paris*, **41**, C7-275 (1980)
- [152] D. Candela, N. Masuhara, D. S. Sherrill, D. O. Edwards, *J. of Low Temp. Phys.*, **63**, 369 (1986)
- [153] A. C. Anderson, W. Reese, J. C. Wheatley, *Phys. Rev.*, **127**, 671 (1962)
- [154] A. S. Sachrajda, D. F. Brewer, W. S. Truscott, *J. of Low Temp. Phys.*, **56**, 617 (1984)
- [155] K.-U. Taubenreuther, R. Schuhmann, E. Nazaretski, L. Hristakos, H. Götz, G. Eska, J. Ruohio, *Physica B*, **284**, 295 (2000)
- [156] D. Rainer, J. A. Sauls, *J. of Low Temp. Phys.*, **110**, 525 (2000)
- [157] P. Venkataramani, J. A. Sauls, *Physica B*, **284**, 297 (2000)
- [158] G. Baramidze, G. Kharadze, *Physica B*, **284**, 305 (2000)
- [159] A. Schuhl, S. Maegawa, M. W. Meisel, M. Chapellier, *Phys. Rev. B*, **36**, 6811 (1987)
- [160] G. Eska, communication privée
- [161] P. C. Hammel, R. C. Richardson, *Phys. Rev. Lett.*, **52**, 1441 (1984)
- [162] D. J. Cousins, C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, A.-S. Chen, E. Collin, H. Godfrin, *Physica B*, **284**, 311 (2000)
- [163] L. Hristakos, H. Götz, G. Eska, *Int. Symp. QFS, Konstanz* (2001)
- [164] W. P. Halperin, D. T. Sprague, T. M. Haard, J. B. Kycia, Y. Lee, M. R. Rand, *Czechoslovak Journal of Physics, Proceedings LT21*, **46**, 2989 (1996)
- [165] Yu. M. Bunkov, communication privée
- [166] T. W. B. Kibble, *J. Phys. A*, **9**, 1387 (1976)
- [167] W. H. Zurek, *Nature*, **317**, 505 (1985)
- [168] C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, S. N. Fisher, H. Godfrin, G. R. Pickett, *Nature*, **382**, 332 (1996)
- [169] V. M. H. Ruutu, V. B. Eltsov, A. J. Gill, T. W. B. Kibble, M. Krusius, Yu. G. Makhlin, B. Plaçais, G. E. Volovik, Xu Wen, *Nature*, **382**, 334 (1996)
- [170] D. I. 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, T. Sloan, *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 1887 (1995)
- [171] P. Nozières, D. Saint James, *J. de Physique, Paris*, **43**, 1133 (1982)
- [172] D. I. Bradley, S. N. Fisher, M. R. Lowe, A. Rahm, *Int. Symp. QFS, Konstanz* (2001)
- [173] B. I. Barker, Y. Lee, L. Polukhina, D. D. Osheroff, L. W. Hrubesh, J. F. Poco, *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 2148 (2000)
- [174] D. D. Osheroff, M. C. Cross, D. S. Fisher, *Phys. Rev. Lett.*, **44**, 792 (1980)
- [175] S. N. Fisher, A. J. Hale, A. M. Guénault, G. R. Pickett, *Phys. Rev. Lett.*, **86**, 244 (2001)
- [176] INRIA Scilab WebSite : <http://www-rocq.inria.fr/scilab>
- [177] A. F. Andreev, *Sov. Phys. JETP*, **19**, 1228 (1964)
- [178] D. C. Carless, H. E. Hall, J. R. Hook, *J. of Low Temp. Phys.*, **50**, 605 (1983); errata **54**, 619 (1984)

- [179] D. C. Carless, H. E. Hall, J. R. Hook, et al. 1983 *J. of Low Temp. Phys.*, **50**, 583 (1983)
- [180] G. G. Stokes, *Mathematical and Physical Papers*, Cambridge University Press, **3**, 38 (1901)
- [181] S. N. Fisher, A. M. Guénault, C. J. Kennedy, G. R. Pickett, *Phys. Rev. Lett.*, **63**, 2566 (1989)
- [182] A. M. Guénault, V. Keith, C. J. Kennedy, S. G. Mussett, G. R. Pickett, *J. of Low Temp. Phys.*, **62**, 511 (1986)
- [183] C. Bäuerle, Yu. M. Bunkov, S. N. Fisher, H. Godfrin, *Phys. Rev. B*, **57**, 14 381 (1998)
- [184] F. Mayet, D. Santos, G. Perrin, Yu. M. Bunkov, H. Godfrin, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, **455**, 554 (2000)
- [185] H. M. Bozler, D. M. Bates, A. L. Thomson, *Phys. Rev. B*, **27**, 6992 (1983)
- [186] L. J. Friedman, S. N. Ytterboe, H. M. Bozler, A. L. Thomson, M. C. Cross, *Phys. Rev. Lett.*, **57**, 2943 (1986)
- [187] L. J. Friedman, A. L. Thomson, C. M. Gould, H. M. Bozler, P. B. Weichman, M. C. Cross, *Phys. Rev. Lett.*, **62**, 1635 (1989)
- [188] S. P. Timoshenko, *Théorie des Vibrations*, Librairie Polytechnique Béranger, 86
- [189] S. P. Timoshenko, *Résistance des Matériaux*, Dunod Technique, **1**, 234
- [190] L. D. Landau et E. M. Lifshitz, *Mécanique*, Editions Mir, 120
- [191] G. Stemme, *J. Micromech. Microeng.*, **1**, 113 (1991)
- [192] F. Ayela, J.-L. Bret, J. Chaussy, T. Fournier, E. Ménégaz, *Review of Scientific Instruments*, **71**, 2211 (2000)
- [193] R. N. Kleiman, G. Agnolet, D. J. Bishop, *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 2079 (1987)
- [194] R. E. Mikailovich, J. M. Parpia, *Phys. Rev. Lett.*, **68**, 3052 (1992)
- [195] A. Kraus, A. Erbe, R. H. Blick, *Nanotechnology*, **11**, 165 (2000)
- [196] H. Franco, *Thèse* (1985)
- [197] P. H. Schildberg, *Thèse* (1988)
- [198] S. N. Fisher, *Thèse* (1992)
- [199] D. Mouhanna, *Thèse* (1994)
- [200] K. D. Morhard, *Thèse* (1995)
- [201] C. Bäuerle, *Thèse* (1996)
- [202] O. Buu, *Thèse* (1998)
- [203] G. Misguich, *Thèse* (1999)
- [204] A.-S. Chen, *Thèse* (1999)
- [205] F. Gay, *Thèse* (2000)
- [206] S. Triqueneaux, *Thèse* (2001)
- [207] C. Gabay, *Thèse* (2001)
- [208] T. M. Haard, *Thèse* (2001)
- [209] R. C. Weast, M. J. Astle *Handbook of Chemistry and Physics*, 63rd Edition, CRC Press (1983)
- [210] F. Pobell, *Matter and Methods at Low Temperatures*, Springer (1996)
- [211] O.V. Lounasmaa, *Experimental Principles and Methods Below 1 K*, Academic Press (1974)
- [212] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, Fourth Edition, John Wiley & Sons, Inc. (1971)
- [213] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë, *Mécanique Quantique*, Hermann Sciences (1996)
- [214] P. A. M. Dirac, *The Principles of Quantum Mechanics*, Fourth Edition, Oxford @ the Clarendon Press (1974)
- [215] B. Diu, C. Guthmann, D. Lederer, B. Roulet, *Physique Statistique*, Hermann Sciences (1995)
- [216] R. K. Pathria, *Statistical Mechanics*, Pergamon Press (1991)
- [217] L.-P. Lévy, *Magnétisme et Supraconductivité*, InterEditions (1997)
- [218] D.C. Mattis, *The Theory of Magnetism*, Harper & Row (1965)

- [219] D. C. Mattis, *The Theory of Magnetism I*, Springer Verlag (1981)
- [220] D. Pines, P. Nozières, *The Theory of Quantum Fluids, Third Printing*, Vol. 1 Normal Fermi Liquids, Addison Wesley (1994)
- [221] J. Wilks, *The Properties of Liquid and Solid Helium*, Clarendon Press (1967)
- [222] D. Vollhardt, P. Wölfle, *The Superfluid Phases of Helium 3*, Taylor & Francis (1990)
- [223] W. P. Halperin, L. P. Pitaevskii, *Helium Three*, Elsevier Science Publishers (1990)
- [224] Yu. M. Bunkov, H. Godfrin, *Topological Defects and The Non-Equilibrium Dynamics of Symmetry Breaking Phase Transitions*, Kluwer Academic Publishers (2000)
- [225] C. Domb, M. S. Green, *Phase Transitions and Critical Phenomena*, Vol. 1, *Exacts Results*, Academic Press (1972)
- [226] C. Domb, M. S. Green, *Phase Transitions and Critical Phenomena*, Vol. 3, *Series Expansions for Lattice Models*, Academic Press (1974)
- [227] G. A. Baker, *Essentials of Padé Approximants*, Academic Press (1975)
- [228] A. Abragam, *Les Principes du Magnétisme Nucléaire*, Presses Universitaires de France (1961)

Résumé :

Les effets du désordre sont au confluent de nombreuses disciplines physiques. Nous avons étudié certains de leurs aspects sur le système modèle formé par l' ^3He à ultra-basse température. Notre étude expérimentale s'est faite en premier lieu sur l'aimant bidimensionnel formé par l' ^3He adsorbé sur graphite. Nous avons mis en évidence les propriétés magnétiques de la phase "liquide de spins", et avons pour la première fois fabriqué des "nanoclusters" ferromagnétiques de taille variable. Enfin, nous avons fixé une nouvelle borne supérieure à la température d'apparition de la superfluidité de l' ^3He à deux dimensions. En second lieu, nous nous sommes intéressés aux propriétés magnétiques de l' ^3He confiné dans l'aérogel. Nous avons mis en évidence le comportement des couches adsorbées, et étudié la phase liquide de Fermi confinée. Aux plus basses températures, nous avons observé les propriétés remarquables de la phase "intermédiaire", non-liquide de Fermi et non-superfluide, et avons étudié la phase superfluide stabilisée dans l'aérogel. Nous avons pu en définir la nature, et certaines propriétés jusqu'alors controversées. Notre analyse introduit pour la première fois sur ce système la notion de défaut topologique. L'ensemble de ces travaux a nécessité le développement de certaines techniques des ultra-basses températures, comme par exemple la thermométrie par fils vibrants. Nous avons par ailleurs participé à son application bolométrique, proposée pour le projet MaChe3.

Summary :

The effects of disorder are at the junction of many research fields in Physics. We have investigated some aspects of their properties using ^3He at ultralow temperatures. Our first series of experimental studies has been performed on two-dimensional magnetic systems made out of ^3He atoms adsorbed on graphite. We investigated the unusual magnetism of the spin-liquid phase, and obtained for the first time nuclear ferromagnetic nanoclusters of variable size. Finally, we have set a new upper limit to the superfluid transition temperature of two-dimensional ^3He using films of atomic thickness. We then concentrated on the magnetic properties of ^3He confined in aerogel. The properties of the adsorbed solid layers as well as those of the confined Fermi liquid have been investigated. At the lowest temperatures, we have observed the remarkable properties of the "intermediate" phase, non-Fermi Liquid and non-superfluid, and we have studied the superfluid phase of ^3He stabilised inside aerogel. We were able to infer its nature, and to establish some of its properties which so far had been controversial. In our analysis we introduce the concept, applied for the first time to this system, of topological defects. During this work, several ultra-low temperature techniques have been developed, like vibrating wire thermometry, which we have applied in bolometric detectors in the project MaChe3.

Mots clefs :

désordre, ^3He , magnétisme nucléaire, graphite, aérogel, ultra-basse température, désaimantation nucléaire, résonance magnétique nucléaire, fils vibrants, dimmensionnalité, adsorption, échange multiple, liquide de spins, ferromagnétisme, clusters, effet de taille finie, onde de spin, magnon, superfluidité, liquide de Fermi, diffusion de spin, échange rapide, texture, défaut topologique.

