

# Thèse

présentée par

**Klaus-Dieter Morhard**

pour obtenir le titre de docteur  
de l'université Joseph Fourier – Grenoble 1  
Spécialité: physique

## Diagramme de phases de l'<sup>3</sup>He adsorbé sur le graphite

Date de soutenance: 30.1.1995

Composition du jury: B. Castaing (Président)

M. Chapellier

P.J. Nacher

J. Treiner

H. Godfrin

H.J. Lauter (Invité)

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



# Remerciements

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

Je remercie Monsieur B. Castaing, professeur de l'Université Joseph Fourier, de l'honneur qu'il m'a fait en présidant le jury de cette thèse. Je remercie également Monsieur M. Chapellier, Ingénieur CEA Orsay, Monsieur P.J. Nacher, Docteur d'Etat CNRS Paris, Monsieur J. Treiner, Directeur de recherche CNRS Orsay, et Monsieur H.J. Lauter, Docteur ILL Grenoble, pour la participation au jury.

Je tiens à remercier H. Godfrin qui a dirigé ce travail avec beaucoup d'enthousiasme et de compétence. Au cours de ces années, j'ai beaucoup appris avec lui autant sur le plan expérimental que théorique. De plus, il a toujours su m'encourager pendant les moments difficiles de cette thèse. Il est difficile d'imaginer une meilleure direction de thèse.

C'est avec plaisir que je remercie les autres membres de notre groupe, C. Bäuerle, J. Bossy, Y. Bounkov, S. Fisher et R.R. Rapp, qui ont tous contribué à l'esprit amical et enthousiaste de ce groupe. La collaboration avec eux était toujours très agréable.

Mes remerciements vont aussi à tous les autres membres du laboratoire, trop nombreux pour être énumérés ici, pour l'accueil amical et l'aide efficace qu'ils m'ont apporté en toutes occasions.

Enfin je tiens à remercier mes amis Carley, Katharina, Christopher, Olivier, Martin et tout particulièrement Beate pour le temps que nous avons passé ensemble.



## Résumé

Des systèmes quantiques bi-dimensionnels, obtenus par l'adsorption physique de  $^3\text{He}$  sur le graphite, ont été étudiés à très basses températures par des techniques de RMN. Un thermomètre à courbe de fusion de  $^3\text{He}$  a été développé et testé; la température est mesurée dans la gamme des millikelvin sous champ magnétique avec une haute précision. Le spectromètre de RMN à haute sensibilité et très basse puissance a été optimisé afin d'atteindre un très bon rapport signal / bruit.

Dans une première série de mesures, la susceptibilité nucléaire a été mesurée pour douze taux de couverture en sous-monocouche pour des températures comprises entre 5 et 600 mK. A basses densités le film est un liquide homogène en 2D. Par contre, une quantité non-négligeable des atomes de  $^3\text{He}$  est localisée par des inhomogénéités du substrat; nos mesures quantitatives montrent qu'elle augmente de 2% à 4% d'une monocouche. Cet effet exige des corrections importantes de la densité du liquide. La température de Fermi effective du liquide a été déterminée en fonction du taux de couverture; elle décroît pour des densités supérieures à  $0.01 \text{ atomes}/\text{Å}^2$ . A des densités du liquide élevées, la susceptibilité est renforcée d'un facteur de dix par rapport à la valeur du gaz idéal. Le paramètre de Landau  $F_0^a$ , déduit de nos mesures et des résultats antérieurs de la capacité calorifique, est en accord avec le modèle des paramagnons ainsi qu'avec le modèle des fermions presque localisés. A  $0.0449 \text{ atomes}/\text{Å}^2$  on observe le début d'une coexistence entre le liquide et le solide commensurable pour un échantillon de Grafoil; pour un substrat de graphite parfait on estime une valeur de  $0.0434 \text{ atomes}/\text{Å}^2$ . La coexistence est caractérisée par une croissance linéaire (décroissance linéaire) de la quantité solide (quantité liquide) et par une température de Fermi constante de la phase liquide. Finalement la phase liquide disparaît complètement à  $0.0646 \text{ atomes}/\text{Å}^2$  et le film est entièrement dans la phase solide commensurable.

Dans une deuxième série de mesures, la susceptibilité nucléaire a été mesurée pour douze taux de couverture dans la deuxième couche jusqu'au début de la solidification, pour des températures comprises entre 3.5 et 300 mK. La densité de la première couche est constante à  $0.108 \text{ atomes}/\text{Å}^2$ , en très bon accord avec de résultats obtenus par diffusion de neutrons. La température de Fermi effective du liquide en deuxième couche est relativement constante dans une large plage de densités, alors qu'à des densités du liquide élevées elle diminue fortement. Par conséquent, à des densités du liquide élevées le facteur de renforcement de la susceptibilité est très important: il atteint des valeurs de l'ordre de cinquante. Ce comportement pourrait être expliqué soit par un effet de fermions très fortement corrélés, soit par le peuplement d'un deuxième disque de Fermi. Le début de la solidification de la deuxième couche est observé à  $0.180 \text{ atomes}/\text{Å}^2$ . L'origine des différences importantes entre les échelles de couverture de différents laboratoires est mise en évidence. Les corrections (de l'ordre de 7%) conduisent à une détermination plus précise du diagramme de phases de  $^3\text{He}$  adsorbé sur le graphite.

## Abstract

Two-dimensional quantum systems, obtained by physical adsorption of  $^3\text{He}$  on graphite, were studied at very low temperatures by NMR techniques. A  $^3\text{He}$  melting curve thermometer was developed and tested; as a result the temperature in the low millikelvin region is measured with high precision in the presence of magnetic fields. The high sensitivity and very low power continuous wave spectrometer was optimized in order to obtain very good signal to noise ratios at millikelvin temperatures.

In a first set of measurements, the nuclear magnetic susceptibility was measured for twelve submonolayer coverages in the temperature range 5 mK–600 mK. At low areal densities, the film is in a 2D homogeneous liquid state. Some  $^3\text{He}$  atoms, however, are localized by substrate heterogeneities; our quantitative measurements show that their amount increases from 2% to 4% of a monolayer thereby leading to significant corrections of the fluid phase density. The effective Fermi temperature of the liquid has been determined as a function of coverage; it decreases continuously for densities larger than 0.01 atoms/ $\text{\AA}^2$ . At high fluid densities, the susceptibility is enhanced by one order of magnitude with respect to the ideal gas value. The Landau parameter  $F_0^2$  inferred from our measurements and earlier heat capacity results is found to be in agreement with both the paramagnon and the almost localized fermion model. At 0.0449 atoms/ $\text{\AA}^2$ , a liquid-commensurate solid coexistence region begins on a Grafoil sample; 0.0434 atoms/ $\text{\AA}^2$  is estimated for a perfect graphite surface. The coexistence is characterized by a linear increase (linear decrease) of the solid (liquid) fraction and a constant Fermi temperature of the liquid phase. Finally at 0.0646 atoms/ $\text{\AA}^2$ , the liquid phase disappears completely and the film consists entirely of a commensurate solid.

In a second set of measurements, the nuclear magnetic susceptibility was measured for twelve coverages for second layer coverages up to the onset of the solidification of the second layer in the temperature range 3.5 mK–300 mK. The density of the first layer is constant at about 0.108 atoms/ $\text{\AA}^2$ , in agreement with earlier neutron scattering results. The effective Fermi temperature of the second layer liquid is almost constant in a large density range, whereas at high liquid densities it decreases sharply. As a consequence, at high liquid densities the susceptibility enhancement factor rises drastically up to a value of fifty. This behavior might be attributed either to very strongly correlated fermions or to the beginning of the filling of a second Fermi disc. The onset of the solidification of the second layer is observed to be at 0.180 atoms/ $\text{\AA}^2$ . Substantial differences have been observed between coverage scales used in different laboratories. The corrected coverages (typically by 7%) lead to a more precise phase diagram of  $^3\text{He}$  adsorbed on graphite.

# Table des matières

|          |  |           |
|----------|--|-----------|
| <b>1</b> | <b>Introduction</b>  | <b>5</b>  |
| <b>2</b> | <b>Le dispositif expérimental</b>                                  | <b>7</b>  |
| 2.1      | Le réfrigérateur à dilution . . . . .                              | 7         |
| 2.2      | La platine de régulation de température . . . . .                  | 9         |
| 2.3      | La cellule expérimentale . . . . .                                 | 11        |
| <b>3</b> | <b>Thermométrie</b>  | <b>15</b> |
| 3.1      | Introduction . . . . .   | 15        |
| 3.2      | Le thermomètre à CMN . . . . .                                     | 15        |
| 3.3      | Le thermomètre à courbe de fusion d <sup>3</sup> He . . . . .      | 17        |
| 3.3.1    | Introduction . . . . .   | 17        |
| 3.3.2    | Le dispositif du thermomètre à courbe de fusion . . . . .          | 18        |
| 3.3.3    | Etalonnage en pression . . . . .                                   | 19        |
| 3.3.4    | Sensibilité du thermomètre à courbe de fusion . . . . .            | 20        |
| 3.4      | Le thermomètre de Carbone . . . . .                                | 22        |
| 3.5      | Echelles de températures . . . . .                                 | 24        |
| 3.5.1    | Introduction . . . . .   | 24        |
| 3.5.2    | Echelle de températures de la première expérience . . . . .        | 24        |
| 3.5.3    | Echelle de températures de la deuxième expérience . . . . .        | 28        |
| <b>4</b> | <b>Physique des surfaces</b>                                       | <b>32</b> |
| 4.1      | Adsorption physique d <sup>3</sup> He sur Grafoil . . . . .        | 32        |
| 4.2      | Echelles de couvertures et isothermes d'adsorption . . . . .       | 34        |
| 4.3      | Préparation des échantillons . . . . .                             | 36        |
| <b>5</b> | <b>Résonance magnétique nucléaire (RMN)</b>                        | <b>37</b> |
| 5.1      | Introduction . . . . .   | 37        |
| 5.2      | Le spectromètre à RMN . . . . .                                    | 38        |
| 5.3      | Mesures des raies RMN . . . . .                                    | 40        |
| 5.4      | Bruit et sensibilité . . . . .                                     | 45        |
| 5.5      | Le système d'acquisition de données . . . . .                      | 47        |
| 5.6      | Signal de RMN des protons . . . . .                                | 48        |
| <b>6</b> | <b>Le diagramme de phases au-dessous de la phase commensurable</b> | <b>51</b> |
| 6.1      | Introduction . . . . .   | 51        |
| 6.2      | Mesures . . . . .  | 52        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 6.3      | Les sites de forte adsorption . . . . .  | 57         |
| 6.4      | Le liquide de Fermi de la première couche . . . . .  | 58         |
| 6.4.1    | Introduction . . . . .   | 58         |
| 6.4.2    | Résultats expérimentaux . . . . .  | 59         |
| 6.4.3    | Comparaison avec des théories du liquide de Fermi . . . . .  | 61         |
| 6.5      | Le début de la région de coexistence . . . . .   | 66         |
| 6.6      | La solidification et le solide lacunaire . . . . .   | 67         |
| 6.7      | Largeur des raies RMN . . . . .  | 68         |
| 6.8      | Conclusion . . . . .   | 70         |
| <b>7</b> | <b>Le diagramme de phases de la deuxième couche jusqu'à la solidification</b>  | <b>72</b>  |
| 7.1      | Introduction . . . . .   | 72         |
| 7.2      | Mesures . . . . .  | 72         |
| 7.3      | Hypothèse de la solidification dans un solide antiferromagnétique . . . . .  | 78         |
| 7.4      | Le liquide de Fermi de la deuxième couche . . . . .  | 79         |
| 7.4.1    | Introduction . . . . .   | 79         |
| 7.4.2    | Discussion des résultats expérimentaux . . . . .   | 79         |
| 7.4.3    | Comparaison avec des résultats théoriques . . . . .  | 81         |
| 7.5      | La solidification de la deuxième couche . . . . .  | 85         |
| 7.6      | Conclusion . . . . .   | 86         |
| <b>8</b> | <b>Conclusions et perspectives</b>   | <b>88</b>  |
| <b>A</b> | <b>NMR measurements on <math>^3\text{He}</math> adsorbed on Grafoil at submonolayer coverages and millikelvin temperatures</b> | <b>90</b>  |
| <b>B</b> | <b>NMR of adsorbed <math>^3\text{He}</math>: Surface physics at millikelvin temperatures</b>                                   | <b>99</b>  |
| <b>C</b> | <b>Exchange interactions in multilayer <math>^3\text{He}</math> films adsorbed on graphite</b>                                 | <b>111</b> |
| <b>D</b> | <b>Condensation of <math>^3\text{He}</math> in 2 1/2 dimensions and indirect exchange in adsorbed films</b>                    | <b>113</b> |

# Liste des figures

|      |   |    |
|------|---|----|
| 2.1  | Le diagramme de phases des solutions d' $^3\text{He}/^4\text{He}$ .             | 7  |
| 2.2  | Schéma du réfrigérateur à dilution.   | 8  |
| 2.3  | Le dispositif expérimental.   | 10 |
| 2.4  | Résistances thermiques  | 11 |
| 2.5  | Résistance de Kapitza   | 12 |
| 2.6  | Photo de la boîte à mélange et de la cellule                                    | 13 |
| 2.7  | Photo de la cellule   | 14 |
| 3.1  | L'inductance mutuelle du thermomètre à CMN                                      | 16 |
| 3.2  | Ecart relatifs de l'inductance mutuelle   | 17 |
| 3.3  | Courbe de fusion d' $^3\text{He}$   | 18 |
| 3.4  | Le dispositif expérimental du thermomètre à courbe de fusion d' $^3\text{He}$ . | 19 |
| 3.5  | Pression en fonction de $C_{\text{réf}}/C$                                      | 21 |
| 3.6  | Ecart relatifs de la pression   | 21 |
| 3.7  | Résistance Matsushita $68 \Omega$   | 23 |
| 3.8  | Etalonnage par rapport au thermomètre à CMN                                     | 25 |
| 3.9  | Diagramme des résistances thermiques  | 25 |
| 3.10 | L'inverse de l'aimantation (radiofréquence)                                     | 26 |
| 3.11 | Test d'un chauffage parasite  | 27 |
| 3.12 | Ecart de la pression (comparaison)  | 29 |
| 3.13 | Etalonnage par rapport au thermomètre à CMN                                     | 30 |
| 3.14 | Etalonnage par rapport au thermomètre à CMN ( $\Delta = -0.11\text{mK}$ )       | 30 |
| 3.15 | Test d'un chauffage parasite  | 31 |
| 4.1  | Potentiel d'adsorption d' $^3\text{He}$ sur graphite                            | 33 |
| 4.2  | La phase commensurable pure.  | 35 |
| 4.3  | Isotherme d'adsorption  | 36 |
| 5.1  | Diagramme de blocs du système de RMN  | 39 |
| 5.2  | Circuit d'injection du Q-mètre  | 39 |
| 5.3  | Circuit d'opposition du Q-mètre   | 40 |
| 5.4  | Circuit du préamplificateur   | 41 |
| 5.5  | Stabilité à long terme du spectromètre  | 42 |
| 5.6  | Raie RMN ajustée avec une Lorentzienne  | 43 |
| 5.7  | Raie RMN ajustée avec une Lorentzienne  | 44 |
| 5.8  | Influence du balayage   | 45 |
| 5.9  | Largeur des raies RMN en fonction du champ magnétique                           | 46 |
| 5.10 | Raie RMN des protons  | 49 |

|      |   |    |
|------|---|----|
| 5.11 | Influence du signal des protons sur le signal d' $^{13}\text{He}$ . . . . .   | 49 |
| 5.12 | Refroidissement des protons . . . . .   | 50 |
| 5.13 | Constante de temps des protons . . . . .                                      | 50 |
| 6.1  | Diagramme de phases de la première couche . . . . .                           | 51 |
| 6.2  | Aimantation du liquide et du solide . . . . .                                 | 53 |
| 6.3  | Produit de l'aimantation et de la température . . . . .                       | 53 |
| 6.4  | Graphe des données en $\chi T/C_0$ en fonction de $1/T$ . . . . .             | 54 |
| 6.5  | Quantité du solide $n_{\text{solide}}$ en fonction de la densité . . . . .    | 56 |
| 6.6  | Température de Fermi $T_F^{**}$ en fonction de la densité . . . . .           | 56 |
| 6.7  | Potentiel chimique en fonction du taux de couverture . . . . .                | 58 |
| 6.8  | Susceptibilité normalisée en fonction de la température . . . . .             | 59 |
| 6.9  | Facteur de renforcement de la susceptibilité . . . . .                        | 60 |
| 6.10 | Masse effective (densité corrigée) . . . . .                                  | 62 |
| 6.11 | Masse effective en fonction du renforcement de la susceptibilité . . . . .    | 65 |
| 6.12 | $1+F_0^a$ en fonction de l'inverse de la masse effective . . . . .            | 65 |
| 6.13 | Isotherme de la chaleur spécifique . . . . .                                  | 68 |
| 6.14 | Largeur des raies RMN en fonction de la densité . . . . .                     | 69 |
| 6.15 | Largeur des raies RMN en fonction de la température . . . . .                 | 70 |
| 7.1  | Aimantation d'un film en deuxième couche . . . . .                            | 73 |
| 7.2  | Expressions d'ajustement différentes . . . . .                                | 74 |
| 7.3  | Graphe des données à bas taux de couverture . . . . .                         | 75 |
| 7.4  | Graphe des données à haut taux de couverture . . . . .                        | 75 |
| 7.5  | Température de Fermi en fonction de la densité . . . . .                      | 76 |
| 7.6  | Densité du solide en fonction de la densité totale . . . . .                  | 77 |
| 7.7  | Densité du solide (liquide) de la première et de la deuxième couche . . . . . | 77 |
| 7.8  | Hypothèse d'un solide antiferromagnétique . . . . .                           | 78 |
| 7.9  | Facteur de renforcement de la susceptibilité . . . . .                        | 80 |
| 7.10 | Masse effective (densité corrigée) . . . . .                                  | 81 |
| 7.11 | Facteur de renforcement de la susceptibilité calculé . . . . .                | 83 |
| 7.12 | $1+F_0^a$ en fonction de l'inverse de la masse effective . . . . .            | 83 |
| 7.13 | Masse effective en fonction du renforcement de la susceptibilité . . . . .    | 84 |
| 7.14 | Remplissage d'un disque de Fermi . . . . .                                    | 85 |

# Chapitre 1

## Introduction

Des films d' $^3\text{He}$  adsorbés sur un substrat (graphite) à basses températures représentent des systèmes modèles des solides et des fluides quantiques en deux dimensions. Le fait que l'on puisse varier expérimentalement la densité surfacique de ces films dans une large plage permet d'étudier des systèmes très différents: différentes phases solides dont les interactions magnétiques évoluent de l'antiferromagnétisme au ferromagnétisme, des gaz quantiques sans interactions, et en particulier des liquides de Fermi. La physique de l' $^3\text{He}$  liquide à deux dimensions se situe dans le cadre plus général de l'étude des fermions fortement corrélés. Cet aspect de la physique de la matière condensée fait aujourd'hui l'objet d'études théoriques et expérimentales, motivées en particulier par la découverte récente de la supraconductivité à haute température critique. Les systèmes étudiés ici constituent des "systèmes modèles" conceptuellement simples; leur étude devrait permettre d'affiner les théories actuelles des fermions en forte corrélation, comme une étape préliminaire à la résolution des problèmes complexes issus de la physique des matériaux.

Il y a trois méthodes de mesure principales pour l'étude des films d' $^3\text{He}$  adsorbés à basses températures: des mesures de chaleur spécifique, de résonance magnétique nucléaire (RMN) et de diffusion des neutrons. La chaleur spécifique est sensible à la présence de phases liquides et de phases solides avec une interaction magnétique, alors que la RMN est plutôt sensible à l'existence de phases solides. Par des mesures de diffusion de neutrons on obtient directement le paramètre de maille des phases solides. Ces techniques différentes fournissent donc des informations complémentaires sur les propriétés de l' $^3\text{He}$  bi-dimensionnel.

Le graphite exfolié a été utilisé pour la première fois par Duval et Thomy dans leurs mesures des isothermes d'adsorption [1]. Le groupe de Seattle a été le premier à étudier le diagramme de phases de l' $^3\text{He}$  adsorbé sur le graphite; en fait ils ont introduit le graphite comme substrat "idéalement" uniforme [2]. La chaleur spécifique a été mesurée dans la gamme de températures comprise entre 50 mK et 7 K pour des films entre la sous-monocouche et des multicouches. Des phases gazeuses et solides bi-dimensionnelles ont été identifiées par ces mesures qui sont jusqu'à aujourd'hui les seules dans le domaine des hautes températures. Des mesures de RMN à très basses températures ont été faites à Grenoble pour étudier l'ordre nucléaire des phases solides bi-dimensionnelles. Des effets d'échange quantique importants ont été trouvés [3, 4]. En augmentant la densité du solide de la deuxième couche, les interactions magnétiques évoluent d'un régime antiferromagnétique à un régime ferromagnétique (voir aussi les annexes C et D et les références citées). Des mesures de chaleur spécifique à plus basses températures ont été

faites à Bell Laboratories, complétant le diagramme de phases dans le domaine de basses températures [5, 6]. Les liquides de Fermi dans l'état dégénéré ont été étudiés, ainsi que l'échange magnétique des phases solides. Des mesures de diffusion de neutrons ont été faites à Grenoble [7]. Plus récemment des mesures de RMN ont été effectuées dans la gamme du millikelvin sur l'échange magnétique dans les films solides, ainsi que sur le graphite pré-enduit par le groupe à Londres [8], et pour des températures jusqu'à 0.1 mK par le groupe à Stanford [9]. Des articles de revue récents peuvent être trouvés dans les références [10, 11, 12, 13].

Le but de ce travail était, sur le plan instrumental, de mettre au point un système permettant la mesure précise par RMN de l'aimantation nucléaire des atomes adsorbés sur le graphite et, sur le plan de la physique, d'étudier en détail le diagramme de phases de la première et de la deuxième couche d' $^3\text{He}$  adsorbé sur le graphite. L'intérêt principal était, d'une part, de déterminer la solidification de la première et de la deuxième couche par des méthodes de RMN et, d'autre part, d'étudier en détail les propriétés du liquide de Fermi de la première et de la deuxième couche. Nous avons été confrontés au cours de ce travail au problème difficile des échelles de taux de couverture, qui rendaient jusqu'à présent la comparaison de résultats obtenus dans différents laboratoires très qualitative. La discussion des résultats qui nous ont permis d'établir une échelle de taux de couverture consistante peut sembler très technique; la meilleure précision des mesures actuelles la rend incontournable.

La thèse est divisée en huit chapitres:

- Dans le chapitre 2 le dispositif expérimental ainsi que la cellule expérimentale seront décrits.
- Dans le chapitre 3 les thermomètres utilisés dans notre expérience seront discutés, en particulier le thermomètre à courbe de fusion. Ensuite l'échelle de températures sera discutée pour les deux expériences.
- Dans le chapitre 4 le potentiel d'adsorption pour  $^3\text{He}$  sur Grafoil sera brièvement discuté. Ensuite l'échelle de couverture sera établie et la préparation des échantillons sera décrite.
- Dans le chapitre 5 la résonance magnétique nucléaire (RMN) sera introduite comme méthode de mesure. Les propriétés du spectromètre de RMN en continu, en particulier en ce qui concerne le bruit et la sensibilité, les conditions de mesure ainsi que le système d'acquisition de données seront discutés.
- Dans le chapitre 6 on étudie expérimentalement le diagramme de phases de la première couche d' $^3\text{He}$  au-dessous de la phase commensurable, en particulier en ce qui concerne les sites de forte adsorption, les propriétés du liquide de Fermi en deux dimensions et la solidification dans la phase commensurable.
- Dans le chapitre 7 on étudie expérimentalement le diagramme de phases de la deuxième couche d' $^3\text{He}$  en ce qui concerne les propriétés du liquide de Fermi de la deuxième couche et la solidification de la deuxième couche.
- Les résultats seront résumés dans le chapitre 8.

# Chapitre 2

## Le dispositif expérimental

### 2.1 Le réfrigérateur à dilution

Le principe de fonctionnement des réfrigérateurs à dilution en général a été décrit par exemple dans les références [14, 15], aussi bien que le réfrigérateur à dilution utilisé ici [16]. Par conséquent, la description donnée ici sera très brève.

La figure 2.1 représente le diagramme de phases température vs. concentration en  $^3\text{He}$  d'une solution liquide d' $^3\text{He}/^4\text{He}$ . La solution est superfluide au-dessous de la ligne  $\lambda$ ; au-dessous de la ligne de coexistence, la solution se sépare en deux phases; une phase riche en  $^3\text{He}$  ("concentré"), dont la concentration en  $^3\text{He}$  tend vers l'unité à  $T = 0$ , et une phase moins riche en  $^3\text{He}$  ("dilué"), dont la concentration en  $^3\text{He}$  tend vers une valeur constante de 6.4 %. L'enthalpie de la phase concentrée est inférieure à celle de la phase diluée même à basses températures.

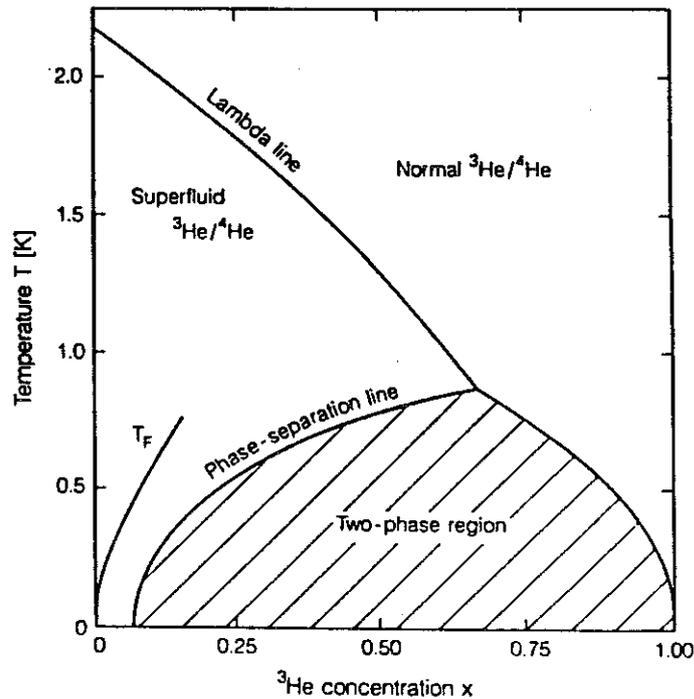


Figure 2.1: Le diagramme de phases des solutions d' $^3\text{He}/^4\text{He}$ .

Le principe de la réfrigération à dilution réside alors dans le transfert d'atomes d' $^3\text{He}$  de la phase concentrée vers la phase diluée. Par ce processus la température est diminuée. La puissance de réfrigération est donné par

$$\dot{Q}(T) = \dot{n}_3 [H_{dil}(T) - H_{conc}(T)] \quad (2.1)$$

ou  $\dot{n}_3$  est le débit molaire d' $^3\text{He}$ ,  $H_{dil}$  est l'enthalpie molaire de la phase diluée et  $H_{conc}$  est l'enthalpie molaire de la phase concentrée. L'interface entre les deux phases est donc l'endroit où la réfrigération a lieu. L'enceinte contenant cette interface est appelé la boîte à mélange (voir figure 2.2).

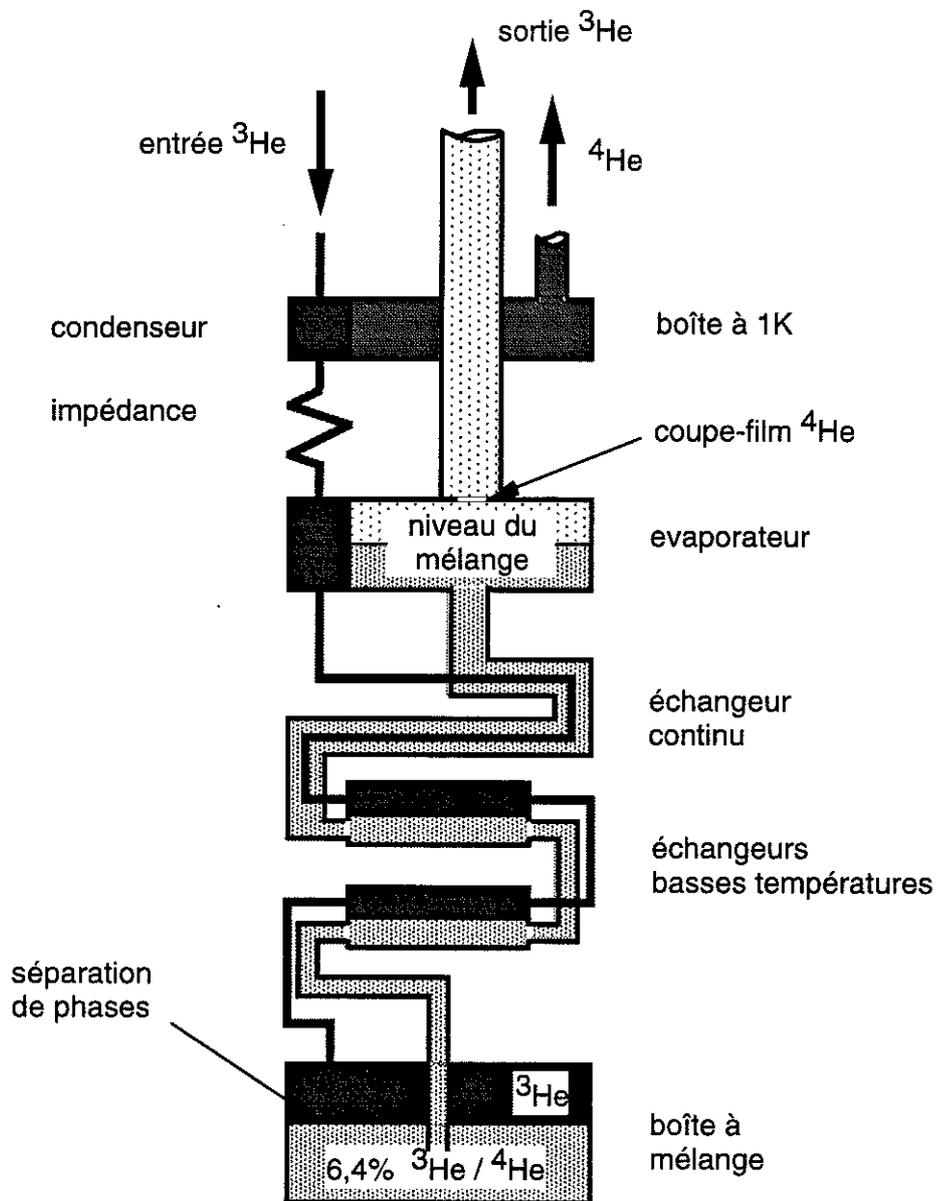


Figure 2.2: Schéma du réfrigérateur à dilution.

Pour obtenir une circulation d' $^3\text{He}$  à travers l'interface, il suffit d'enlever de l' $^3\text{He}$  de la phase diluée. Ceci est obtenu par distillation du mélange dilué dans l'évaporateur, une enceinte chauffée à environ 0.7 Kelvin. Le gaz pompé est très riche en  $^3\text{He}$ , puisque la tension de vapeur de l' $^3\text{He}$  est beaucoup plus élevée que celle de l' $^4\text{He}$  à cette température. Il y a donc un gradient de pression osmotique entre la boîte à mélange et l'évaporateur et par conséquent un débit d' $^3\text{He}$  de la boîte à mélange vers l'évaporateur.

Afin d'assurer une opération en continu, il faut réinjecter dans le système l' $^3\text{He}$  qui a été pompé, ce qui constitue une charge thermique pour la boîte à mélange. Pour diminuer cette charge thermique, on utilise le dilué froid pour refroidir le concentré dans plusieurs échangeurs.

La température minimale d'un réfrigérateur à dilution est déterminée par l'équilibre entre les apports de chaleur à la boîte à mélange et la puissance frigorifique du processus à dilution:

$$\dot{Q}_e + \dot{n}_3[H_{conc}(T_N) - H_{dil}(T_M)] = [H_{dil}(T_M) - H_{conc}(T_M)] \quad (2.2)$$

ou  $\dot{Q}_e$  est la fuite thermique externe et  $T_N$  et  $T_M$  sont les températures du dernier échangeurs et celle de la boîte à mélange. Elle ne dépend que du débit, qui, à son tour, peut être réglé par le chauffage de l'évaporateur. La température minimale du réfrigérateur à dilution utilisé ici est de 3.3 mK et est atteinte à un débit de 140  $\mu\text{moles/s}$ .

## 2.2 La platine de régulation de température

Contrairement aux expériences faites auparavant, nous avons utilisé une cellule expérimentale placée en dehors de la boîte à mélange. L'inconvénient de ce montage est un écrantage thermique dégradé. Il présente par contre l'avantage de supprimer le signal de bruit de fond de RMN d' $^3\text{He}$  provenant de la boîte à mélange. Le dispositif est montré dans la figure 2.3. La platine en cuivre est thermiquement couplée par une résistance thermique étalonnée à un échangeur en argent fritté dans la boîte à mélange et donc à la boîte à mélange elle-même. Sur la base en cuivre se trouvent le thermomètre à courbe de fusion (voir chapitre 3.2), une résistance de carbone Matsushita 68  $\Omega$  (voir chapitre 3.3) et une résistance de chauffage. La cellule expérimentale contenant l'échantillon de Grafoil est thermiquement couplée à la platine en cuivre.

L'ensemble de la platine en cuivre et de la cellule expérimentale n'étant que faiblement couplé thermiquement à la boîte à mélange, la température peut être contrôlée en régulant la puissance dissipée dans la résistance située sur la platine en cuivre. Ceci permet d'atteindre l'équilibre thermique avec une constante de temps courte par rapport à celle du réfrigérateur, la capacité calorifique de la boîte à mélange étant beaucoup plus grande que celle de la platine en cuivre. Ce découplage est permis par la résistance thermique, qui consiste en un fil de cuivre d'une longueur  $l = 1$  cm et d'une section  $A = 1$  mm<sup>2</sup>. La résistance thermique de ce fil de cuivre est donnée par:

$$R_{th} = \frac{l}{\kappa A} \quad (2.3)$$

Avec la conductivité thermique du cuivre  $\kappa = 100$  T W/(Km) on obtient comme valeur calculée:

$$R_{th} = \frac{100}{T} \frac{K}{W} \quad (2.4)$$

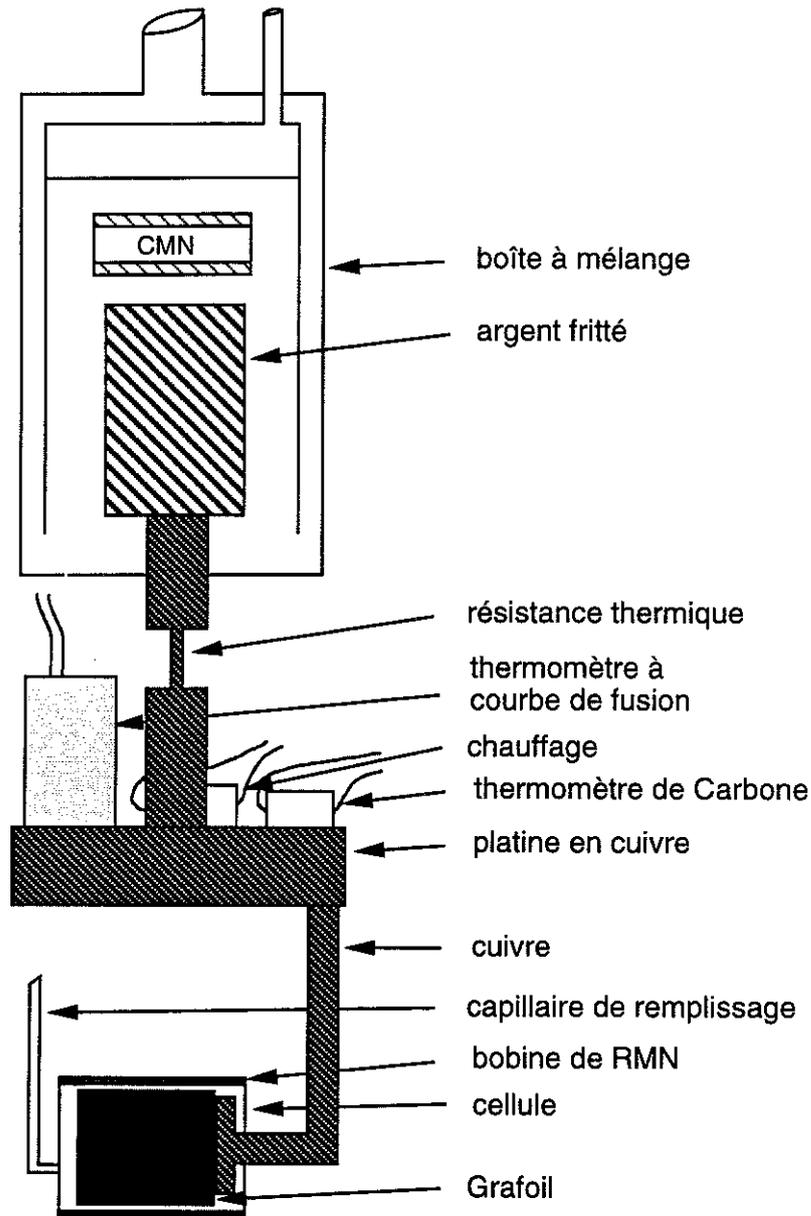


Figure 2.3: Le dispositif expérimental.

Cette résistance thermique a aussi été mesurée en chauffant la platine en cuivre et en mesurant la température de la boîte à mélange et celle de la platine en cuivre. La situation est compliquée du fait de la résistance de Kapitza qui devient importante à basses températures. Pour faciliter le calcul, on ne considère qu'une résistance de Kapitza  $R_K$  et une résistance thermique ( $R_{th} = \alpha/T$ ) en série  $R_{tot} = R_{th} + R_K$  (figure 2.4). A des températures au-dessus de 10 mK, la résistance de Kapitza est négligeable ( $R_K = 0$ ;  $T_i = T_f$ ) et la résistance totale est simplement la résistance thermique du cuivre. Le coefficient  $2\alpha$  est déterminé avec l'équation

$$T_c^2 - T_f^2 = 2\alpha \dot{Q} \quad (2.5)$$

La mesure détermine  $2\alpha = (760 \pm 20) K^2/W$  ce qui donne pour la résistance thermique  $380/T [K/W]$ , une valeur en accord raisonnable avec la valeur calculée.

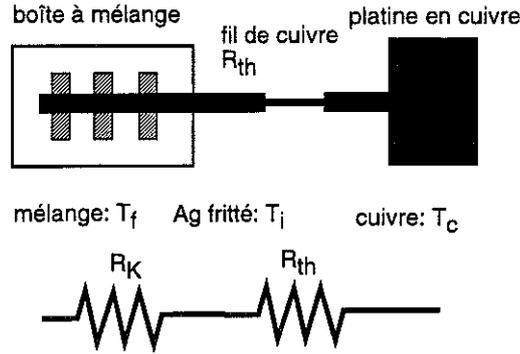


Figure 2.4: Les résistances thermiques entre le thermomètre à courbe de fusion et le thermomètre à CMN.

A des températures inférieures à 10 mK, la résistance de Kapitza n'est plus négligeable, mais maintenant la température intermédiaire peut être calculée avec

$$T_c^2 - T_i^2 = 2\alpha \dot{Q} \quad (2.6)$$

puisque  $2\alpha$  est déjà déterminé. La résistance de Kapitza est donnée par

$$R_K = \frac{T_i - T_f}{\dot{Q}} \quad (2.7)$$

et est représentée en fonction de la température intermédiaire sur la figure 2.5. Les données impliquent pour la résistance de Kapitza

$$R_K = \frac{0.2}{T^2} \left[ \frac{K^3}{W} \right] \quad (2.8)$$

(trait hachuré sur la figure 2.5), mais une proportionnalité à  $T^{-3}$  serait également conforme avec les données (trait plein). La supposition que la résistance de Kapitza n'est pas négligeable au-dessous de 10 mK est confirmée par le fait qu'à 5 mK  $R_{th} = 8 \cdot 10^4 K/W$  et  $R_K = 8 \cdot 10^3 K/W$ .

La constante de temps thermique de la platine en cuivre a été mesurée en appliquant un pulse de chaleur à la platine en cuivre et en analysant la relaxation. Elle est d'environ 10 s à 200 mK et 5 min à 5 mK.

## 2.3 La cellule expérimentale

L'échantillon est composé de 26 feuilles de Grafoil [17] d'une longueur de 2.3 cm et d'une épaisseur de 0.4 mm. Deux feuilles de Grafoil ont été collées par diffusion sur une feuille de cuivre donnant ainsi une structure de sandwich qui assure un bon contact thermique (des détails sur cette procédure sont donnés dans la référence [18]). Les 13 sandwiches sont séparés par du papier à cigarette l'un par rapport à l'autre; l'ensemble a une forme cylindrique afin d'être placé dans une cellule en plastique d'un diamètre de 1.5 cm (voir figure 2.3). Les 13 feuilles de cuivre sont soudées à un étage de cuivre qui, à son tour, est connecté thermiquement à la platine en cuivre par un fil de cuivre.

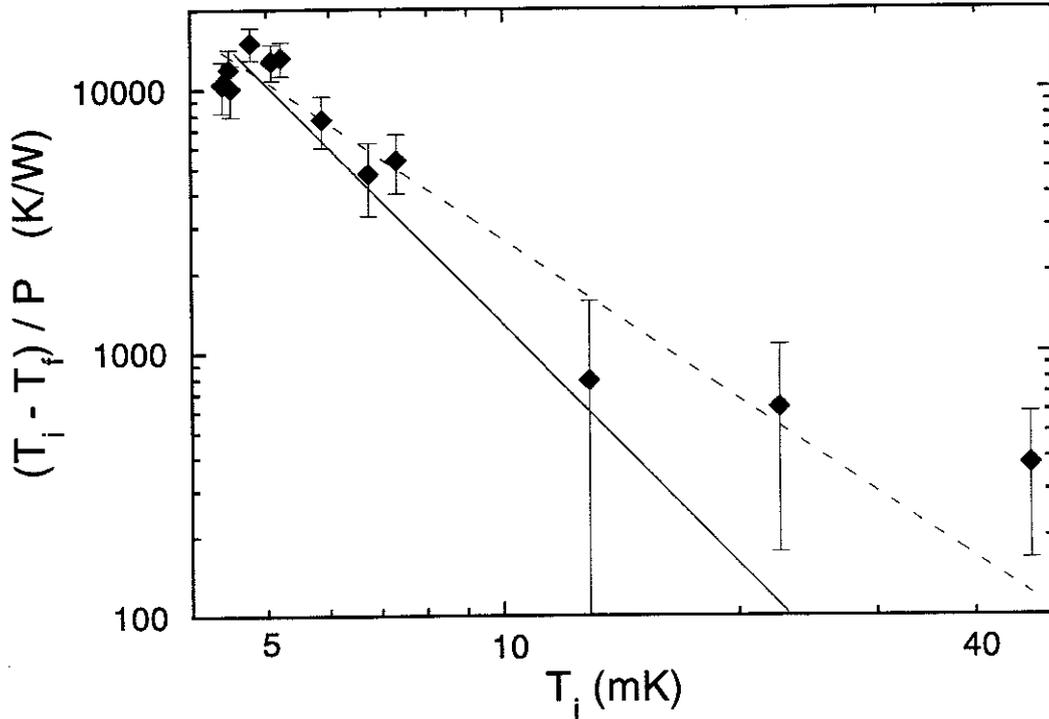


Figure 2.5: Résistance de Kapitza en fonction de la température intermédiaire; ajustements expliqués dans le texte.

La bobine de RMN a 211 spires de fil de cuivre (diamètre 0.04 mm); sa longueur est de 2.4 cm et son diamètre est de 1.95 cm. L'inductance de la bobine déterminée par une mesure de la fréquence de résonance du circuit résonant, à deux fréquences différentes, est de 0.46 mH. La connexion électrique de la bobine RMN au câble coaxial a été faite avec un fil supraconducteur (Niomax CN A61/05) pour éviter un courant de chaleur qui proviendrait du câble coaxial.

Un capillaire permet le remplissage avec de  $^3\text{He}$ . La connexion à la cellule est effectuée par un tube en Araldite d'une longueur de 2.5 cm et d'un diamètre intérieur de 1 mm sur lequel un capillaire d'un diamètre de 1.2 mm est collé. Le diamètre du capillaire de remplissage augmente aux endroits à plus hautes températures dans le cryostat, atteignant 2.5 mm à la température ambiante où il est connecté au circuit d'isothermes.

Dans les figures suivantes on voit la boîte à mélange avec la platine de régulation de température et la cellule (figure 2.6), ensuite un agrandissement de la platine avec la cellule (figure 2.7).

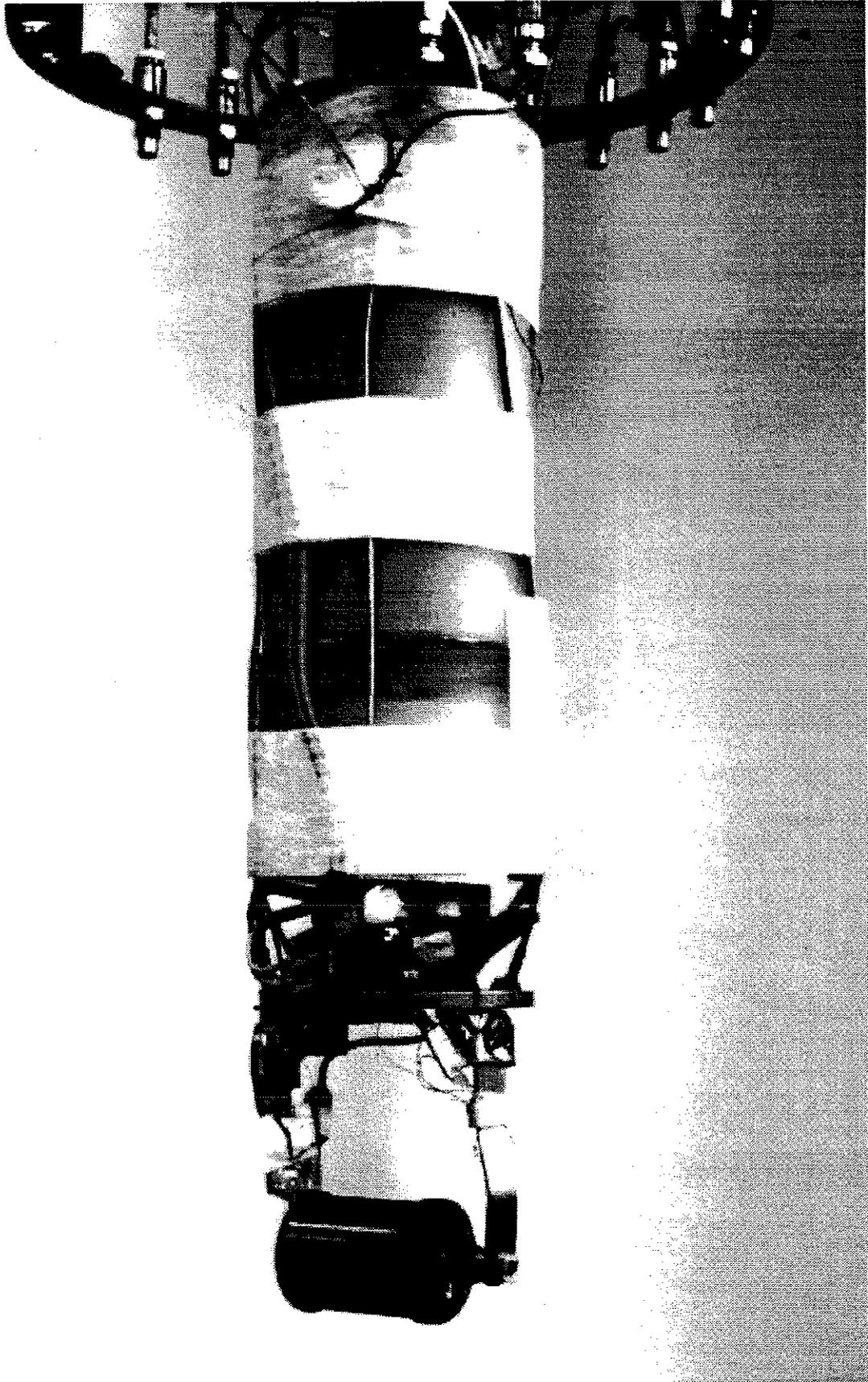


Figure 2.6: La boîte à mélange avec la platine de régulation de température et la cellule.

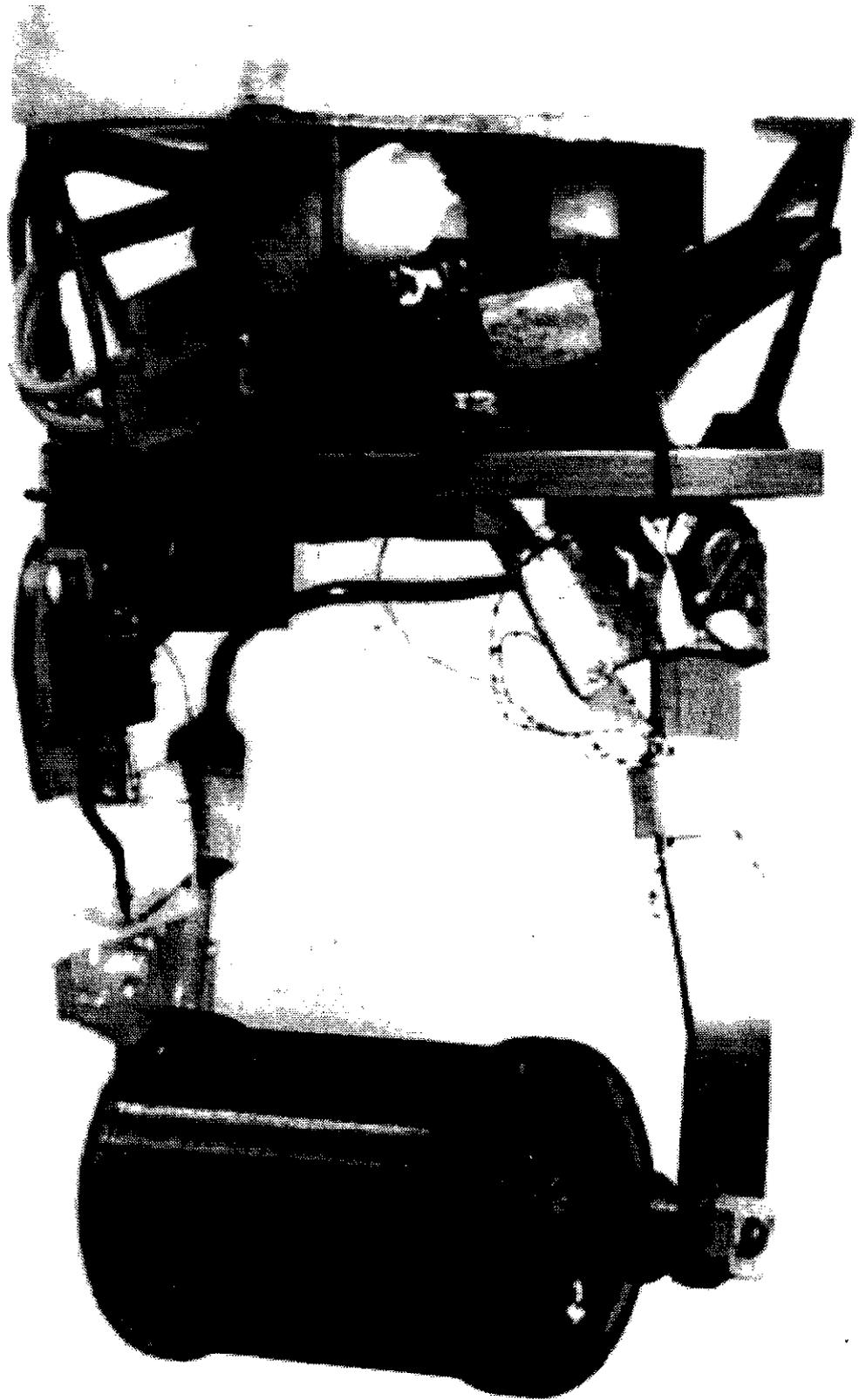


Figure 2.7: Agrandissement de la figure précédente.

# Chapitre 3

## Thermométrie

### 3.1 Introduction

La thermométrie à basses températures, notamment au-dessous de 10 mK, est au moins aussi difficile que l'obtention de la température elle-même. Un thermomètre doit satisfaire les conditions suivantes:

- suivre une loi connue ou au moins assez simple
- avoir une faible capacité calorifique
- absorber peu d'énergie pour la mesure
- avoir un temps de réponse court
- être facile à mesurer
- avoir une bonne sensibilité
- avoir une bonne reproductibilité

D'habitude on distingue les thermomètres primaires et les thermomètres secondaires. Les thermomètres primaires suivent une loi physique qui est en principe bien connue et sont donc utilisables sans étalonnage en température. Les thermomètres secondaires doivent être étalonnés, puisque leur loi physique n'est pas connue; en pratique, ils sont souvent plus sensibles que les thermomètres primaires. En pratique la distinction entre les thermomètres primaires et les thermomètres secondaires n'est pas très bien définie. Nous avons employé un thermomètre à courbe de fusion ("thermomètre primaire"), qui est décrit dans le chapitre 3.3, et un thermomètre à CMN et une résistance de Carbone ("thermomètres secondaires"), qui sont décrits dans les chapitres 3.2 et 3.4.

### 3.2 Le thermomètre à CMN

Les thermomètres à CMN sont basés sur le fait que la susceptibilité magnétique du sel de Nitrate de Cérium-Magnésium (CMN) suit une loi de Curie à très basses températures. Ils ont été utilisés depuis longtemps au C.R.T.B.T. et ne seront donc pas discutés en

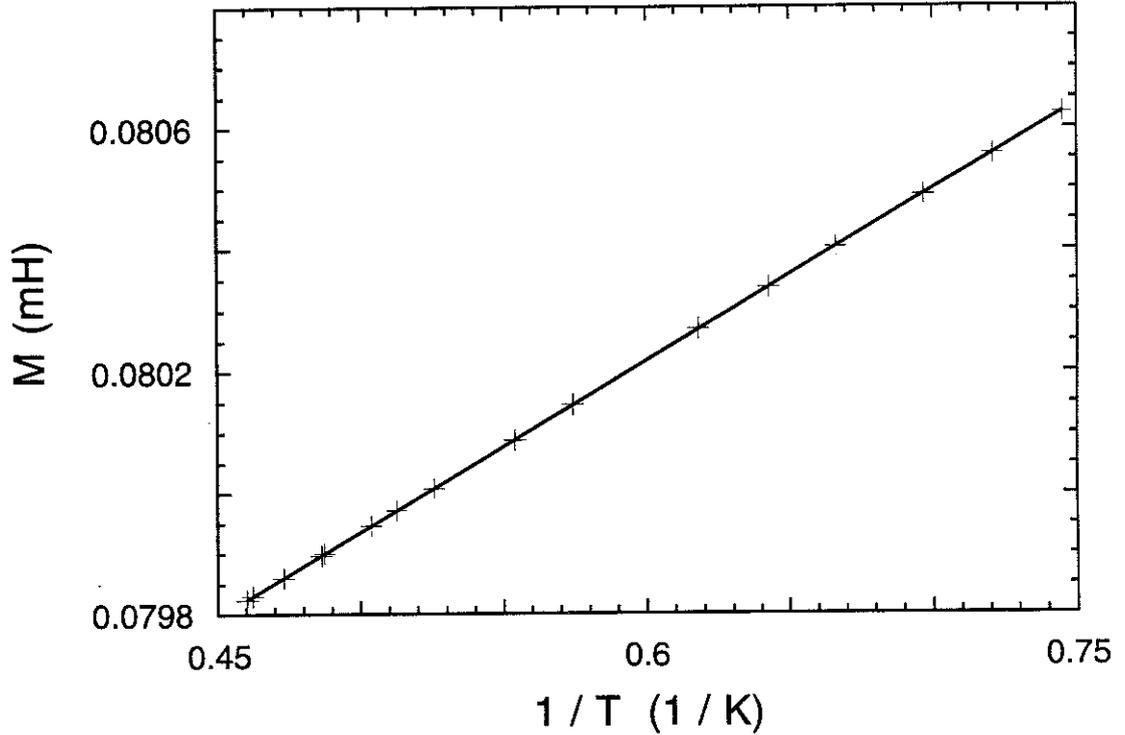


Figure 3.1: L'inductance mutuelle du thermomètre à CMN en fonction de l'inverse de la température; l'ajustement est expliqué dans le texte.

détail ici. Une description détaillée se trouve dans les références [18, 19]. Le thermomètre à CMN utilisé ici est situé à l'intérieur de la boîte à mélange du réfrigérateur à dilution.

L'étalonnage est effectué en pompant l' $^4\text{He}$  du bain dans une gamme de température entre environ 1.3 K et 2.17 K. La limite supérieure est donnée par le point lambda d' $^4\text{He}$ , où l' $^4\text{He}$  devient superfluide. La conductivité thermique de l'hélium dans cette gamme de température est très bonne ce qui assure qu'il n'y ait pas de gradient thermique entre la surface d' $^4\text{He}$  et le thermomètre à CMN dans le calorimètre. La limite inférieure est simplement donnée par la limite de la méthode de refroidissement. L'inductance de la mutuelle est mesurée à champ magnétique nul en fonction de la température, qui est déterminée à son tour par la tension de vapeur d' $^4\text{He}$  du bain. Un point important à noter est qu'on a trouvé nécessaire de mettre du gaz et pas de mélange liquide dans le réfrigérateur pour obtenir un bon équilibre thermique; un premier essai avec du liquide dans le réfrigérateur a donné des résultats insatisfaisants. La figure 3.1 représente cet étalonnage; l'inductance mutuelle  $M$  est représentée en fonction de l'inverse de la température ce qui donne une droite pour une loi de Curie. On voit que cette loi est très bien suivie; un ajustement donne

$$M(\text{mH}) = 0.0761857 + \frac{2.8112}{T(\text{mK})} \quad (3.1)$$

Les écarts par rapport à cet ajustement en fonction de la température sont montrés dans la figure 3.2; on ne voit aucune déviation systématique. L'étalonnage de la mutuelle est ainsi établi. Après un cycle thermique entre la température ambiante et les basses températures on constate des petites variations de la constante  $M_0$ , qui peuvent être prises en compte par un seul point d'étalonnage à 4.2 K qui permet de corriger  $M_0$  convenablement.

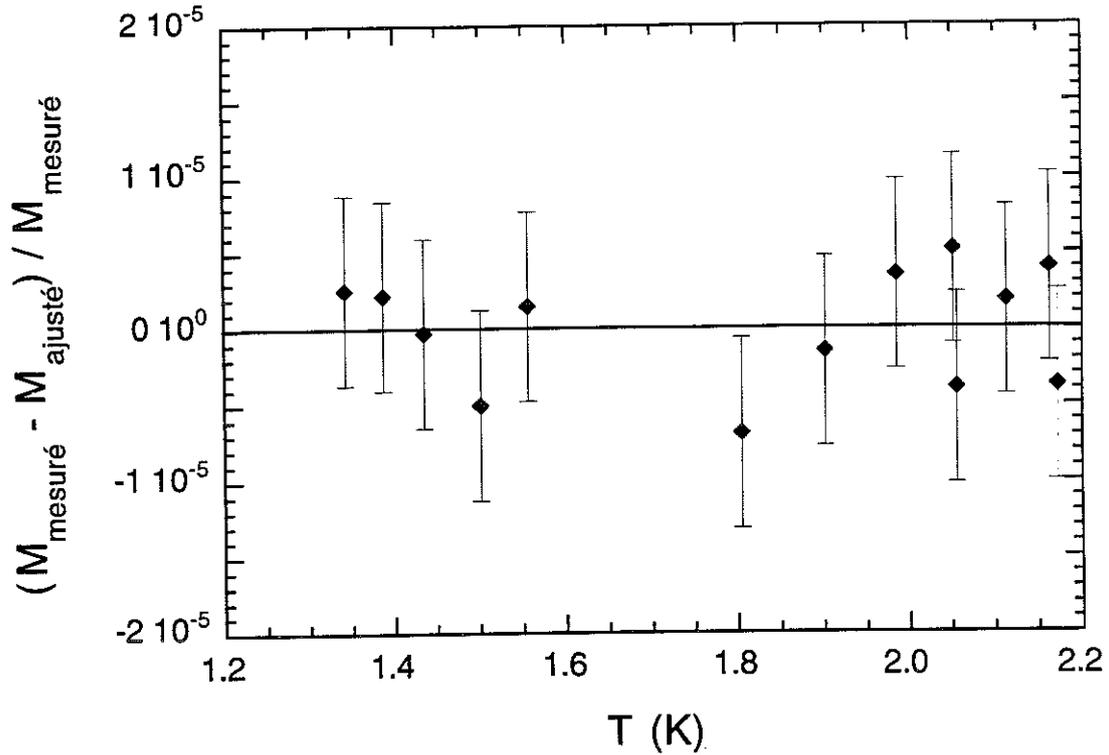


Figure 3.2: Ecarts relatifs entre l'inductance mutuelle ajustée et les valeurs mesurées en fonction de la température.

Finalement il faut remarquer que la température donnée dans l'équation 3.1 est en fait la température magnétique  $T^*$  définie par l'expression

$$T^* = T + \Delta \quad (3.2)$$

où  $\Delta$  est la constante de Weiss qui a une valeur de  $\Delta = 0.25$  mK pour le thermomètre à CMN utilisé ici [18]. Evidemment, cet effet n'est important qu'aux températures les plus basses.

### 3.3 Le thermomètre à courbe de fusion d<sup>3</sup>He

#### 3.3.1 Introduction

La bonne connaissance de la relation pression-température de la courbe de fusion d<sup>3</sup>He acquise récemment a permis d'utiliser cette relation comme base de thermométrie. En fait cette échelle de température est probablement la mieux connue à présent dans la région des milliKelvin [20, 21, 22]. En particulier, Greywall a établi une échelle de température dans la gamme 1–250 mK [20], ce qui représente précisément la gamme de températures employée par nos mesures de RMN. En outre, la thermométrie à courbe de fusion d<sup>3</sup>He a plusieurs autres avantages: une très bonne sensibilité, une bonne reproductibilité, une très petite dissipation d'énergie et surtout l'insensibilité à un champ magnétique. Pour toutes ces raisons il était souhaitable de développer un thermomètre à courbe de fusion d<sup>3</sup>He.

La courbe de fusion d<sup>3</sup>He est représentée dans la figure 3.3. Elle présente un minimum à 315.1 mK et 29.3118 bar [22], une propriété singulière à l<sup>3</sup>He. Entre ce minimum et la

valeur à basses températures il y a une différence en pression d'environ 5 bar; en particulier la pente de la courbe de fusion à basses températures est d'environ 40 mBar/mK. Pour avoir une précision de 0.01 mK en température, il faut donc mesurer la pression avec une précision de 0.4 mbar à une pression de 34 Bar, soit une mesure de pression à  $10^{-5}$ . Le principe de la mesure de pression est le suivant: de  $^3\text{He}$  liquide est admis dans la cellule à une température de 1.5 K environ avec une pression de l'ordre de 36 bars. La pression de la cellule est choisie soigneusement pour que le thermomètre 'reste sur la courbe de fusion' sur toute la gamme de températures entre 0.7 K et les basses températures; dans ce cas la pression dans la cellule correspond à celle de la courbe de fusion. Lorsque le réfrigérateur est refroidi, un bouchon d' $^3\text{He}$  solide se forme à environ 0.7 K, enfermant ainsi une certaine quantité d' $^3\text{He}$  dans la cellule. La pression peut être mesurée avec un manomètre capacitif où une armature est fixe et l'autre est montée sur une membrane qui se déplace selon la pression dans la cellule.

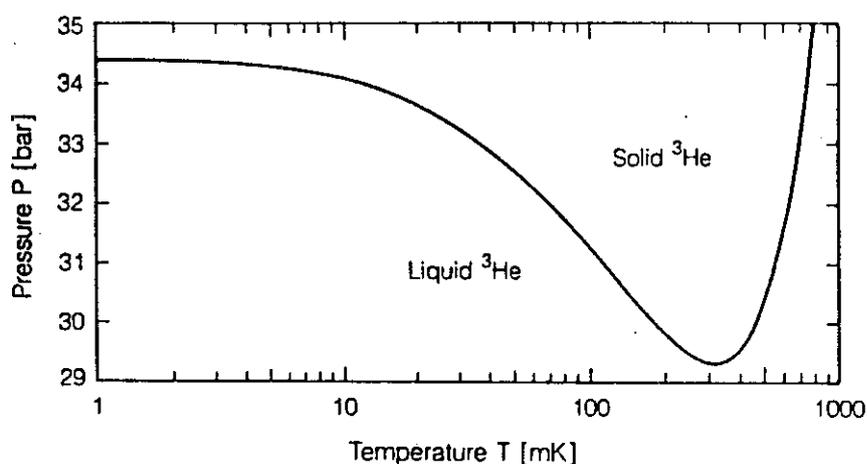


Figure 3.3: La courbe de fusion d' $^3\text{He}$  (référence [15] et références citées).

### 3.3.2 Le dispositif du thermomètre à courbe de fusion

Le dispositif expérimental du thermomètre à courbe de fusion d' $^3\text{He}$  est représenté dans la figure 3.4. La pièce principale du thermomètre est la membrane en CuBe d'une épaisseur de 200  $\mu\text{m}$  sur laquelle est montée la plaque mobile de la capacité. Cette membrane est en contact avec la cellule dans laquelle l' $^3\text{He}$  est introduit. Par conséquent, la pression dans cette cellule exerce un déplacement de la membrane qui est détecté par un changement de la capacité. Des épaisseurs de membrane différentes ont été testées; on ne gagne plus en sensibilité pour des épaisseurs inférieures à 200  $\mu\text{m}$ , sauf dans une très faible gamme de pressions où les électrodes sont très proches.

La capacité de référence de 5.0662 pF est située sur la boîte à 1 K. La capacité est mesurée avec un pont de capacité Barras-Provence travaillant à 1 kHz avec un diviseur inductif manuel ou programmable. La tension maximale de mesure est limitée par l'effet de chauffage du thermomètre aux plus basses températures. Nous avons observé que le chauffage dépend du sens de branchement des plaques de la capacité ("high" et "low"). Cet effet peut être attribué aux pertes diélectriques dans le Stycast avec lequel les plaques sont collées. La plaque fixe a été collée avec plus de Stycast que la plaque mobile (voir

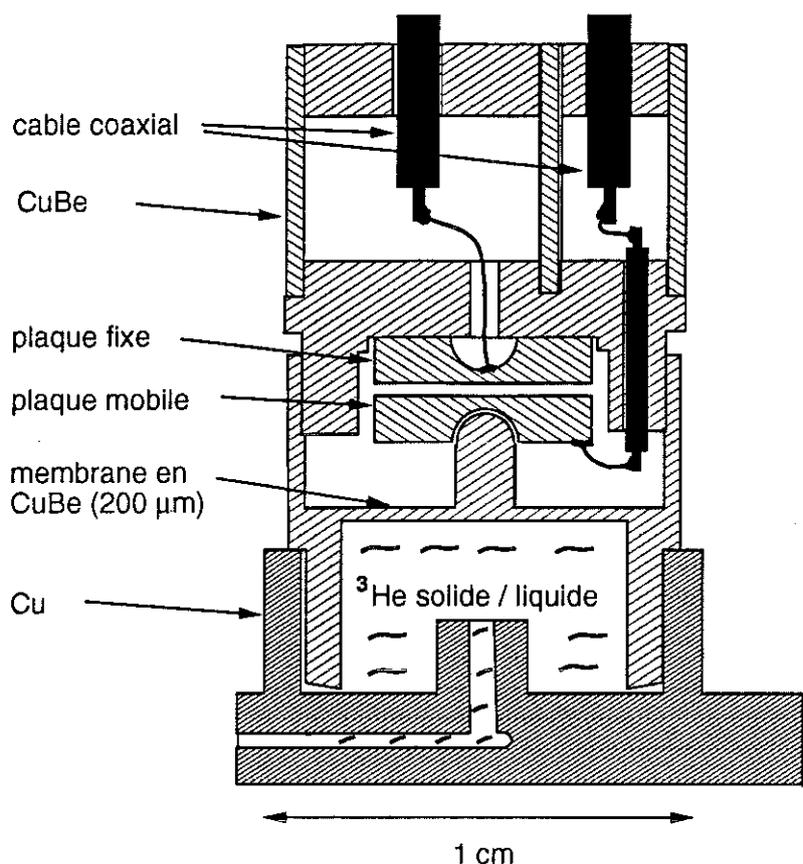


Figure 3.4: Le dispositif expérimental du thermomètre à courbe de fusion d' $^3\text{He}$ .

du pont de potentiel faible par rapport à la masse ("low"). Dans ce cas la tension maximale utilisable est de 8 V ou même un peu plus, dans l'autre cas elle est limitée à 1.6 V, ce qui réduit la sensibilité limite.

### 3.3.3 Etalonnage en pression

Avant de pouvoir étalonner le thermomètre à courbe de fusion pour la première fois il faut effectuer plusieurs cycles en pression entre la pression zéro et 40 Bar afin de faire un "entraînement" de la membrane.

L'étalonnage en pression s'effectue à 1.5 K; au-dessous de cette température les propriétés mécaniques de la membrane ne changent plus [23]. Comme référence on a utilisé un manomètre à aiguille de précision (gamme 0 à 40 Bar). Un appareil plus précis a ensuite été mis à notre disposition par M. Chapellier (Digiquartz Pressure Transducer 2900 AS 002). On applique une certaine pression d' $^3\text{He}$  dans le thermomètre et après environ deux ou trois minutes pour l'équilibre en pression celle-ci est lue sur le manomètre et sur le pont de capacité. Ceci est fait pour des pressions dans une gamme entre 26 et 38 bar où les valeurs correspondant à la courbe de fusion entre 300 mK et les basses températures sont comprises. La capacité du thermomètre à courbe de fusion est donnée par

$$C = \frac{X}{1-X} C_{réf} \quad (3.3)$$

où  $X$  est la lecture du pont de capacité et  $C_{réf}$  est la capacité de référence. On peut représenter la pression en fonction de l'inverse de la capacité, ce qui donne une droite (figure 3.5). Cependant les écarts par rapport à un ajustement linéaire ont une "structure" qui peut être dûe soit à une nonlinéarité du manomètre à aiguille soit à une nonlinéarité des propriétés mécaniques des plaques du thermomètre lui-même. En fait une fonction d'ajustement plus sophistiquée de la forme

$$P = a_0 + a_1 C^{-1} + a_2 C^{-3} \quad (3.4)$$

où  $a_0$ ,  $a_1$  et  $a_2$  sont des paramètres d'ajustement, a déjà été proposée par Greywall [24]. Les écarts d'un ajustement fait avec cette fonction sont représentés en fonction de la pression sur la figure 3.6. On voit que les écarts ne montrent pas de structure en fonction de la pression et cet ajustement décrit bien les mesures. Par conséquent il a été utilisé pour décrire l'étalonnage en pression.

Cette pression n'est pas la vraie pression dans la cellule du thermomètre; il faut considérer en outre la pression hydrostatique de la colonne d'hélium dans le capillaire et un éventuel décalage en zéro du manomètre à aiguille. La pression n'est donc déterminée qu'à une constante additive près. En principe la courbe de fusion d' $^3\text{He}$  fournit elle-même plusieurs points d'étalonnage: les points de transitions dans  $^3\text{He}$  superfluide A et B et le minimum de la courbe de fusion qui sont très bien connus [20]. Malheureusement le point de transition dans  $^3\text{He}$ -A est à une température trop basse ( $T_A = 2.49$  mK) pour être atteint avec notre réfrigérateur à dilution ( $T_{min} = 3.3$  mK). Par contre le minimum de la courbe de fusion peut très bien être enregistré et mesuré en pression. Mais dans ce cas un autre problème se pose: le maximum de précision en pression est nécessaire aux plus basses températures pour avoir une bonne précision en température; il n'est donc pas souhaitable d'ajuster la pression à 29.3 bar quand la pression à basses températures est de 34 bar. L'échelle finale en température sera discutée plus loin pour chacune des deux expériences que nous avons effectuées.

### 3.3.4 Sensibilité du thermomètre à courbe de fusion

La capacité d'une capacité à plaques est donnée par l'expression

$$C = \epsilon_0 \frac{A}{d} = \frac{160}{d} \quad (3.5)$$

où  $\epsilon_0$  est la constante diélectrique,  $A$  la surface des plaques et  $d$  la distance entre les deux plaques. Dans la deuxième équation les constantes sont insérées ( $A = 18.1$  mm<sup>2</sup>); la capacité est donnée en picofarad et la distance en micromètres. Si l'on applique une pression, la membrane se déplace et avec elle la plaque qui est solidaire (voir figure 3.4); la distance  $d$  est donc une fonction de la pression

$$d = d_0 - \delta(P) \quad (3.6)$$

où  $d_0$  est la séparation à pression nulle et  $\delta(P)$  le déplacement de la membrane. Etant donnée que l'épaisseur de notre membrane (200  $\mu\text{m}$ ) est faible par rapport à son diamètre

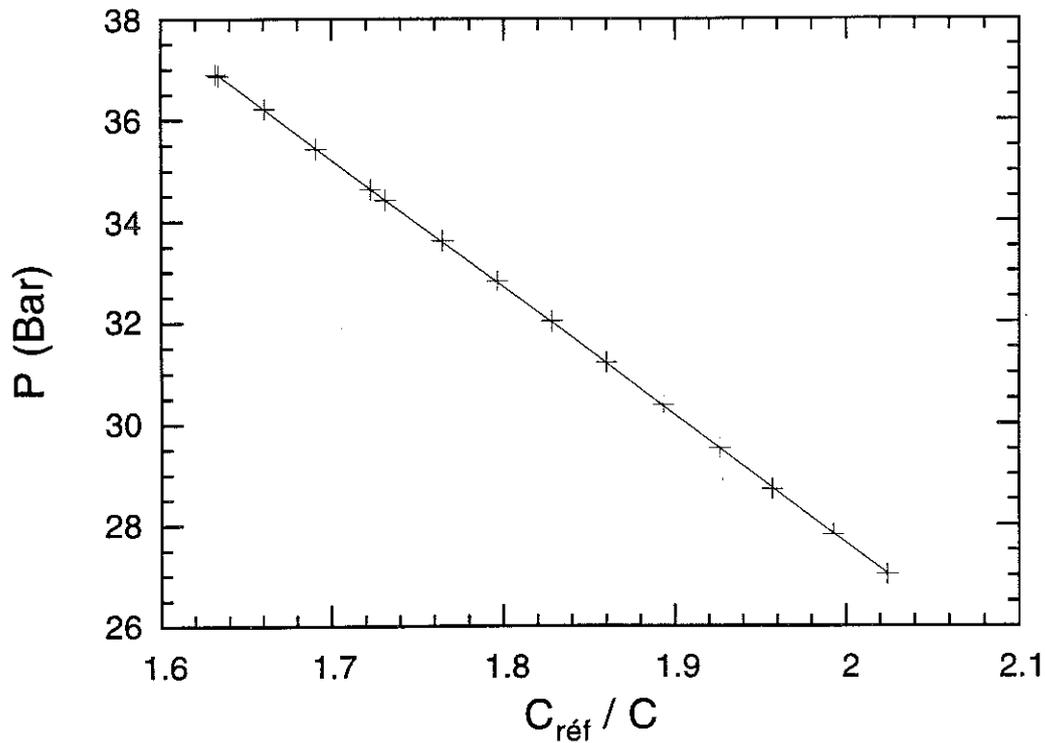


Figure 3.5: Pression en fonction de l'inverse de la capacité du thermomètre à courbe de fusion, normalisée par la capacité de référence ( $C_{ref} = 5.0662$  pF), ajustée par l'expression 3.4.

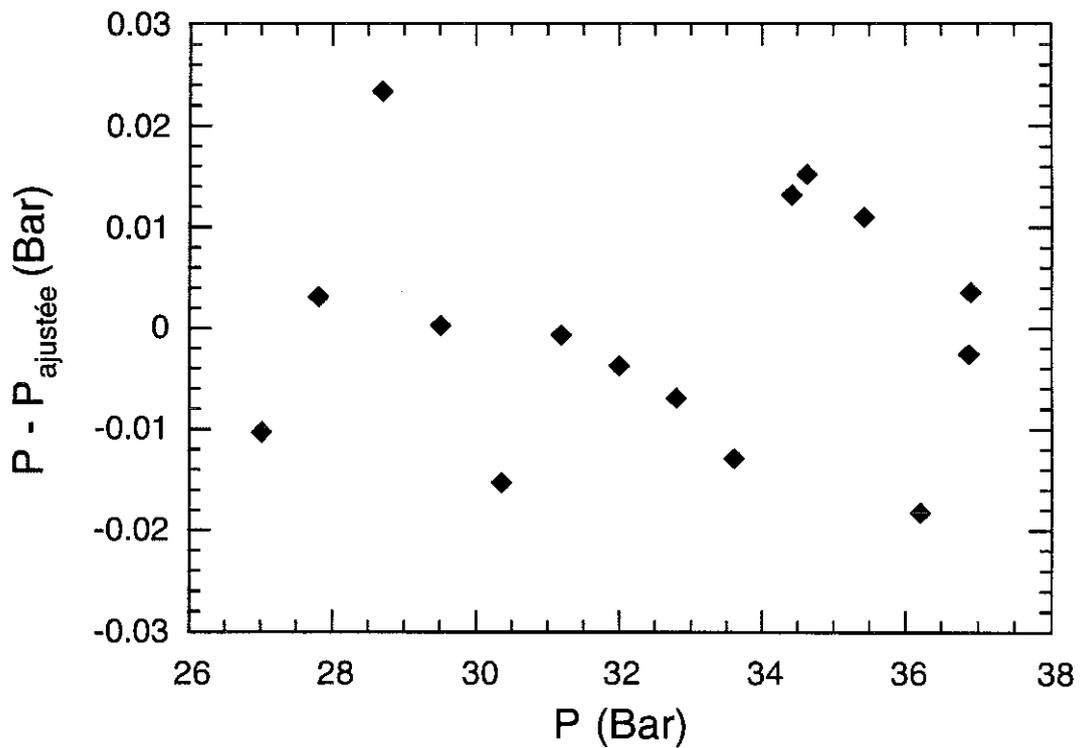


Figure 3.6: Ecarts relatifs entre la pression ajustée par la fonction 3.4 et les valeurs mesurées en fonction de la pression.

(3.2 mm) et que le déplacement maximal (environ 50  $\mu\text{m}$ ) est plus petit que l'épaisseur, il semble raisonnable d'utiliser le modèle de la déformation d'une plaque circulaire, chargée symétriquement, avec des lisières encastrées, qui est traité dans la référence [25]. Au centre de la plaque, le déplacement  $\delta$  est donné par l'expression (equation 131 dans [25])

$$\delta = \frac{a^4 P}{64 D} = \frac{3 a^4 P (1 - \mu^2)}{16 E h^3} \quad (3.7)$$

où  $a$  est le diamètre de la plaque (3.2 mm) et  $D$  la rigidité de flexion de la plaque qui est donnée par l'expression (equation 109 dans [25])

$$D = \frac{E h^3}{12(1 - \mu^2)} \quad (3.8)$$

où  $h$  est l'épaisseur de la plaque (200  $\mu\text{m}$ ),  $E$  est le module de Young ( $1.3 \cdot 10^6$  Bar pour le cuivre-béryllium [23]) et  $\mu$  est le coefficient de Poisson (0.32 pour le cuivre-béryllium [26]). On obtient donc une dépendance linéaire entre le déplacement et la pression avec une constante de linéarité  $\alpha$  de 1.7  $\mu\text{m}/\text{bar}$ .

Si l'on ajuste les mesures de la capacité en fonction de la pression avec la fonction

$$C(pF) = \frac{160}{(d_0 - \alpha P) (\mu\text{m})} \quad (3.9)$$

on trouve que cette loi est très bien suivie; les paramètres d'ajustement sont déterminés à  $d_0 = 97.6 \mu\text{m}$  et  $\alpha = 1.26 \mu\text{m}/\text{bar}$ , ce qui est en très bon accord avec la valeur calculée avec le modèle simple cité plus haut.

La résolution est donnée par

$$\frac{dC}{dP} = \frac{160 \alpha}{(d_0 - \alpha P)^2} \quad (3.10)$$

A 34 Bar on a donc une sensibilité de  $6.7 \cdot 10^{-2}$  pF/bar; avec la résolution du pont de capacité de  $2 \cdot 10^{-5}$  pF, la résolution en pression est de 300  $\mu\text{Bar}$ .

Bien que la précision de la mesure de pression soit assez bonne pour déterminer des températures avec une précision de 0.01 mK, elle peut être améliorée. Greywall a effectué des mesures de pression environ cinquante fois plus précises [27]. Ceci peut être attribué au fait que dans le thermomètre de Greywall les plaques de la capacité sont très près de se toucher (à 36 Bar environ), alors que dans le nôtre elles ne toucheraient qu'à 77 Bar. Par conséquent, à 34 Bar la séparation est plus petite dans le thermomètre de Greywall, un facteur qui entre au carré dans la résolution. En conclusion, pour améliorer la sensibilité de notre thermomètre à courbe de fusion il faudrait rapprocher les électrodes jusqu'au point où elles toucheraient à environ 40 bar; ceci correspond à une séparation à pression nulle de 60  $\mu\text{m}$  environ.

### 3.4 Le thermomètre de Carbone

Finalement un thermomètre de Carbone (Matsushita 68  $\Omega$ ) a été utilisé ; son étalonnage est montré dans la figure 3.7. Le thermomètre n'était pas saturé au-dessus de 7-8 mK. Très récemment on a amélioré les filtres de radiofréquence du cryostat; depuis, le thermomètre

n'est pas saturé au-dessus de 5 mK. On note également que des valeurs de résistance nettement supérieures à un megohm sont mesurées à basses températures, bien qu'on utilise des liaisons IEEE pour le pilotage des appareils électroniques par l'ordinateur (voir chapitre 5.2). Les interfaces IEEE n'injectent donc pas de puissance importante dans le réfrigérateur à dilution. Un ajustement aux données expérimentales a été fait avec l'expression suivante

$$\ln(R) = m_1 + m_2 T^{m_3} \quad (3.11)$$

Cette expression est basée sur la loi de saut à distance variable des électrons dans un potentiel aléatoire [28]; une loi décrite par l'expression

$$R = R_0 \exp\left(-\frac{A}{T^{1/(d+1)}}\right) \quad (3.12)$$

où  $d$  est la dimension de l'espace. La valeur  $m_3$  est de  $-0.394$ , c'est-à-dire relativement différent de la valeur  $-1/4$  de l'expression théorique pour  $d = 3$ .

Afin d'obtenir un meilleur ajustement, il convient d'ajuster  $R(T)$  dans des gammes de température plus petites. Nous avons utilisé, en fait, une simple interpolation entre des points les plus proches de la valeur de résistance en question.

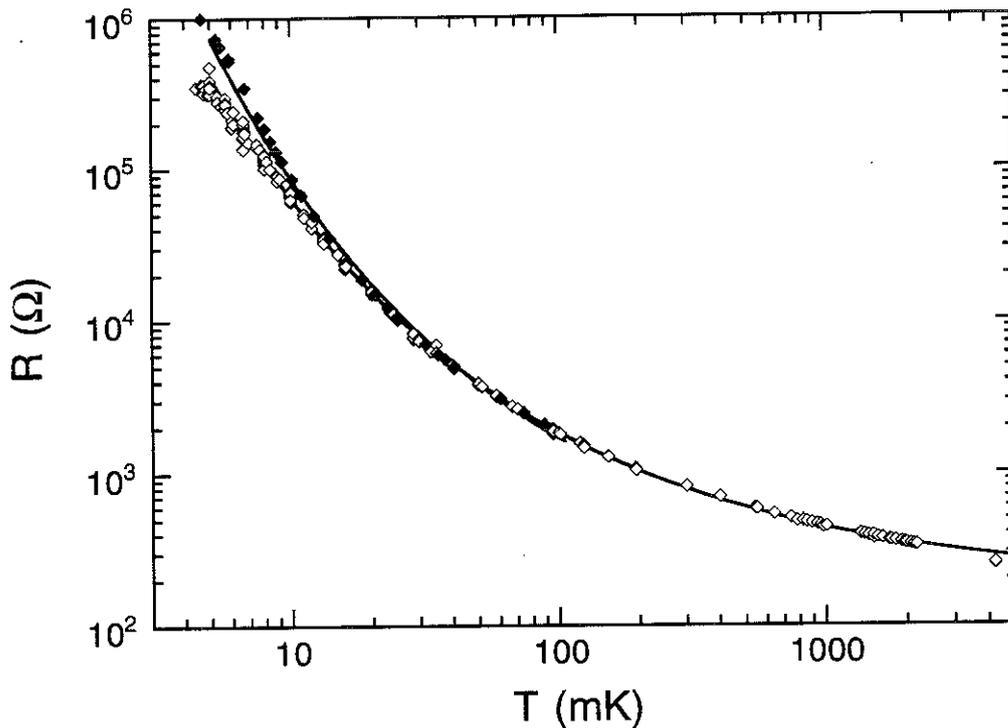


Figure 3.7: Résistance de la résistance Matsushita  $68 \Omega$  placée sur la platine en cuivre en fonction de la température; losanges vides (pleins): données avant (après) amélioration du filtrage de radiofréquence; ajustement expliqué dans le texte.

## 3.5 Echelles de températures

### 3.5.1 Introduction

On a vu sur les pages précédentes que tous les thermomètres décrits ont leurs inconvénients:

- Le thermomètre à CMN est difficile à étalonner sous champ magnétique; en plus il est difficile de s'assurer de l'équilibre thermique entre ce thermomètre et la platine en cuivre à cause de la faible diffusion thermique dans le mélange aux environ de 100 mK.
- Le thermomètre à courbe de fusion ne peut être étalonné qu'à une constante additive près.
- Le thermomètre de Carbone ne suit pas une loi physique bien connue et doit donc être étalonné par rapport à un autre thermomètre dans toute la gamme de températures; par ailleurs il ne peut pas être utilisé au-dessous de 10 mK.

En fait, nous disposons d'un autre thermomètre dans notre montage: il s'agit de l'échantillon lui-même à une densité correspondant à la phase incommensurable de la première couche d' $^3\text{He}$ , dont la susceptibilité suit une loi de Curie [18].

Afin d'établir une échelle de température finale, il faut mettre en accord ces quatre thermomètres après chaque cycle thermique à l'ambiante.

### 3.5.2 Echelle de températures de la première expérience

Un étalonnage en pression a été effectué comme décrit dans la section 3.3.3. Les paramètres d'ajustement dans l'expression

$$P = a_0 + a_1 \left( \frac{1 - X}{X} \right) + a_2 \left( \frac{1 - X}{X} \right)^3 \quad (3.13)$$

où la pression  $P$  est exprimée en Bars et  $X$  représente la lecture du diviseur inductif, sont:  $a_0 = 75.668$ ,  $a_1 = -23.270$  et  $a_2 = -0.1945$ . Pour obtenir la température à partir de la pression, on a utilisé la relation  $P-T$  de la courbe de fusion d' $^3\text{He}$  mesurée par Greywall [20]. Afin de déterminer la constante additive encore inconnue, on a mesuré les valeurs du thermomètre à CMN à champ nul en utilisant l'étalonnage décrit dans la section 3.2 ainsi que les pressions après s'être assuré d'un bon équilibre thermique entre la boîte à mélange et la base en cuivre. Ces mesures sont montrées dans la figure 3.8. La différence entre la pression du thermomètre à courbe de fusion selon notre étalonnage et la vraie pression de la courbe de fusion déduite de la température du thermomètre à CMN est représentée en fonction de la température du thermomètre à CMN. Il y a un décalage de 51 mBar et les écarts sont d'environ  $\pm 5$  mBar. Par conséquent, il faut soustraire 51 mBar de la valeur de notre étalonnage pour obtenir la vraie pression de la courbe de fusion et la précision de notre étalonnage de température est de  $\pm 0.13$  mK. L'échelle de température du thermomètre à courbe de fusion est ainsi établie; cette échelle représente la température de la platine de régulation de température (voir figure 2.3).

Par ailleurs, cette température n'est pas nécessairement celle des spins des atomes d' $^3\text{He}$  adsorbés sur le Grafoil dont l'aimantation est mesurée par RMN. La figure 3.9 montre les résistances thermiques entre ces spins et la platine de régulation de température.

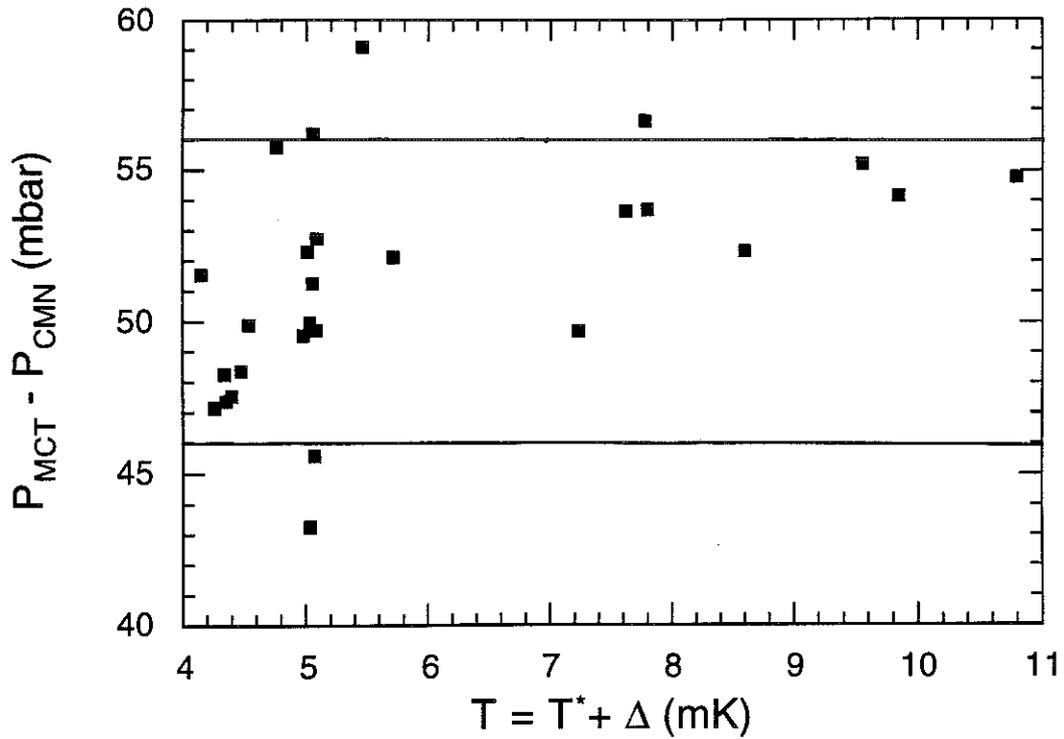


Figure 3.8: Différence entre la pression indiquée par le thermomètre à courbe de fusion selon notre étalonnage et la "vraie" pression, obtenue à partir de la courbe de fusion déduite de la température du thermomètre à CMN en fonction de la température du thermomètre à CMN.

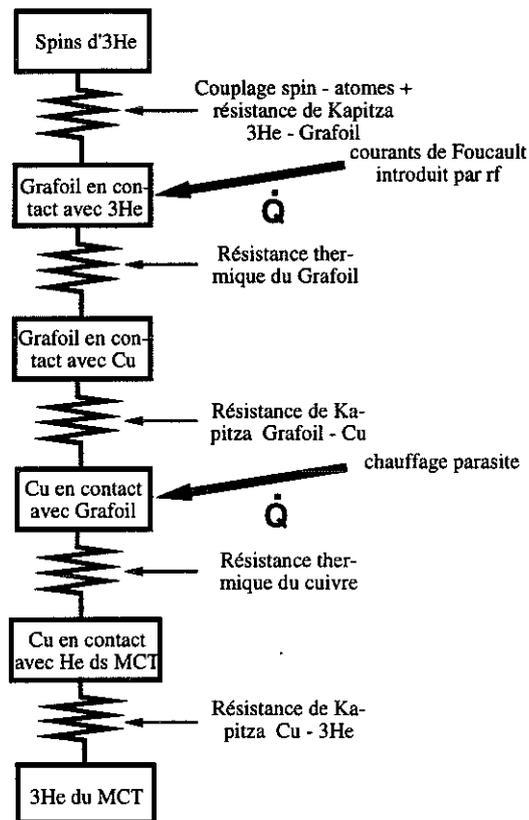


Figure 3.9: Diagramme des résistances thermiques entre les spins des atomes d' $^3\text{He}$  et la platine de régulation de température.

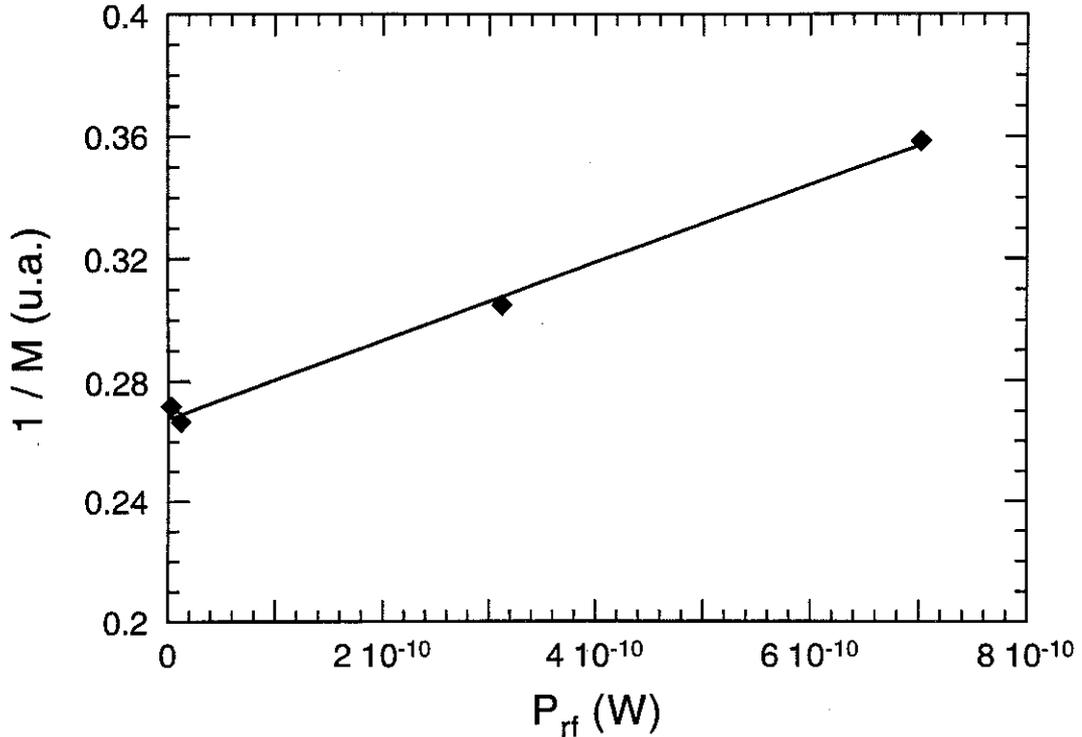


Figure 3.10: L'inverse de l'aimantation d' $^3\text{He}$  adsorbé en fonction de la puissance de la radiofréquence utilisée pour la RMN; densité  $\rho = 0.0207$  atomes/ $\text{\AA}^2$ ; température  $T = 4.17$  mK.

Il est donc nécessaire de s'assurer de l'équilibre thermique; en fait il y a un mécanisme qui chauffe les atomes d' $^3\text{He}$  indépendamment: le chauffage du Grafoil par des courant de Foucault introduit par le champ magnétique à haute fréquence [18] où bien la saturation du signal RMN par la radiofréquence. Cet effet a été mesuré en comparant les températures données par le thermomètre à courbe de fusion et par la RMN en fonction de la puissance de la radiofréquence. Les résultats sont montrés dans la figure 3.10: L'inverse de l'aimantation (proportionnelle à la température des spins) augmente linéairement avec la puissance de la radiofréquence ce qui peut être expliqué par le fait que les spins sont chauffés par la radiofréquence. Une analyse quantitative donne pour la résistance thermique entre le thermomètre à courbe de fusion et les spins

$$R_{th} = \frac{\Delta T}{\dot{Q}} = 2.75 \cdot 10^6 \frac{K}{W} \quad (3.14)$$

Cette résistance thermique est surtout dûe à celle du graphite, dont on peut estimer pour la géométrie de notre cellule une valeur de  $R_{th} \approx 1.4 \cdot 10^6 \text{ K/W}$  ( $\kappa \approx 10^{-5} \text{ W/(K}^2 \text{ m)}$  [29]). Le chauffage de l'échantillon est donc associé à un couplage non-résonant entre la radiofréquence et le graphite, et non à une saturation de la raie de RMN. Ceci est confirmé par le fait que bien que le temps de relaxation  $T_1$  dépende du taux de couverture, nous n'observons pas de dépendance dans les effets de chauffage. La température des spins est donc donnée par l'expression

$$T_{spin} \text{ (mK)} = \sqrt{T^2 \text{ (mK}^2) + 7.12 \text{ V}^2 \text{ (Volt}^2)} \quad (3.15)$$

décrivant la différence de températures pour un échantillon (le graphite) dont la conductivité thermique est proportionnelle à la température;  $V$  est la tension du générateur de

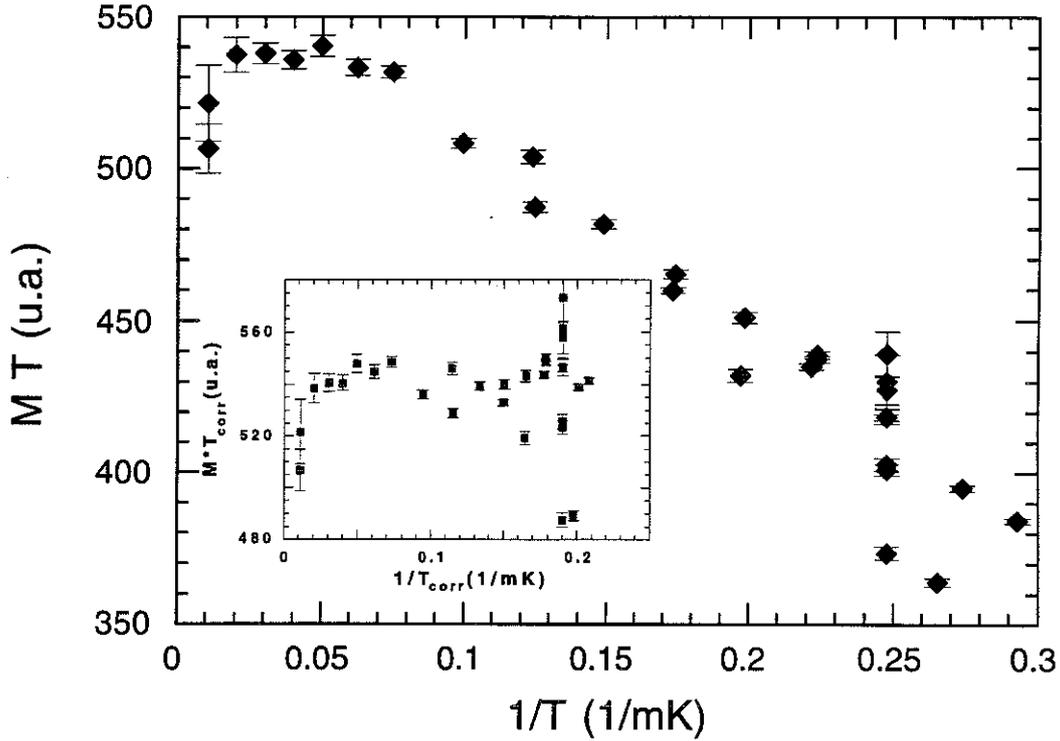


Figure 3.11: Produit de l'aimantation d' $^3\text{He}$  adsorbé et de la température en fonction de l'inverse de la température; densité  $\rho = 0.0908$  atomes/ $\text{\AA}^2$ ; les barres d'erreur indiquent l'erreur statistique sur les mesures d'aimantation; encart: les mêmes données après avoir corrigé l'échelle de température.

radiofréquence. Toutes les températures ont été corrigées pour cet effet. En plus, on a toujours choisi les puissances de la radiofréquence d'une telle manière que cette correction soit plus petite qu'environ 2%.

Finalement, on dispose d'un autre thermomètre qui consiste d'un film d' $^3\text{He}$  adsorbé dans la phase incommensurable où la susceptibilité suit une loi de Curie [18]. Une mesure de la susceptibilité a été effectuée à une densité de  $\rho = 0.0908$  atomes/ $\text{\AA}^2$  correspondant à 0.84 couches. Le produit de l'aimantation et de la température est représenté en unités arbitraires en fonction de l'inverse de la température dans la figure 3.11 afin de mettre en évidence les déviations par rapport à une loi de Curie <sup>1</sup>. Dans la figure 3.11 on voit clairement une déviation qui ne peut qu'être due à un chauffage parasite sur l'échantillon. A priori, on ne connaît pas l'origine de ce chauffage parasite, mais si l'on suppose une résistance métallique (c'est-à-dire  $R_{th} \sim 1/T$ ), on corrige les températures de la manière suivante

$$T_{\text{corrigée}}^2 (mK^2) = T_{\text{spin}}^2 (mK^2) + 2\alpha \dot{Q}_{\text{parasite}} \quad (3.16)$$

Ensuite on ajuste la valeur du chauffage parasite jusqu'à ce que la pente de  $MT$  de la figure 3.11 soit zéro. Les mêmes données sont représentées dans l'encart de la figure 3.11 après avoir corrigé les températures d'un chauffage d'une valeur de  $2\alpha \dot{Q}_{\text{parasite}} = 11.5 mK^2$ . Visiblement, les données corrigées ne montrent plus de déviations par rapport à la loi de Curie. Bien qu'on ne connaisse toujours pas l'origine de ce chauffage, nous avons appliqué la même correction pour toutes les températures en supposant que le chauffage

<sup>1</sup>Les détails sur les mesures de l'aimantation se trouvent dans le chapitre 5

parasite était constant pendant toute l'expérience. (On verra dans la figure 6.4 que cette supposition est justifiée.) Cette correction n'est importante qu'aux plus basses températures, mais la température minimale de l'échantillon n'est que 4.8 mK, bien que la température minimale du réfrigérateur à dilution soit 3.3 mK.

A la fin de la première expérience on a localisé plusieurs causes possibles de la fuite thermique: une thermalisation insuffisante du câble coaxial de la bobine de RMN; une thermalisation insuffisante du capillaire de remplissage de la cellule; un écran à 0.1 K qui a éventuellement touché une vis du support de la cellule (mais protégé par trois couches de papier adhésif microporeux). Afin de réduire ce chauffage parasite, on a thermalisé le capillaire de remplissage au dernier échangeur et à la platine de régulation de température. Ensuite on a mis des petits bouts de fil supraconducteur entre le câble coaxial et la bobine de RMN. Finalement, on a coupé l'écran de la plaque froide pour être sûr qu'il ne touche plus la cellule.

Quelle que soit la vraie cause de la fuite thermique, lors de la deuxième expérience elle a été réduite à un niveau non-mesurable (voir la section 3.5.3).

### 3.5.3 Echelle de températures de la deuxième expérience

Lors de la deuxième expérience, un appareil d'étalonnage en pression plus précis était disponible: un Digiquartz Pressure Transducer 2900 AS 002 mis à notre disposition par M. Chapellier. L'avantage principal de cet appareil par rapport au manomètre à aiguille est sa bonne linéarité. Le Digiquartz consiste essentiellement d'un résonateur à cristal de quartz dont la fréquence d'oscillation varie en fonction de la pression appliquée. La fréquence de résonance est facilement mesurée avec un fréquencemètre et la pression est calculée en utilisant l'expression

$$P = A \left(1 - \frac{T_0}{T}\right) - B \left(1 - \frac{T_0}{T}\right)^2 \quad (3.17)$$

où  $T$  est la période d'oscillation et  $A$ ,  $B$  et  $T_0$  sont des paramètres qui sont fournis par un étalonnage d'un centre de métrologie. Le dernier étalonnage de ce type a été fait en 1983, alors que la fréquence d'oscillation du cristal de quartz change continuellement à cause des pertes de masse du cristal. Par conséquent, il a fallu ajuster le paramètre  $T_0$  par une mesure de la période d'oscillation à pression nulle. A la pression atmosphérique on trouve maintenant un très bon accord avec la pression fournie par la station météorologique.

Afin de pouvoir comparer la pression mesurée par le Digiquartz et celle mesurée par le thermomètre à courbe de fusion, il faut tenir compte de la pression hydrostatique de la colonne d' $^3\text{He}$  sur la cellule du thermomètre. Pour notre dispositif expérimental, on obtient une valeur estimée de 12 mbar, ce qui est similaire à la valeur trouvée par Greywall de 12.5 mbar [27].

On a fait un étalonnage de la capacité du thermomètre à courbe de fusion en fonction de la pression, similaire à celui montré dans la figure 3.5. Les écarts de la pression du Digiquartz par rapport à celle donnée par un ajustement des données avec l'expression 3.13 sont montrés dans la figure 3.12. Il faut noter que l'échelle verticale de cette figure est réduite d'un facteur cinq par rapport à la figure 3.6. Grâce à la meilleure précision du Digiquartz par rapport au manomètre à aiguille, on remarque que l'expression d'ajustement 3.13 donnée par Greywall [24] n'est plus suffisante, puisque les écarts de la pression montrent une structure sinusoidale dans la gamme de 28 à 38 Bar. Par contre, les écarts par

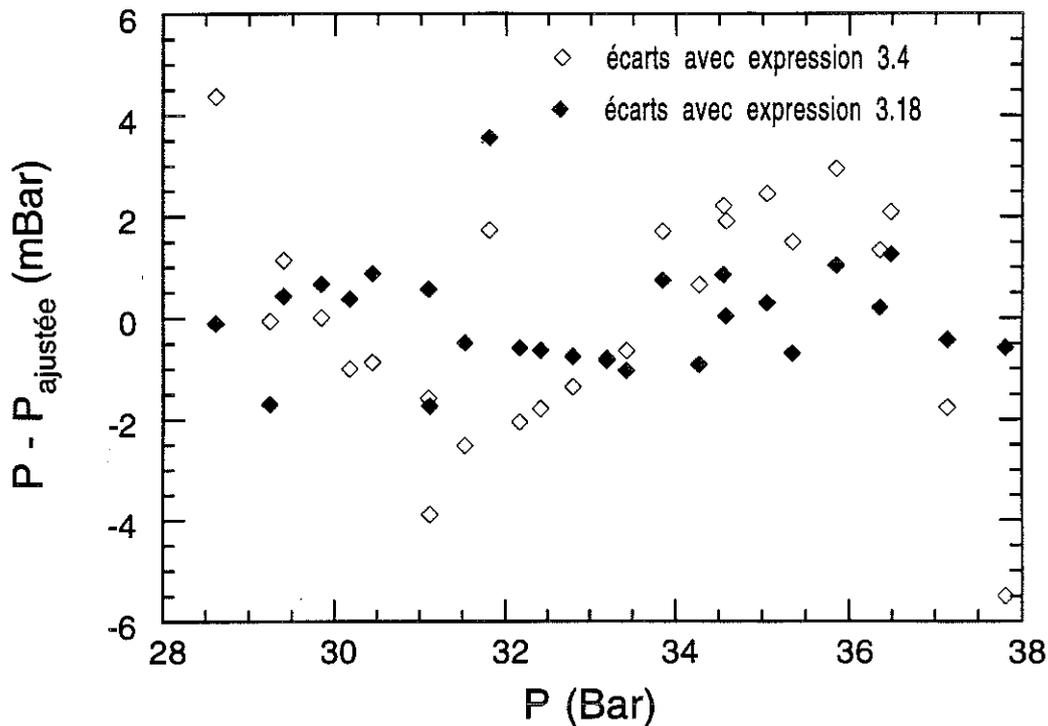


Figure 3.12: Ecarts entre la pression ajustée par la fonction 3.4 ou par la fonction 3.18 et les valeurs mesurées en fonction de la pression.

rapport à un ajustement avec l'expression

$$P = a_0 + a_1 C^{-1} + a_2 C^{-2} + a_3 C^{-3} \quad (3.18)$$

ne montrent aucune structure (figure 3.12) et les déviations sont inférieures à 1–2 mBar (à comparer à des déviations de 20 mBar de la figure 3.6). Par conséquent, il faut employer cette expression d'ajustement. Par ailleurs dans les publications plus récentes [27], Greywall utilise des fonctions d'ajustement allant même jusqu'à l'ordre quatre en  $1/C$ .

Maintenant il reste à vérifier cet étalonnage contre le thermomètre à CMN et contre celui de Carbone. Pour ceci, on a mesuré la température des trois thermomètres après s'être assuré d'un bon équilibre thermique entre la platine de régulation en température et la boîte à mélange. Les écarts relatifs de la température donnée par le thermomètre à CMN (celle du thermomètre de Carbone) par rapport à la température du thermomètre à courbe de fusion sont montrés dans la figure 3.13. On voit que les écarts du thermomètre de Carbone sont distribués aléatoirement et ils sont inférieurs à 4% ce qui prouve que l'échelle de thermométrie est bonne. Par contre, les écarts du thermomètre à CMN sont plus élevés pour les plus basses températures que pour des températures plus hautes. Ceci peut être expliqué par le fait qu'on n'a pas tenu compte de la constante de Weiss  $\Delta$ ; c'est-à-dire dans la figure 3.13 on a supposé que  $\Delta = 0$ . Si l'on ajuste  $\Delta$  de la manière à minimiser les écarts, on obtient une valeur de  $\Delta = -0.11\text{mK}$  ce qui est montré dans la figure 3.14. Maintenant, les écarts du thermomètre à CMN sont également distribués aléatoirement et ils sont inférieurs à 1%. On remarque que dans des mesures précédentes [18] on avait trouvé une valeur de  $\Delta = +0.25\text{mK}$  pour le même thermomètre à CMN. L'origine de cette différence n'est pas connue.

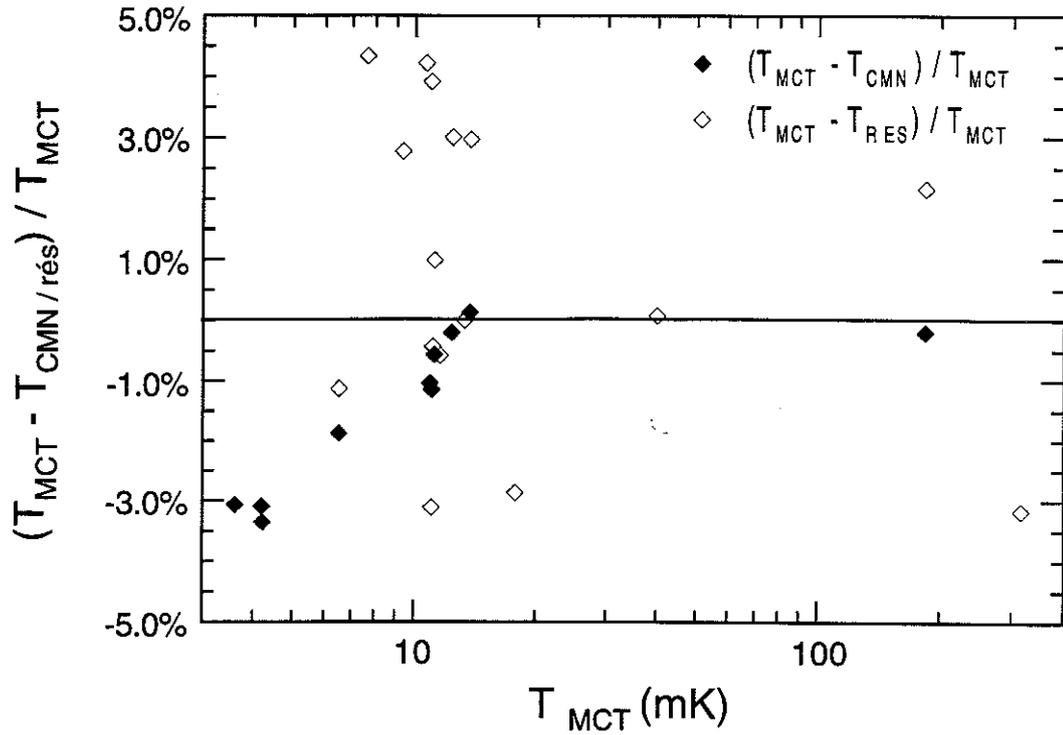


Figure 3.13: Les écarts relatifs de la température donnée par le thermomètre à CMN et ceux du thermomètre de Carbone par rapport à la température du thermomètre à courbe de fusion; on suppose  $\Delta = 0$  pour le CMN.

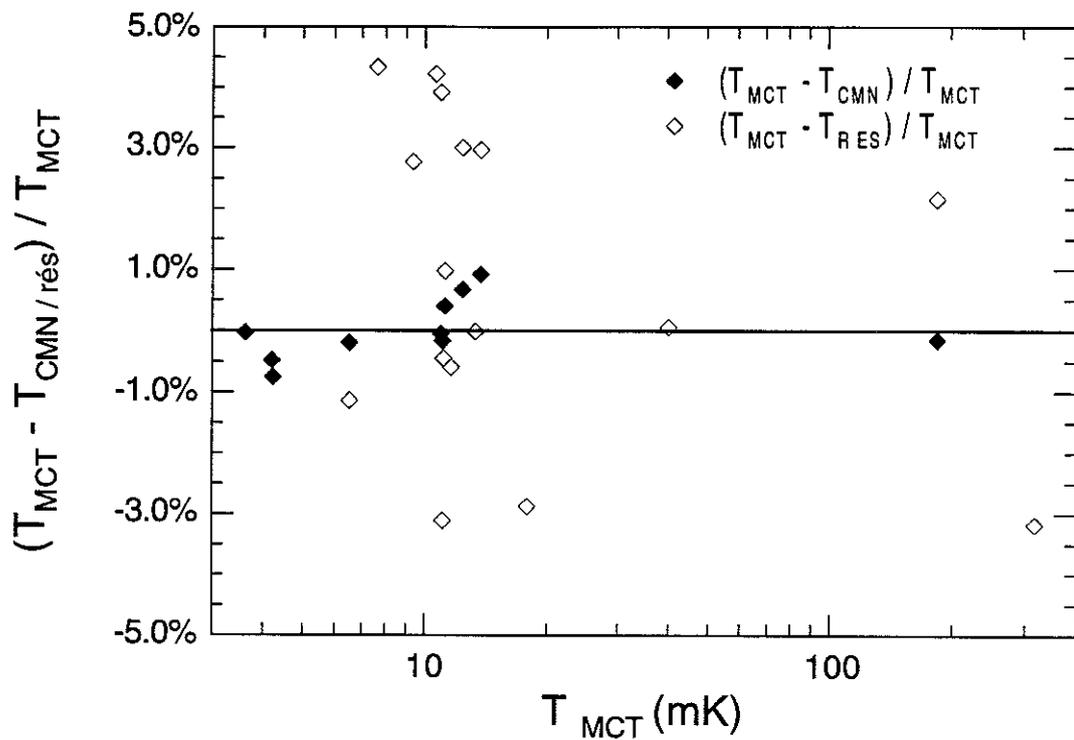


Figure 3.14: Les écarts relatifs de la température donnée par le thermomètre à CMN et ceux du thermomètre de Carbone par rapport à la température du thermomètre à courbe de fusion; la valeur de  $\Delta = -0.11\text{mK}$  minimise les écarts.

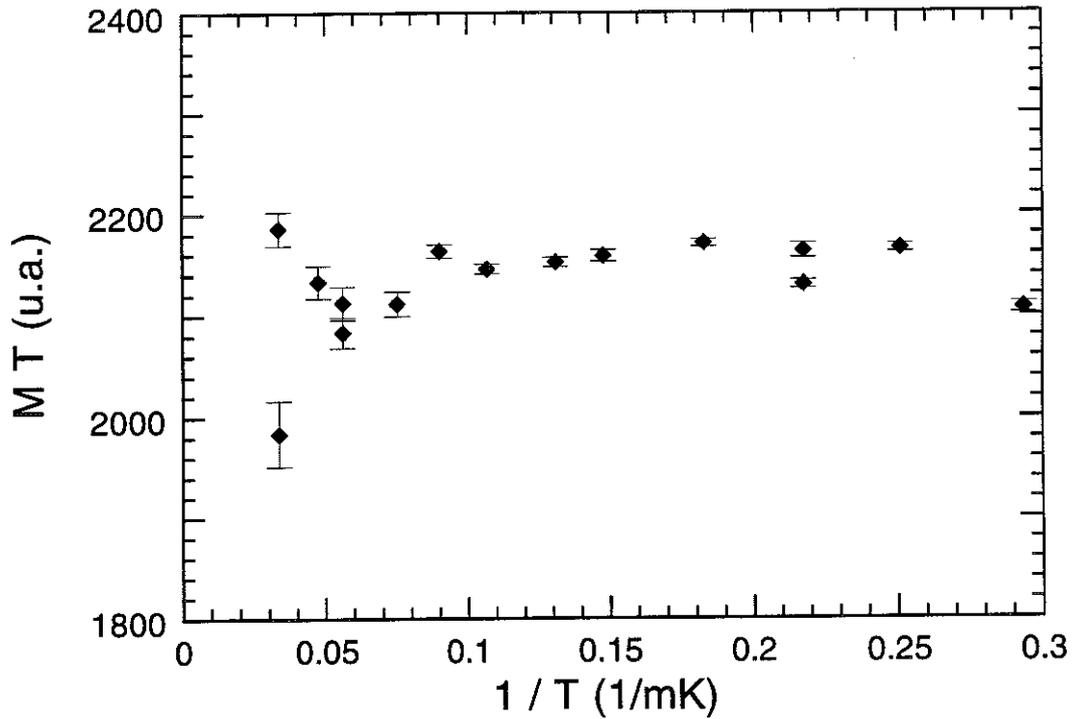


Figure 3.15: Produit de l'aimantation d' $^3\text{He}$  adsorbé et de la température en fonction de l'inverse de la température; densité  $\rho = 0.0908$  atomes/ $\text{\AA}^2$ .

Afin de vérifier si l'échantillon est en bon contact thermique avec la platine en cuivre, on a fait une mesure avec un film d' $^3\text{He}$  d'une densité de  $\rho = 0.0908$  atomes/ $\text{\AA}^2$  suivant la procédure décrite dans la section précédente. Un graphe du même type que la figure 3.11 est montré dans la figure 3.15. Le produit de l'aimantation et de la température est représenté en unités arbitraires en fonction de l'inverse de la température. Les unités arbitraires de la deuxième expérience sont différentes de celles de la première expérience d'un facteur 3.95. On constate que le chauffage parasite a effectivement disparu et que le film atteint la même température que la platine en cuivre.

# Chapitre 4

## Physique des surfaces

### 4.1 Adsorption physique d' $^3\text{He}$ sur Grafoil

L'adsorption est un processus par lequel un atome de gaz (l'adotome) est lié à la surface d'un solide (le substrat) à cause des forces attractives près de la surface. On peut distinguer deux types d'adsorption:

- la chimisorption où ces forces correspondent à des liaisons chimiques orientées localisant ainsi les atomes adsorbés avec des énergies de liaison typiques de l'ordre de 1000 K.
- la physisorption où la liaison est la conséquence des forces de van der Waals, faibles et non-orientées, donc ne localisant pas les atomes adsorbés a priori. Les énergies de liaison typiques sont de l'ordre de 100 K.

Evidemment, les gaz rares - comme l' $^3\text{He}$  - ne peuvent qu'être physisorbés. Afin de pouvoir étudier des systèmes bidimensionnels, il faut chercher à réduire le plus possible l'influence indésirée du substrat. Par conséquent, les énergies de liaison devraient être aussi homogènes que possible en fonction des coordonnées latérales. Ceci est une restriction sérieuse pour les pluparts de substrats, car le potentiel d'adsorption peut varier d'une manière importante avec la position latérale et surtout avec la facette cristalline qui est exposée à l'adsorption. Le choix de graphite comme substrat s'explique donc surtout par le fait qu'il ait une facette cristalline préféremment exposée à l'adsorption, la facette (0002).

Le potentiel d'adsorption d' $^3\text{He}$  sur graphite selon le modèle de Brami et al. [30] est montré sur la figure 4.1 en fonction de la coordonnée  $z$ . La forte répulsion à courte distance représente la repulsion de cœur dur entre les atomes et la partie attractive représente l'interaction van der Waals entre un atome et le graphite. Les états liés sont montrés par des traits minces. L'énergie de point zéro est particulièrement grande pour l' $^3\text{He}$  adsorbé à cause de la faible masse de l'atome d' $^3\text{He}$  et la forte localisation dans la direction  $z$ , ce qui donne lieu à une énergie cinétique très importante même à très basses températures. Ceci explique la grande différence entre le minimum du potentiel d'adsorption à  $-190$  K et l'énergie de l'état fondamental de  $-136$  K. Le premier état excité a une énergie d'excitation de 74 K et est donc bien séparé de l'énergie de l'état fondamental; par conséquent il n'est pas occupé à basses températures. Le potentiel montré dans la figure 4.1 est moyenné par rapport aux coordonnées latérales en négligeant la variation du potentiel dans le plan

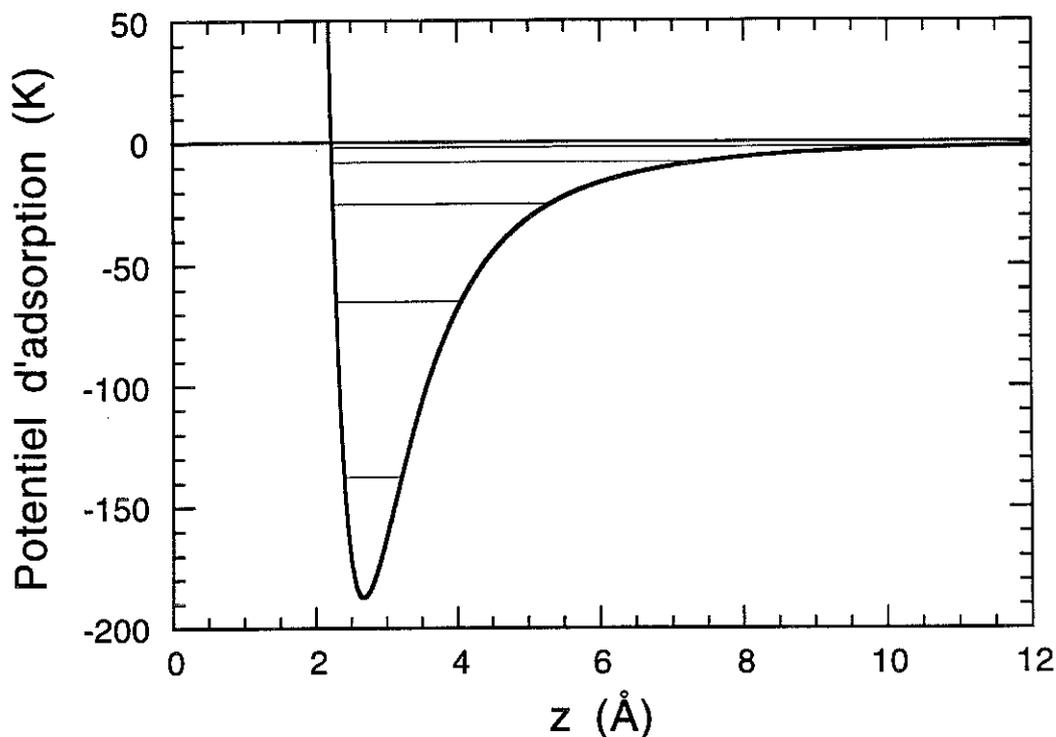


Figure 4.1: Le potentiel d'adsorption d' $^3\text{He}$  sur graphite (d'après Brami et al [30]).

du graphite. En fait cette variation est relativement faible, puisque l'énergie de liaison ne varie que d'environ 40 K entre les sites de forte adsorption à la position sur le centre des hexagones de graphite et les sites de faible adsorption à la position sur les atomes de Carbone. En conséquence, ce trou de potentiel n'est pas assez fort pour pouvoir localiser les atomes d' $^3\text{He}$  ayant une énergie cinétique d'environ 50 K. Néanmoins il n'est pas négligeable, puisque il donne lieu à la phase commensurable, qui sera discutée en détail plus bas.

En fait on utilise comme substrat le Grafoil [17] qui est une forme exfoliée du graphite, très souvent employé dans la physique des surfaces à basses températures, parce qu'il réalise toutes les quatre conditions principales posées au substrat:

- grande surface d'adsorption
- facilité de nettoyage
- bonnes propriétés thermiques
- potentiel d'adsorption très homogène

La première condition est particulièrement importante, parce que le nombre d'atomes adsorbés par unité de volume est plusieurs ordres de grandeurs inférieur à celui des échantillons massifs, ce qui réduit beaucoup les signaux de toute grandeur physique mesurée. La surface spécifique de Grafoil est d'environ  $20 \text{ m}^2/\text{g}$  ce qui permet d'obtenir des signaux mesurables. Par exemple, pour un échantillon typique d'une surface de  $50 \text{ m}^2$ ,

la monocouche d' $^3\text{He}$  sur Grafoil correspond à 0.1 mmoles d'atomes d' $^3\text{He}$ . La deuxième condition concerne des contaminations adsorbées sur le Grafoil à la température ambiante comme l'air, l'eau ou l'huile qu'il faut enlever avant une expérience. Il est suffisant de pomper la cellule à l'ambiante, à condition d'avoir chauffé le Grafoil sous vide à  $800^\circ\text{C}$  environ préalablement. La troisième condition a posé un certain problème, puisque le graphite est un très mauvais conducteur de chaleur à basses températures et par conséquent difficile à refroidir à des températures de l'ordre de quelques milliKelvin. Ce problème a été résolu en utilisant une technique spécialement adaptée [18], l'adhésion directe du Grafoil sur un support en cuivre. La quatrième condition est évidemment remplie, puisque le potentiel d'adsorption du Grafoil est le même que celui du graphite qui a été discuté plus haut.

## 4.2 Echelles de couvertures et isothermes d'adsorption

Afin de caractériser "l'épaisseur" des couches adsorbées d'une manière quantitative, on utilise la densité surfacique  $\rho$ , qui est définie comme le nombre d'atomes adsorbés par unité de surface et mesurée en atomes/ $\text{Å}^2$ . Le taux de couverture  $x$ , défini comme la fraction d'une monocouche, est aussi souvent utilisé. Cette grandeur est équivalente à la densité surfacique, si la densité surfacique à la monocouche est connue. Dans le cas d' $^3\text{He}$  sur Grafoil on a <sup>1</sup>

$$\rho_{\text{monocouche}} = 0.108 \text{ atomes}/\text{Å}^2 \quad (4.1)$$

On a donc pour le taux de couverture

$$x = \frac{\rho}{0.108 \text{ atomes}/\text{Å}^2} \quad (4.2)$$

Le nombre d'atomes adsorbés est très bien contrôlé par la quantité de gaz admis dans la cellule expérimentale, mais la surface du substrat n'est pas connue a priori. Afin de déterminer cette surface on utilise les résultats de Bretz et al. [2] qui ont mesuré les pic en chaleur spécifique de la fusion de la phase commensurable en fonction du taux de couverture. Le pic le plus grand correspond à la phase commensurable parfaite; c'est-à-dire à une phase solide à basse densité où chaque troisième site de forte adsorption est occupé par un atome d' $^3\text{He}$ ; la structure de cette phase est montrée sur la figure 4.2. L'existence de cette phase commensurable est une conséquence de la corrugation du potentiel d'adsorption discutée plus haut. Or, la densité de cette phase est bien connue, puisqu'on connaît le paramètre de maille du graphite, qui est  $1.42 \text{ Å}$ . Un calcul facile donne pour la densité

$$\rho_{\text{commensurable}} = 0.06366 \text{ atomes}/\text{Å}^2 \quad (4.3)$$

En utilisant cette densité et le nombre d'atomes mesuré, Bretz et al. ont pu déterminer la surface d'adsorption de leur échantillon.

Pour pouvoir se rapporter à ces mesures il faut avoir un moyen de comparer la surface d'adsorption de cellules différentes. Ce moyen est donné par une mesure de l'isotherme d'adsorption qui consiste à mesurer la quantité de gaz adsorbé en fonction de la pression

<sup>1</sup>Cette valeur est choisie d'une manière un peu arbitraire; elle correspond approximativement à la densité à laquelle la deuxième couche commence à être occupée.

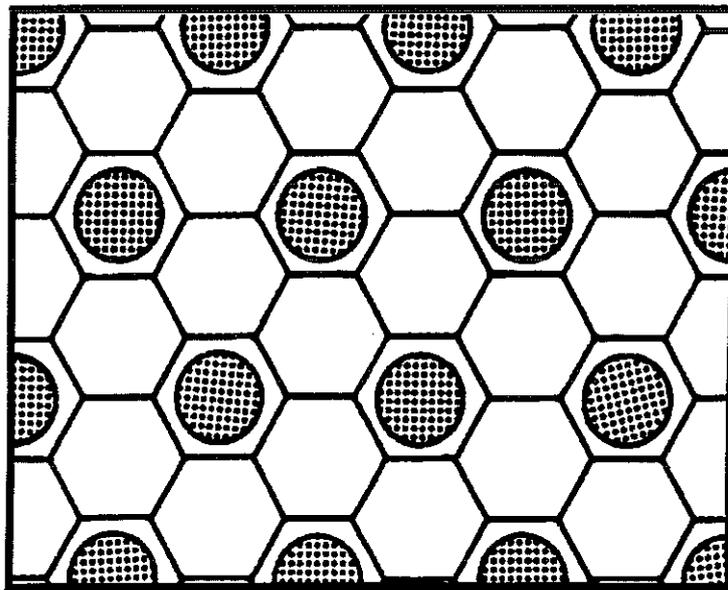


Figure 4.2: La phase commensurable pure.

à température constante (voir par exemple la référence [31]). Les courbes ainsi obtenues diffèrent simplement par un facteur multiplicatif, proportionnel à la surface d'adsorption d'une cellule. La figure 4.3 représente l'isotherme d'adsorption de  $^3\text{He}$  sur Grafoil à 4.2 K obtenue par Bretz et al. [2] et l'isotherme de notre cellule mesurée dans les mêmes conditions, normalisée en  $V_{ads}$  par un facteur de 5.75 qui correspond au rapport des surfaces des deux cellules. Bretz et al. ont trouvé pour le nombre d'atomes dans la phase commensurable pure 63,8 ccSTP [2] ("cubic centimeters at standard temperature and pressure";  $P = 101,3 \text{ hPa}$  et  $T = 273.15 \text{ K}$ ;  $1 \text{ ccSTP} = 44.64 \mu\text{moles}$ ); c'est-à-dire que la phase commensurable se trouve à 11.1 ccSTP pour notre cellule. Ceci correspond à une surface de  $46.9 \text{ m}^2$ .

Finalement il faut remarquer que cette échelle de couverture est particulièrement appropriée à des couvertures près de la phase commensurable (elle a été nommée "commensurate coverage scale" [18]). Il y a cependant d'autres échelles de couverture qui sont en désaccord avec l'échelle commensurable, si l'on veut une incertitude inférieure à 10 %. D'abord il existe une autre échelle de couverture commensurable, qui est déterminée par le minimum de la chaleur spécifique en fonction de la quantité adsorbée à basses températures, où la contribution à la chaleur spécifique du liquide domine celle du solide. Cette échelle, qui a été utilisée par Greywall [6], est différente de la nôtre de 4 %; ce problème sera discuté en détail dans le chapitre 6. Ensuite il y a plusieurs marqueurs de la "complétion" de la première couche: le "point A" et le "point B" dans des isothermes d'adsorption [2], un minimum dans le temps de relaxation vu par la RMN pulsée, etc. Malheureusement toutes ces échelles n'ont pas une précision meilleure que 10 % environ. Finalement il existe aussi des échelles de couverture liées à des mesures de diffraction de neutrons: une échelle de couverture déterminée dans la phase commensurable et une autre déterminée dans la phase incommensurable. La première est en accord à mieux que 4 % avec les autres échelles commensurables, mais la deuxième diffère de 8.5 %; c'est-à-dire la "surface incommensurable" est 8.5 % plus grande que la surface commensurable. Ce problème sera discuté en détail dans le chapitre 7.

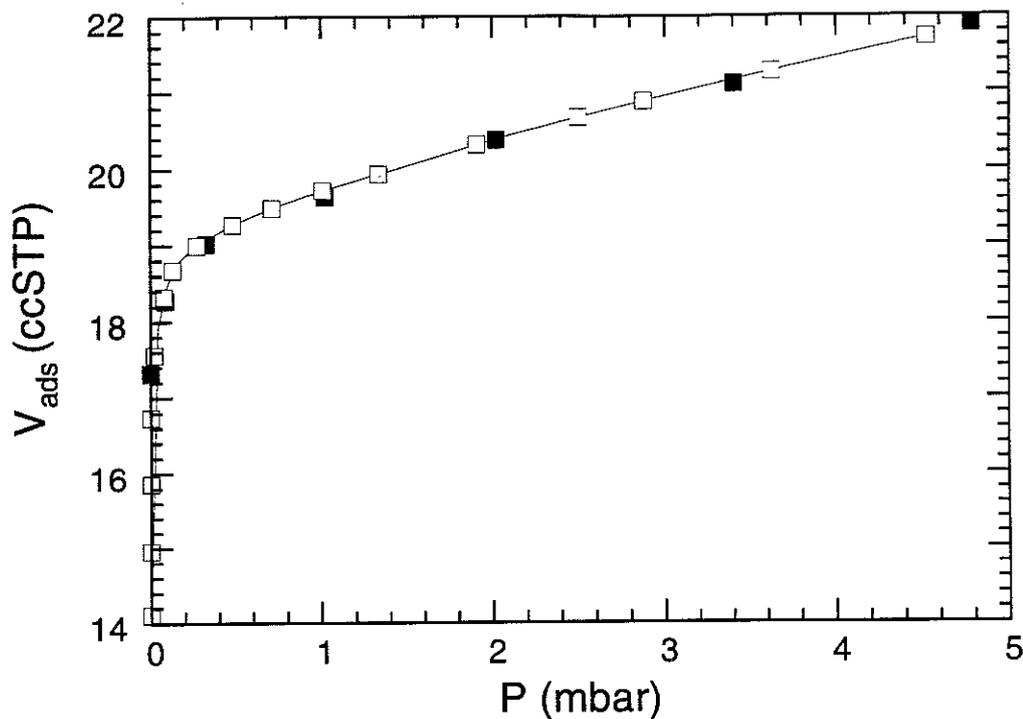


Figure 4.3: Volume adsorbé en fonction de la pression pour notre cellule (carrés ouverts) et pour celle de Bretz et al [2] multiplié par un facteur d'échelle égal à 5.75 (carrés pleins).

### 4.3 Préparation des échantillons

Lors du montage de la cellule dans le réfrigérateur, celle-ci est en contact avec de l'air; il faut la pomper pendant plusieurs journées afin de bien enlever les contaminants adsorbés et nettoyer la surface de Grafoil.

Pour mettre une couche d' $^3\text{He}$  d'une certaine densité dans la cellule, on introduit une quantité d' $^3\text{He}$  gazeux dans un volume étalonné (306 cc) en contrôlant la pression avec un Baratron MKS type 270. Cette quantité de gaz bien connue (à environ 1%) est admise dans la cellule à basses températures où elle est totalement adsorbée. La pression du gaz est alors extrêmement faible, ce qui peut poser des problèmes d'équilibre du système. En effet, la reconstruction de la couche (élimination des défauts et homogénéisation de la densité) requiert en général le transport des atomes par le gaz 3D: la diffusion à 2D, en particulier pour les phases solides, est extrêmement lente. Afin d'obtenir des couches uniformément distribuées, il est donc nécessaire de faire un recuit pour des couches contenant des phases solides. Pour les films sous-monocouche ceci est effectué à des températures de 7 K pendant plusieurs heures. Après le recuit on baisse la température doucement entre 7 K et 1 K (plusieurs heures) afin de maintenir l'équilibre thermodynamique pendant tout le processus. Par contre, pour des films au-dessus de la monocouche il faudrait une température de 10 K pour faire fondre et donc recuire la première couche. Mais à ces températures une quantité importante d' $^3\text{He}$  est desorbée. En plus la première couche pourrait se redistribuer avec chaque recuit et donc changer de propriétés magnétiques. En conséquence, on ne recuit la première couche qu'une seule fois; après on fait un recuit à plus basses températures (4.2 K) en ne changeant plus la première couche.

La série de mesures s'effectue en augmentant le taux de couverture; surtout pour les densités sous-monocouche où l'on ne peut opérer que dans cette direction, la pression du gaz à 4.2 K étant trop basse pour pouvoir enlever de l' $^3\text{He}$  de la cellule en pompant.

# Chapitre 5

## Résonance magnétique nucléaire (RMN)

### 5.1 Introduction

La RMN permet de mesurer directement l'aimantation nucléaire d'un système de spins, offrant la possibilité d'isoler cette contribution à l'aimantation totale par rapport aux contributions électroniques, par exemple. Cette technique est par conséquent très utilisée pour étudier les propriétés magnétiques des différentes phases d' $^3\text{He}$  (voir l'article de revue de Richards [32]).

Le principe de la mesure peut être exposé simplement en utilisant les équations de Bloch [33] décrivant l'évolution de l'aimantation d'un système de spins placés dans un champ externe  $H$  et soumis à un champ de radiofréquence  $H_1$  perpendiculaire à  $H$ . La composante de l'aimantation dans la direction  $x$  (c'est-à-dire perpendiculaire au champ constant) est décrite par l'expression

$$M_x = 2 H_1 (\chi' \cos(\omega t) + \chi'' \sin(\omega t)) \quad (5.1)$$

où la susceptibilité dynamique est donnée par les expressions

$$\chi'(\omega) = \frac{\chi_0 \omega_0 T_2}{2} \frac{(\omega_0 - \omega) T_2}{1 + (\omega - \omega_0)^2 T_2^2} \quad (5.2)$$

$$\chi''(\omega) = \frac{\chi_0 \omega_0 T_2}{2} \frac{1}{1 + (\omega - \omega_0)^2 T_2^2} \quad (5.3)$$

si l'on peut négliger la saturation [33]. Ici  $\chi_0$  représente la susceptibilité statique,  $\omega_0$  est la fréquence de Larmor et  $T_2$  représente le temps de relaxation transverse. On remarque que  $\chi''(\omega)$  a la forme d'une courbe Lorentzienne, et l'intégrale sur tout le domaine de fréquence est donc donnée par

$$\int_{-\infty}^{\infty} \chi''(\omega) d\omega = \frac{1}{2} \pi \omega_0 \chi_0 \sim \chi_0 \quad (5.4)$$

Cette intégrale est donc proportionnelle à la susceptibilité statique et donc à l'aimantation, la quantité d'intérêt. Afin de mesurer l'aimantation il suffit alors de mesurer  $\chi''(\omega)$  et intégrer ce signal <sup>1</sup>.

---

<sup>1</sup>En fait, l'amplitude de la raie donnée par l'expression 5.3. est proportionnelle à  $\chi_0$ , mais aussi à  $T_2$ . L'intégration de la raie permet d'éliminer ce facteur.

Ceci peut être réalisé grâce à une bobine de radiofréquence contenant l'échantillon, et formant un circuit électrique résonant en parallèle avec la capacité des cables. La bobine, placée perpendiculairement au champ constant afin de détecter  $M_x$ , est alimentée par une source de courant radiofréquence constant. Lorsqu'on balaie le champ à travers la résonance magnétique, on obtient une variation de la tension sur cette bobine qui est donnée par l'expression [33]

$$\frac{\Delta V}{V} = -4\pi\eta Q(\chi'' + i\chi') \quad (5.5)$$

où  $\eta$  est le facteur de remplissage.  $Q$  est le facteur de qualité du circuit résonant; la proportionnalité de la sensibilité à  $Q$  donne le nom à cette méthode de détection: Q-mètre. La détection des variations de tension sur la bobine de RMN en phase avec le courant du circuit résonant permet donc une mesure directe de  $\chi''(\omega)$  et donc, après intégration, de  $\chi_0$ .

## 5.2 Le spectromètre à RMN

Le signal de RMN est mesuré avec un Q-mètre à haute sensibilité et très basse puissance qui travaille comme un pont de radiofréquence. Le schéma de notre système de RMN est montré dans la figure 5.1. La radiofréquence à la fréquence de résonance du circuit de RMN est générée par l'oscillateur interne de la détection synchrone PAR 5302 et est envoyée à un diviseur.

Une partie de la radiofréquence passe par un atténuateur étalonné qui sert comme référence d'amplitude du signal d'adsorption; ensuite elle est envoyée dans le circuit d'injection qui est montré dans la figure 5.2. Une source de courant constant obtenue par une capacité de 0.2 pF en série avec la bobine de RMN alimente cette bobine. Son inductance ainsi que la capacité en parallèle ont été déterminées par le changement de la fréquence de résonance électrique obtenu en ajoutant une capacité en parallèle supplémentaire; les valeurs sont 0.46 mH et 250 pF. La bobine de RMN a été décrite dans la section 2.3. La capacité en parallèle est due à la capacité du cable coaxial qui va du circuit d'injection à la bobine de RMN. La fréquence de résonance à laquelle les raies de RMN ont été mesurées est de 470.6 kHz, ce qui correspond à un champ magnétique de 14.5 mT (fréquence de Larmor) pour la première expérience. Lors de la deuxième expérience, nous avons modifié le cable coaxial; la fréquence de résonance est alors de 510.5 kHz. Le facteur de qualité  $Q$  a été déterminé par une mesure de la dépendance de l'amplitude du signal en fonction de la fréquence; il est égal à 130. La résistance équivalente parallèle du circuit résonant, définie par l'expression

$$R_{||} = L\omega_0 Q \quad (5.6)$$

à une valeur de 180 k $\Omega$ . La capacité du cable coaxial menant à la bobine de RMN change légèrement de valeur à cause des variations de température dans le bain d'He, ce qui change la position de la résonance électrique. Par conséquent, on a ajouté une capacité ajustable dans le circuit d'injection pour l'ajustement fin de la résonance électrique.

L'autre partie de la radiofréquence est envoyée directement au circuit d'opposition qui est montré dans la figure 5.3. Ce circuit sert à produire un signal exactement opposé en amplitude et en phase à celui du circuit d'injection afin de minimiser le signal qui va être

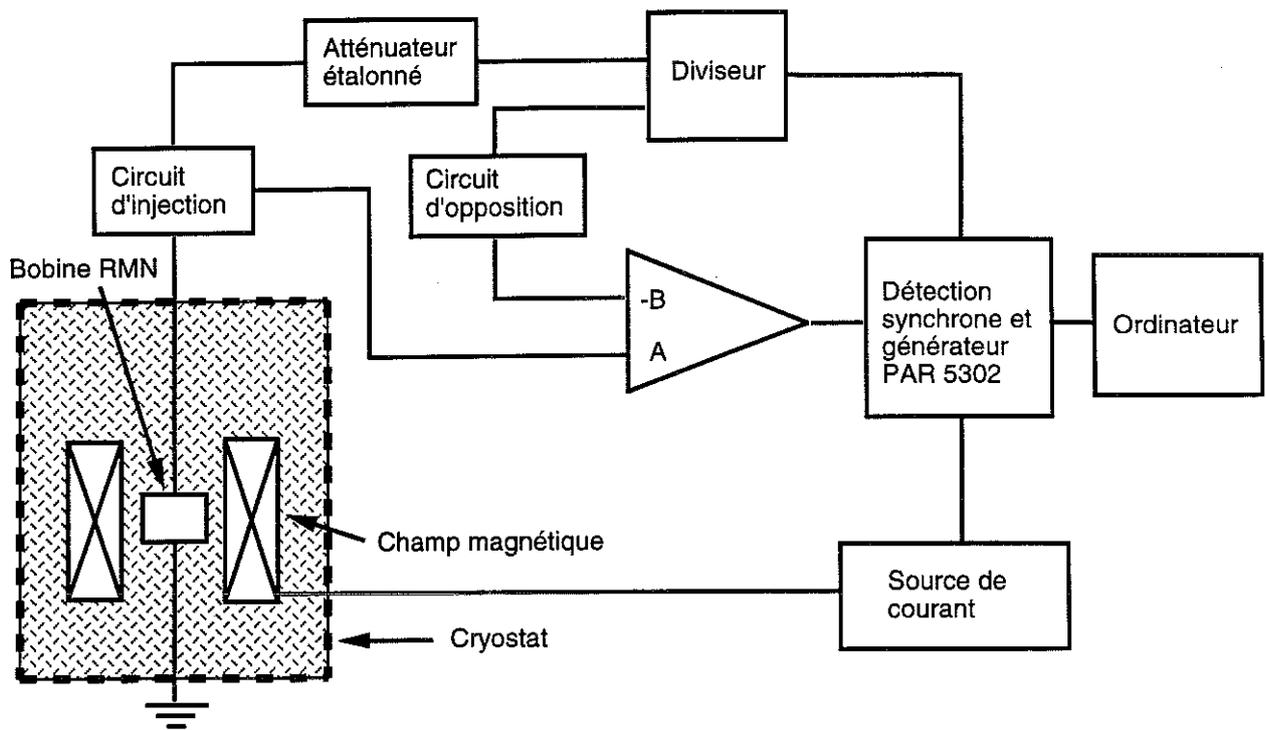


Figure 5.1: Diagramme de blocs du système de RMN.

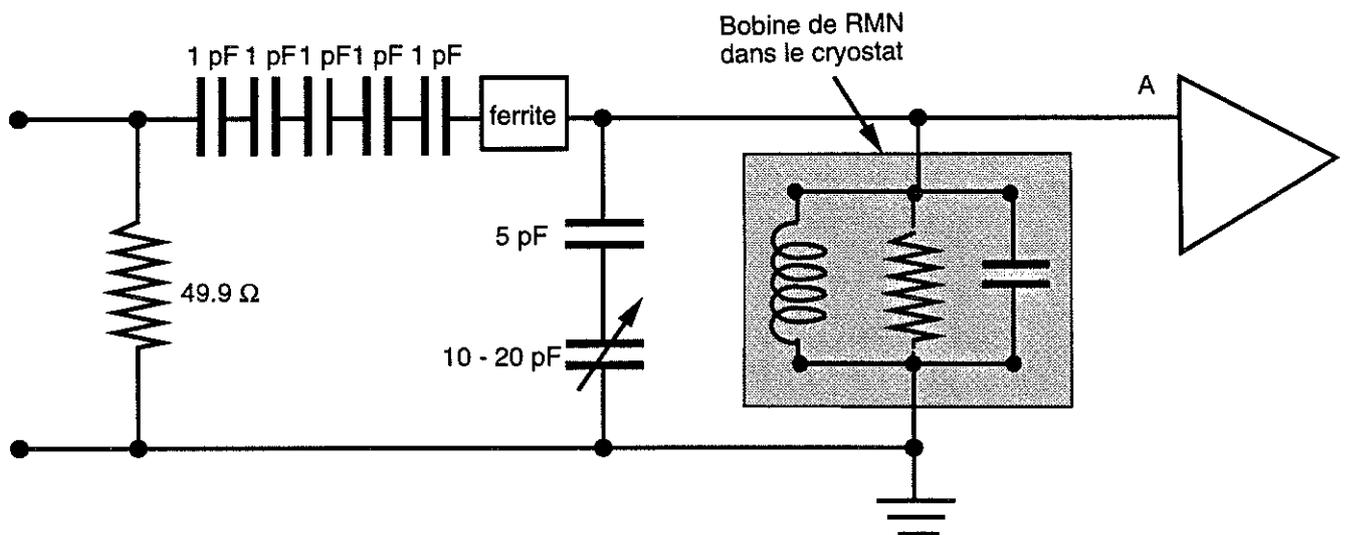


Figure 5.2: Circuit d'injection du Q-mètre.

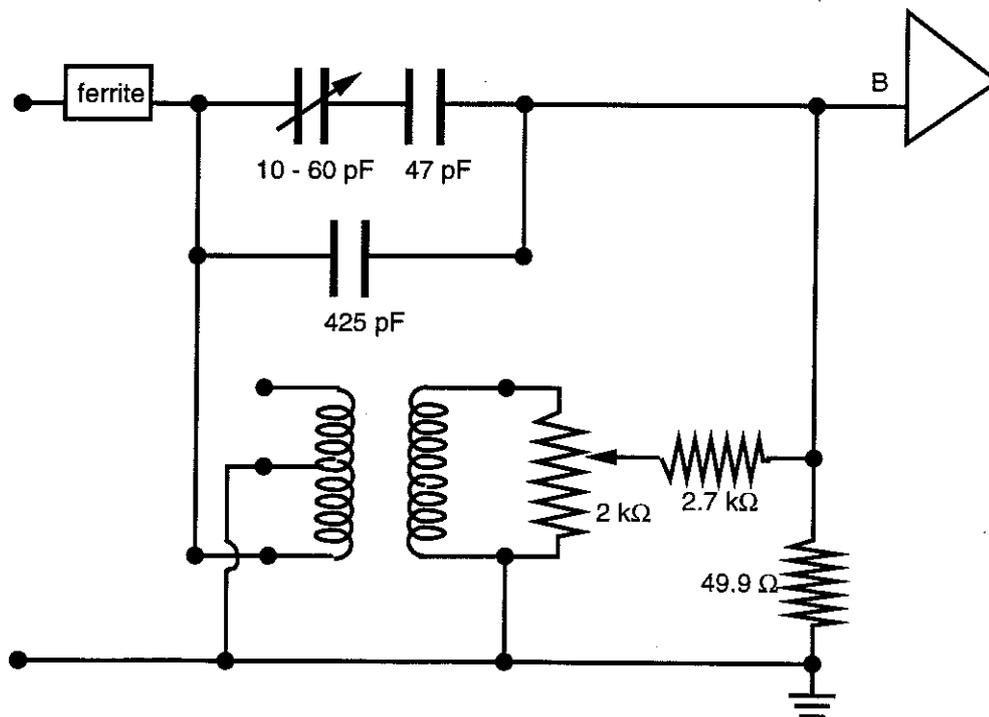


Figure 5.3: Circuit d'opposition du Q-mètre.

amplifié. Une capacité et une résistance variable servent à l'ajustement fin de l'amplitude et de la phase respectivement.

Les deux signaux sont injectés à l'entrée d'un préamplificateur de gain égal à 100, conçu par J.-L. Bret (figure 5.4). Le transistor est un "n-channel" JFET modèle U421 de Siliconix, spécialement conçu pour des applications à très fortes impédances d'entrée. Finalement le signal est envoyé à un deuxième amplificateur avec un gain de quatre et puis à la détection synchrone PAR5302.

Un ordinateur Macintosh II X contrôle l'expérience. Il permet de lire un multimètre Fluke 8840A (non montré dans la figure 5.1) qui mesure le courant dans la bobine de champ magnétique, ainsi que la détection synchrone PAR 5302. Celle-ci, à son tour, pilote le générateur de radiofréquence et la source de courant qui balaie le champ magnétique. L'acquisition de données et le stockage seront décrits plus en détail dans la section 5.5.

### 5.3 Mesures des raies RMN

Une mesure d'une raie RMN consiste en l'enregistrement de la tension sur la bobine de RMN, en phase et quadrature, lorsqu'on balaie le champ magnétique. Le champ magnétique est piloté par un convertisseur digital-analogique; cette tension est 'lissée' par un circuit RC adapté à la vitesse de balayage d'environ 7 sec/Gauss. Pendant le balayage, 500 points digitalisés sont mesurés par raie, en phase et quadrature, à des temps équidistants et enregistrés par l'ordinateur. Typiquement, 20 à 30 raies de RMN sont moyennées par 'mesure'. Les tensions sur la bobine sont limitées par le chauffage du Grafoil par des courants de Foucault (voir chapitre 3.5.2); elles varient entre 2 mV à



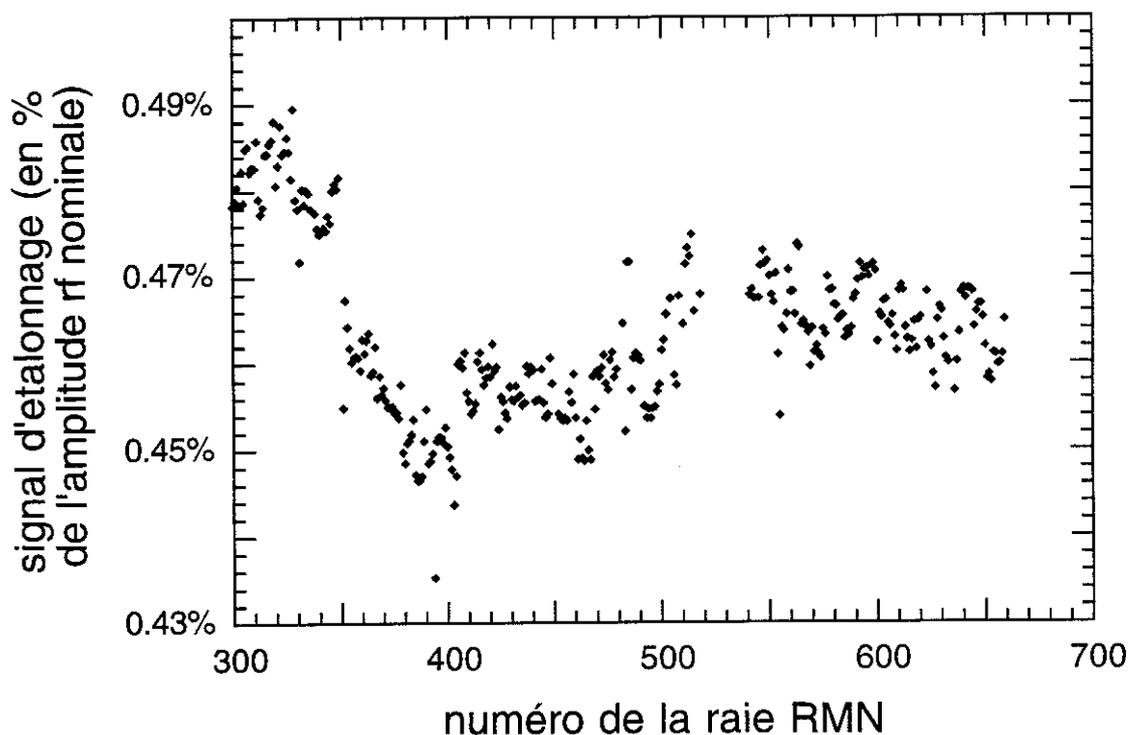


Figure 5.5: Signal d'étalonnage en fonction du numéro de la raie RMN, exprimé en % de la valeur nominale de la tension rf appliquée à la bobine; les variations sont dues principalement à celles de la tension; l'utilisation de l'atténuateur étalonné permet d'améliorer la précision des mesures.

basses températures et environ 15 mV à des températures plus hautes.

Afin de pouvoir comparer les raies de RMN d'une manière indépendante du niveau de la radiofréquence et de la sensibilité de la détection synchrone, on utilise un atténuateur étalonné comme référence. Il atténue le signal d'environ 0.46%. En outre, il permet d'ajuster la phase de mesure: puisque son impédance est purement résistive, on ajuste la phase jusqu'à ce que tout le signal de l'atténuateur étalonné soit dans un canal de la détection synchrone. Troisièmement, l'atténuateur étalonné permet de vérifier la stabilité à long terme du spectromètre de RMN; ceci est montré dans la figure 5.5. La période de temps entre la raie 300 et la raie 650 correspond à environ six mois. Il faut remarquer que la chute du signal à la raie numéro 350 environ peut être expliquée par un petit changement dans le circuit d'opposition. On voit que le spectromètre est stable à 2 ou 3% près et que l'atténuateur étalonné est stable à mieux que 1%.

Les variations de la tension en phase sont proportionnelles au signal d'absorption  $\chi''$  (équation 5.5.), dont l'intégrale est proportionnelle à la susceptibilité statique  $\chi_0$  (équation 5.4.). L'intégrale  $\int \Delta V/V dB$  est donc proportionnelle à l'aimantation; elle est mesurée par intégration numérique du signal en phase de la détection synchrone. A cause d'un léger déséquilibre du pont radiofréquence, le signal qui arrive à la détection synchrone n'est pas exactement zéro, mais légèrement décalé. En outre, le gain de l'amplificateur et les propriétés des circuits du spectromètre peuvent varier légèrement pendant la mesure d'une raie RMN, ce qui donne lieu à un niveau de signal différent entre le début et la fin d'une raie. On tient compte de ces deux effets par l'ajustement d'une ligne de base (voir figure 5.6) qui est soustraite de l'intégrale. Un ajustement fait avec une fonction

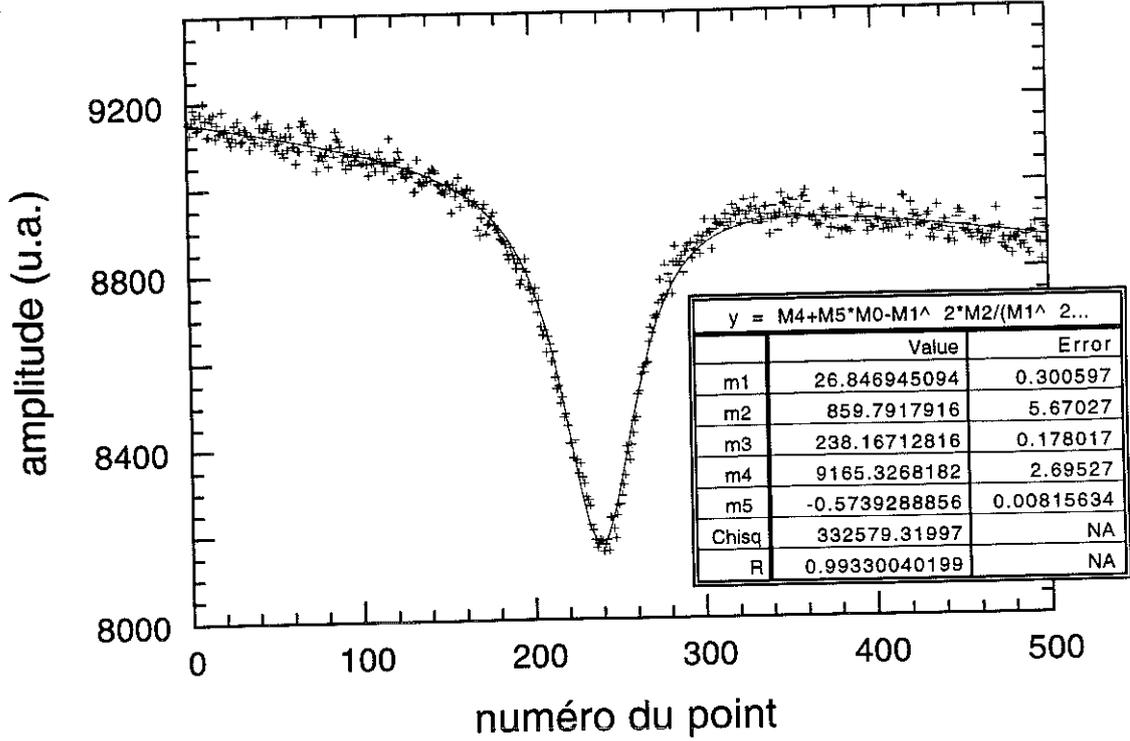


Figure 5.6: Raie RMN ajustée avec une Lorentzienne plus une ligne de base;  $\rho = 0.0207$  atomes/ $\text{\AA}^2$ ; température  $T = 7.2$  mK; moyenne de 15 raies; 500 points correspondent à 5 G; il faut noter que la quantité d' $^{13}\text{He}$  contribuant au signal ne correspond qu'à 3% d'une monocouche (25  $\mu\text{moles}$  d'atomes d' $^{13}\text{He}$ ).

Lorentzienne à cette raie est montré également dans la figure 5.6; l'équation complète de l'ajustement est

$$amplitude = \frac{-m_1^2 m_2}{m_1^2 + (m_0 - m_3)^2} + m_4 + m_5 m_0 \quad (5.7)$$

où  $m_0$  est le numéro du point,  $m_1$ ,  $m_2$  et  $m_3$  sont la largeur, l'amplitude et la position de la raie et  $m_4$  et  $m_5$  sont les paramètres de la ligne de base. On voit que la raie peut très bien être ajustée par une Lorentzienne et en principe on pourrait calculer l'intégrale à partir des paramètres d'ajustement, ce qui donnerait des valeurs apparemment plus précises. Mais en fait il est bien connu que les raies de RMN de  $^{13}\text{He}$  adsorbé sur le Grafoil n'ont pas une forme Lorentzienne pour toutes les densités [18]; par conséquent, on a préféré mesurer l'aimantation plus directement en intégrant numériquement la raie. Le signal d'adsorption et celui de dispersion à une densité de 0.174 atomes/ $\text{\AA}^2$  à 3.63 mK sont montrés dans la figure 5.7; ces signaux correspondent à ceux d'une monocouche.

Il faut s'assurer de couvrir toute la raie de RMN avec le balayage en champ afin de ne pas perdre de la surface de la raie. Ceci est fait par une mesure de l'intégrale en fonction du balayage pour chaque taux de couverture. Le balayage de travail est déterminé par le critère d'une perte dans l'intégrale de moins de 2%. Un exemple d'une telle mesure pour une densité de  $\rho = 0.164$  atomes/ $\text{\AA}^2$  est montré dans la figure 5.8; dans ce cas, le balayage de travail est 10 Gauss. On a trouvé que pour des densités inférieures à 0.035 atomes/ $\text{\AA}^2$  un balayage d'environ 5 G est suffisant, alors que pour des densités jusqu'à 0.09 atomes/ $\text{\AA}^2$  on a utilisé des balayages de 7.5 G et pour des densités correspondant à la deuxième couche des balayages de 10 G.

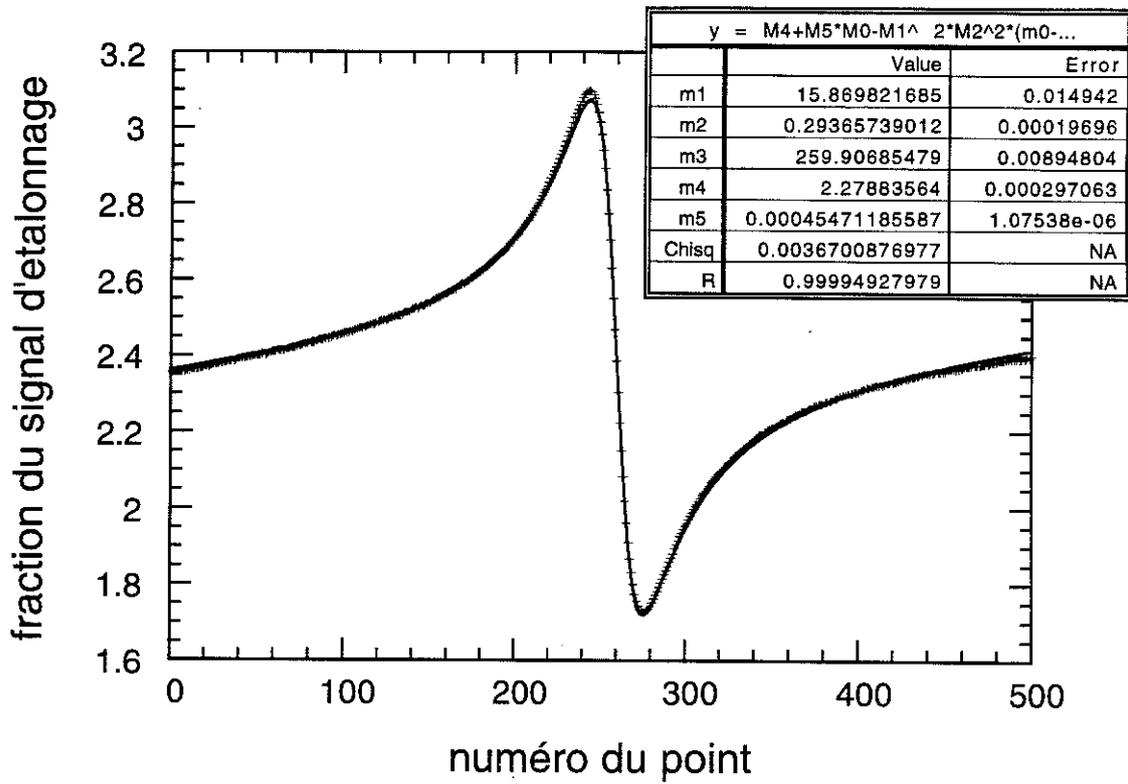
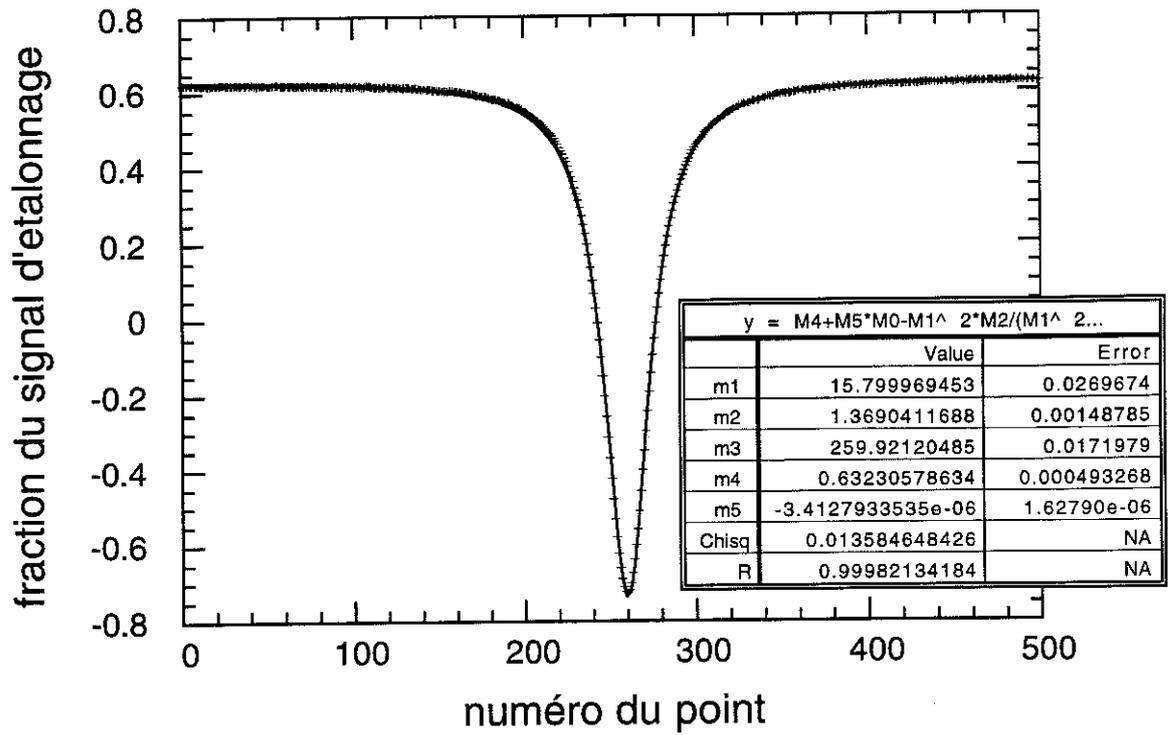


Figure 5.7: En haut: signal d'absorption ajusté avec une Lorentzienne plus une ligne de base; en bas: signal de dispersion; ( $\rho = 0.174$  atomes/ $\text{\AA}^2$ ; température  $T = 3.63$  mK; moyenne de 20 raies; 500 points correspondent à 10 G).

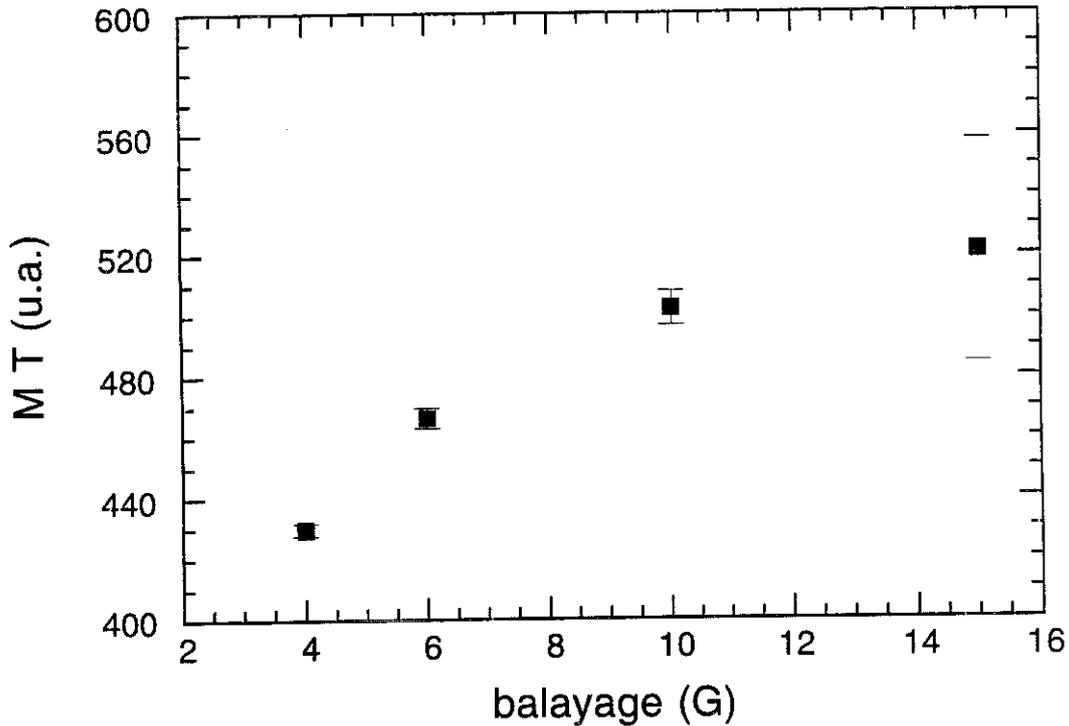


Figure 5.8: Produit de l'aimantation d' $^3\text{He}$  et de la température en fonction du balayage; densité  $\rho = 0.164$  atomes/ $\text{\AA}^2$ ;  $T = 5.04$  mK.

La largeur des raies RMN est surtout causée par l'inhomogénéité de la bobine de champ magnétique (figure 5.9). La demi-largeur à demi-hauteur (HWHM) est montrée pour deux valeurs du champ magnétique. L'homogénéité de la bobine de champ est inférieure à celle de la bobine utilisée dans des expériences antérieures [18], parce que celle-ci a eu un problème de contact au début de l'expérience. Par contre ce problème n'affecte pas les mesures d'aimantation. Un ajustement avec une Lorentzienne était très bon pour toutes les densités et températures explorées. Une discussion de la dépendance de la largeur des raies RMN du taux de couverture et de la température se trouve dans la section 6.7.

## 5.4 Bruit et sensibilité

Des mesures de bruit ont été effectuées à la fréquence de résonance, à 4.2 K. Afin de mesurer le bruit de tension du préamplificateur, on a court-circuité le circuit résonant avec une résistance de  $50 \Omega$  et mesuré le signal après amplification d'un facteur de 100 sans injecter de signal. La valeur "rms" de ce signal est calculée. La largeur de bande  $B$  est donnée par  $B = 1/(4 \tau)$  ( $\tau$  est la constante de temps de 100 ms), si la pente de coupure est de 6 dB par octave; ceci donne  $B = 2.5$  Hz. La valeur mesurée du bruit de tension rapportée à l'entrée est de

$$V_T = 11.8 \frac{nV}{\sqrt{\text{Hz}}} (\text{rms}) \quad (5.8)$$

Afin de mesurer le bruit total, on a branché le circuit résonant (la bobine de RMN) et, toujours sans injecter un signal, on a remesuré le niveau de bruit de la même manière.

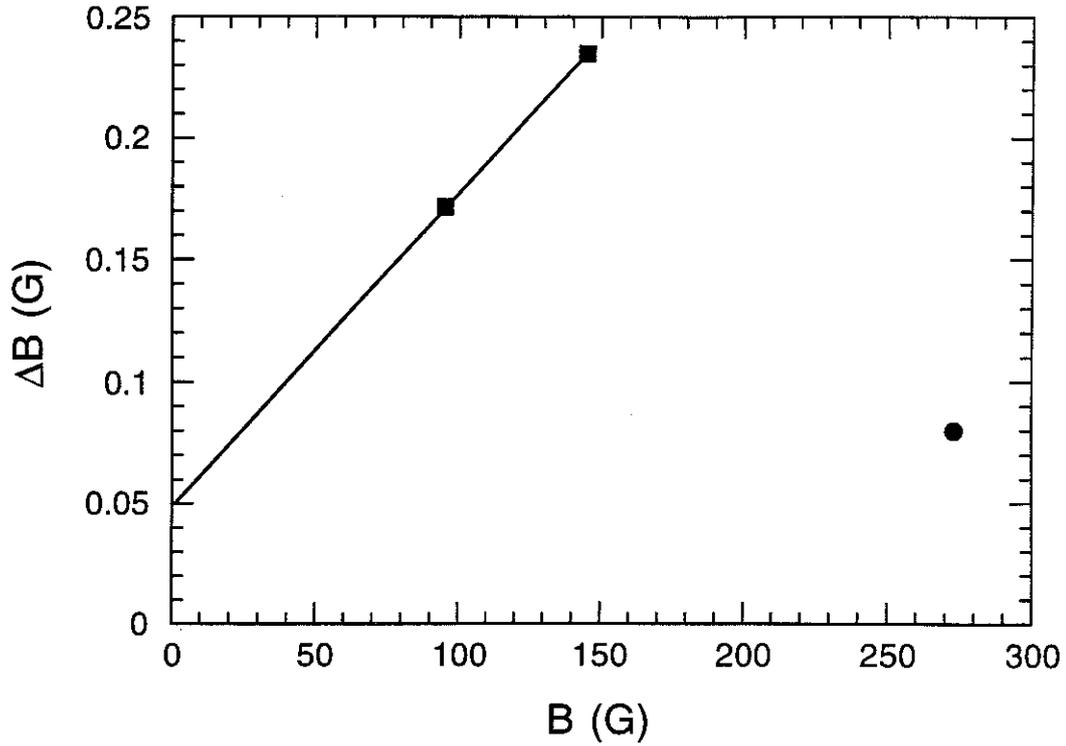


Figure 5.9: Largeur des raies RMN en fonction du champ magnétique; carrés:  $\rho = 0.0646$  atomes/ $\text{\AA}^2$ ;  $T = 6$  mK; cercle: valeur de la référence [18] à la même densité.

Dans ce cas, on obtient une valeur de

$$V_{total} = 38 \frac{nV}{\sqrt{Hz}} (rms) \quad (5.9)$$

Le bruit total est donc beaucoup plus élevé que le bruit de tension du préamplificateur. Finalement, on a vérifié que le microphonisme n'affecte pas beaucoup les résultats des mesures de bruit. En outre, l'injection d'un signal et le champ magnétique de la bobine de champ n'affectent pas le niveau de bruit.

Sur le plan théorique, on constate d'abord qu'il y a trois sources de bruit principales: le bruit Johnson, le bruit de tension et le bruit de courant du préamplificateur (voir par exemple la référence [34]). La tension de bruit Johnson pour une résistance de  $180 \text{ k}\Omega$  à une température de  $4.2 \text{ K}$  est donné par l'expression

$$V_J = (4 k T R B)^{\frac{1}{2}} = 6.8 \frac{nV}{\sqrt{Hz}} (rms) \quad (5.10)$$

où  $k$  est la constante de Boltzmann,  $T$  la température absolue,  $R$  la résistance et  $B$  la largeur de bande. Le bruit de Johnson est donc beaucoup plus petit que le bruit total mesuré. Les caractéristiques du transistor JFET U421 fournies par le fabricant indiquent pour la valeur du bruit de tension

$$V_T = 10 \frac{nV}{\sqrt{Hz}} (rms) \quad (5.11)$$

ce qui est en excellent accord avec la valeur mesurée. Le courant de bruit peut être calculé avec l'expression [35]

$$I_A^2 = \alpha C_{GS}^2 \omega^2 \gamma \frac{4 k T}{g_m} \approx 0.1 \text{ pA} \quad (5.12)$$

où  $\alpha$  et  $\gamma$  sont des paramètres qui sont approximativement constants [35] et  $C_{GS}$  est la capacité "gate-source" qui est de 3 pF (d'après le fabriquant),  $\omega$  est la fréquence de travail et  $g_m$  est la transconductance, qui est de 120–350  $\mu\mathcal{S}$ . Le bruit total est donné par l'expression

$$V_{total} = \sqrt{V_J^2 + V_T^2 + (I_A R_{||})^2} = 19 \frac{nV}{\sqrt{Hz}} (rms) \quad (5.13)$$

On trouve donc une valeur théorique inférieure à la valeur mesurée. En fait, vu les approximations nécessaires afin d'obtenir le courant de bruit, il n'est pas déraisonnable de calculer le courant de bruit à partir du bruit total mesuré; on trouve une valeur d'environ 0.2 pA. On constate donc que le bruit de courant est principalement responsable du bruit total. Par conséquent, il est souhaitable de développer un amplificateur qui travaille à basses températures. Les premiers résultats avec un amplificateur dans le bain d'He à 4.2 K ont montré que dans ce cas le bruit total est seulement limité par le bruit de Johnson qui était environ  $V_J = 8 \text{ nV}/\sqrt{Hz}$  [36] dans cette expérience.

La sensibilité est évidemment limitée par le niveau de bruit. Le signal le plus petit encore détectable est donné par la condition que le signal soit deux fois plus grand que le bruit (rapport signal à bruit de 3 dB). Ceci limite l'amplitude des raies RMN détectables à 80 nV environ sur la bobine de RMN; pour une tension sur la bobine de 2 mV à basses températures ceci correspond à une absorption de  $4 \cdot 10^{-5}$  où à 1/100 du signal d'étalonnage. Cette limite de sensibilité serait atteinte pour une monocouche d' $^3\text{He}$  adsorbé sur le Grafoil à une température de 600 mK environ. En fait, à hautes températures la tension maximale sur la bobine est de 15 mV; par conséquent l'absorption minimale détectable est de  $5 \cdot 10^{-6}$ ; l'équivalent d'une monocouche à  $T = 2 \text{ K}$ .

Par ailleurs, la précision sur l'aimantation est plutôt limitée par des instabilités de la ligne de base et non par le bruit. Ces instabilités qui sont dues à un petit changement de gain du préamplificateur où des propriétés des circuits de spectromètre sont de l'ordre du niveau de bruit. Les instabilités sont distribuées aléatoirement avec une fréquence typique d'une par dix raies RMN.

## 5.5 Le système d'acquisition de données

Afin de pouvoir traiter les milliers de raies RMN mesurées<sup>2</sup>, il est indispensable d'utiliser des moyens d'informatique puissants. Le programme d'acquisition qui a été écrit permet de piloter l'atténuateur programmable, le voltmètre, la source de courant de champ et tous les paramètres de la détection synchrone.

Dans un mode de test on peut mesurer le signal d'étalonnage et des raies RMN afin de pouvoir ajuster la phase de la détection synchrone et d'autres paramètres. Dans un mode de mesure on mesure un nombre donné de raies RMN dont l'amplitude et l'intégrale sont calculées. Typiquement 40 à 200 raies RMN sont mesurées par température et taux de couverture. Les raies RMN, la raie moyenne calculée ainsi qu'un fichier avec tous les paramètres de mesure sont stockés. Toutes ces données sont ensuite transférées à un deuxième ordinateur pour qu'aucun temps de mesure ne soit perdu par le traitement des données. Le problème principal du traitement des données est l'élimination des raies RMN contenant une instabilité de la ligne de base. Ceci est effectué avec un deuxième

<sup>2</sup>Le nombre de raies RMN mesurées est de 20000 environ pour chacune des deux expériences

programme qui calcule l'histogramme des intégrales et qui permet de visualiser des raies RMN sur l'écran. Les raies RMN qui dévient de plus que deux écarts standards de la valeur moyenne sont éliminées de la statistique à condition qu'elles contiennent une instabilité de la ligne de base. La valeur moyenne et l'écart standard sont déterminés à partir des autres raies RMN.

## 5.6 Signal de RMN des protons

La résonance magnétique des protons est relativement proche de celle de  $^1\text{H}$ : le proton est observé à une fréquence de 42.5759 MHz dans un champ magnétique de 10 kG, alors que la fréquence correspondant au noyau  $^3\text{He}$  est de 32.435 MHz. Les protons vus par notre spectromètre de RMN sont surtout situés dans le plastique de la bobine de RMN et dans le dispositif à proximité de la bobine (voir figures 2.3, 2.7). Les raies RMN des protons sont très large à cause de l'inhomogénéité du champ magnétique à cette grande échelle et à cause des liaisons chimiques différentes des protons. Une raie de RMN des protons est montrée dans la figure 5.10; on note que la largeur à demi hauteur est de 12 Gauss ce qui est à comparer avec une largeur typique des raies  $^3\text{He}$  d'environ 0.2 Gauss. Cette largeur énorme peut poser un certain problème pour les mesures  $^3\text{He}$ , puisque la raie des protons peut s'étendre dans les raies  $^3\text{He}$  et donc altérer ces mesures. Un exemple de cet effet est montré dans la figure 5.11; le signal lorentzien  $^3\text{He}$  est superposé avec celui des protons. Pour cette raison, la ligne de base du signal  $^3\text{He}$  n'est pas une droite mais a une forme courbée. On a étudié les propriétés des signaux des protons, afin de comprendre comment on peut réduire cet effet. D'abord on a mesuré l'amplitude du signal de RMN des protons en fonction de la température de l'échantillon pour voir jusqu'à quelle température les protons peuvent être refroidis. Les résultats sont montrés dans la figure 5.12: on voit que les protons commencent à suivre une loi de Curie lorsque l'on réchauffe le système à plus que 30 mK. Cette température correspond bien à celle attendue pour le plastique du mandrin de la bobine RMN. Par ailleurs, l'amplitude du signal des protons aux basses températures correspond à celle d'une monocouche  $^3\text{He}$  à une température de 3 mK environ. Ensuite, après avoir chauffé la platine de régulation en température à une température de 500 mK, on a mesuré la relaxation des protons. Alors que la température du réfrigérateur descend en-dessous de 30 mK en deux heures environ, on détermine le temps de relaxation en température des protons à  $\tau = 110$  heures (figure 5.13). Ce temps de relaxation très long nous permet de saturer le signal des protons pendant un temps assez long pour effectuer les mesures de RMN sur  $^3\text{He}$ . En outre, on a trouvé qu'on peut également saturer les protons en injectant une puissance de radiofréquence plus importante que d'habitude pendant quelque temps; ceci est la méthode habituelle de saturation de protons. Par ailleurs, la raie de la figure 5.6 a été mesurée après la raie de la figure 5.11 en suivant justement cette procédure.

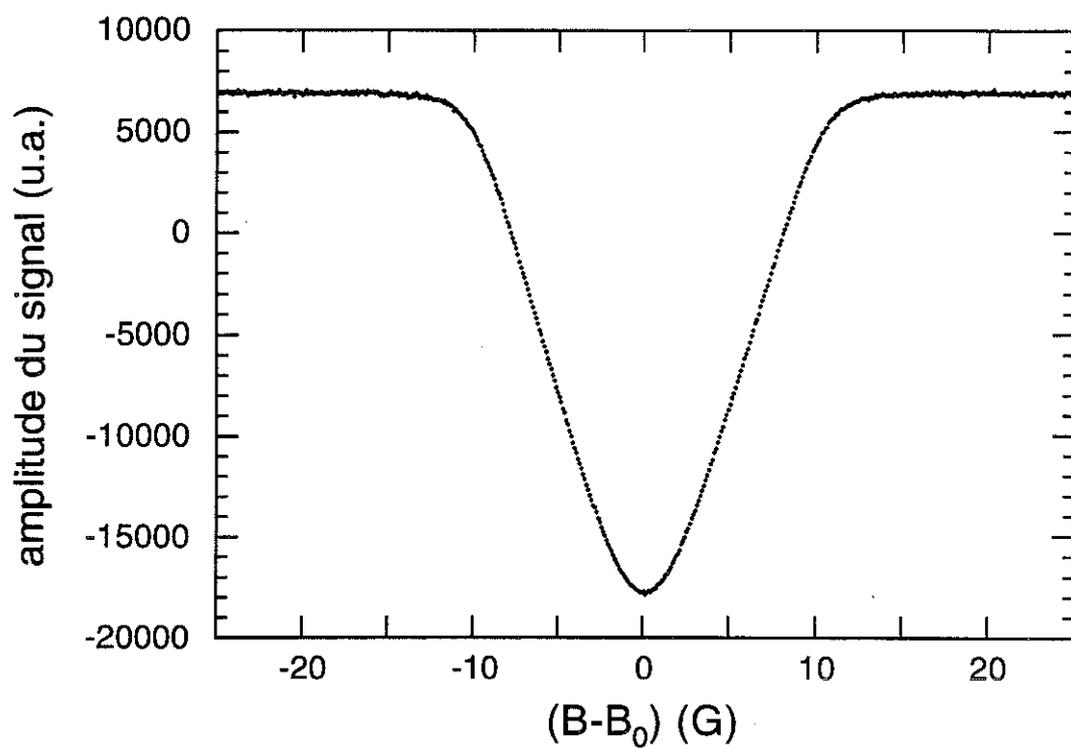


Figure 5.10: Raie RMN des protons.

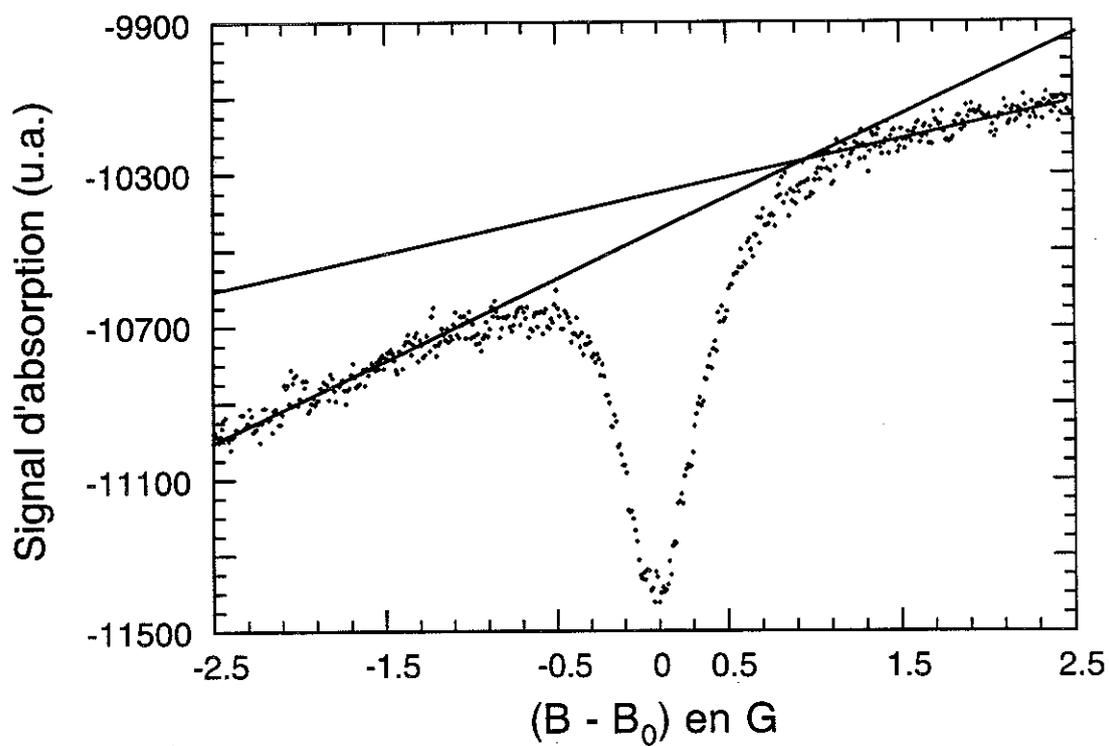


Figure 5.11: Influence du signal des protons (avant saturation) sur le signal d' $^3\text{He}$ ;  $\rho = 0.0207 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$ ; température  $T = 5.7 \text{ mK}$ ; moyenne de 15 raies.

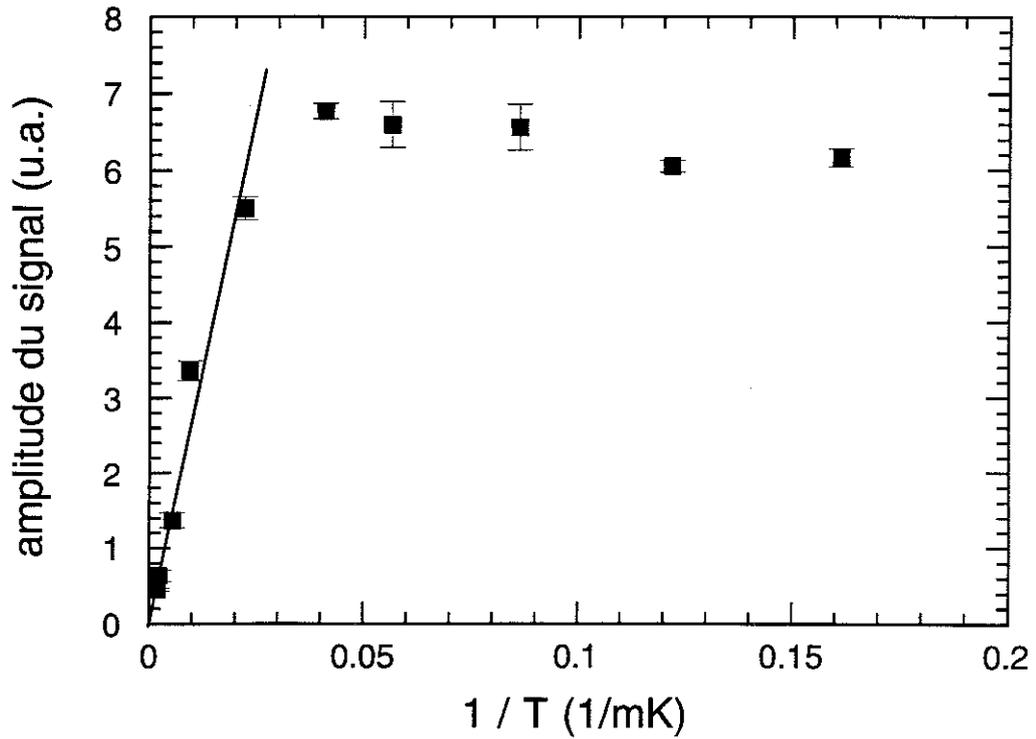


Figure 5.12: Signal de RMN des protons en fonction de l'inverse de la température; la droite correspond au comportement des spins libres.

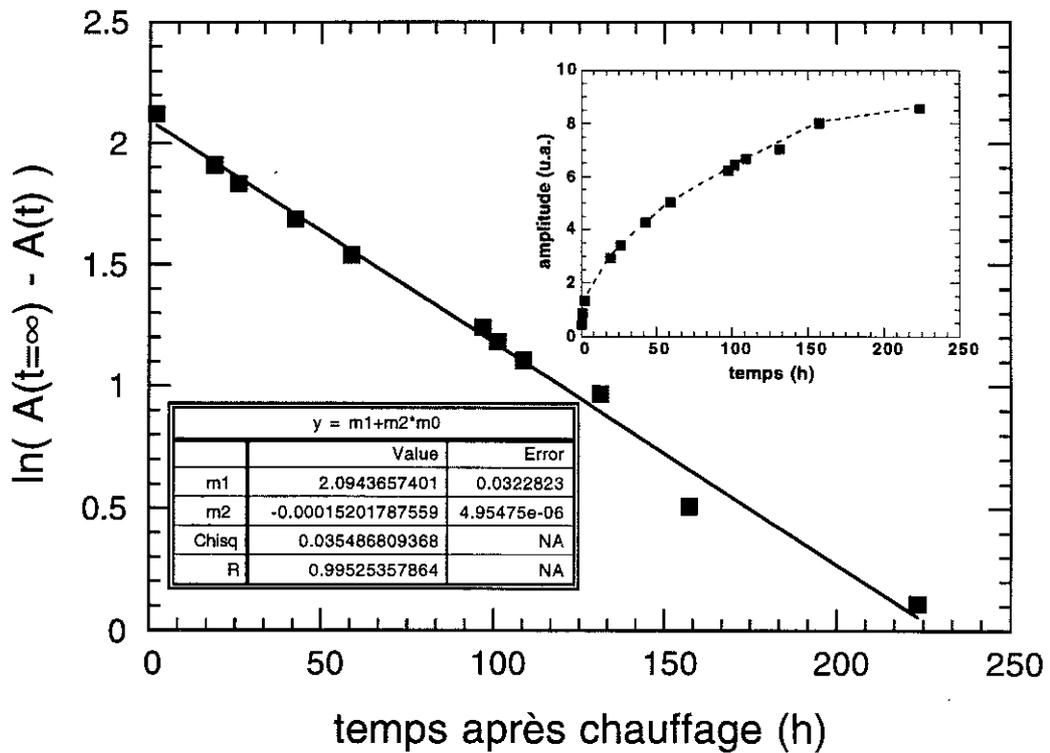


Figure 5.13: Relaxation du signal des protons en fonction du temps après un chauffage à 500 mK suivi d'un refroidissement rapide à  $T < 30$  mK (2 heures).

# Chapitre 6

## Le diagramme de phases au-dessous de la phase commensurable

### 6.1 Introduction

La première couche d' $^3\text{He}$  adsorbé sur le Grafoil présente plusieurs phases structurales (figure 6.1). Aux plus basses densités, tous les atomes adsorbés sont localisés par des sites de forte adsorption. Des régions comprenant des atomes d' $^3\text{He}$  immobiles, à haute densité ( $\rho \approx 0.11$  atomes/ $\text{\AA}^2$ ) sont formées. A des densités plus hautes, on observe un liquide de Fermi à deux dimensions marqué par l'effet de dégénérescence. A des densités encore plus élevées, on trouve une région de coexistence entre le liquide de Fermi et la phase commensurable dont la structure est montrée dans la figure 4.2. A  $\rho = 0.06366$  atomes/ $\text{\AA}^2$  la phase

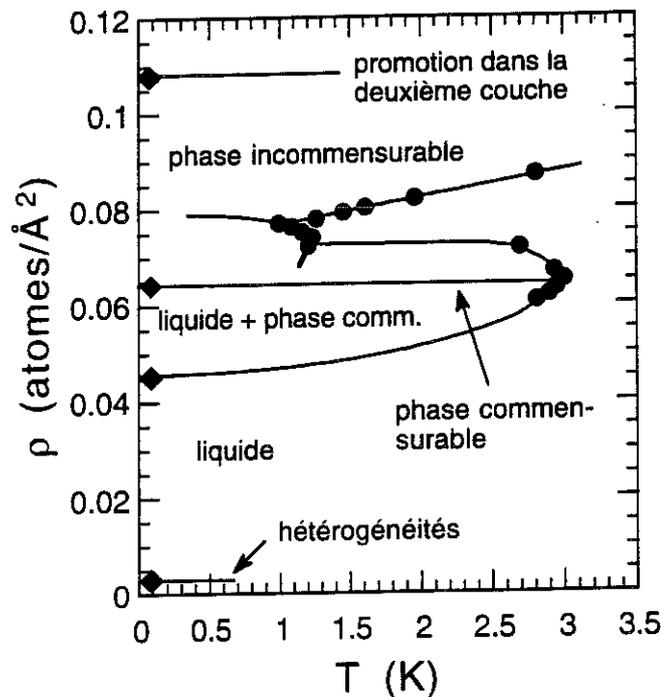


Figure 6.1: Diagramme de phases de la première couche d' $^3\text{He}$  sur Grafoil, les cercles correspondent aux résultats des mesures de chaleur spécifique des références [2, 37, 38, 39, 40]; les losanges correspondent aux résultats à basses températures [6] et à nos mesures.

commensurable est complète et aux plus hautes densités elle donne lieu, d'une manière encore peu éclaircie, à la phase incommensurable. Finalement à  $\rho = 0.108$  atomes/Å<sup>2</sup> les atomes d'<sup>3</sup>He sont promus dans la deuxième couche.

L'intérêt d'étudier ce diagramme de phases apparemment bien connu est fondé sur plusieurs points. Premièrement, la quantité des sites de forte adsorption n'est pas connue avec précision, alors que plusieurs quantités physiques comme la masse effective, l'existence d'un solide à lacunes où des effets de commensurabilité dans des films multicouches dépendent d'une manière importante de la densité mesurée. Les atomes localisés ne sont pas détectés par des mesures de chaleur spécifique à basses températures; par conséquent les densités déterminées dans ces mesures doivent être corrigées. Deuxièmement, les propriétés des liquides de Fermi de la première couche n'ont pas encore été étudiées, alors que la susceptibilité nucléaire peut être mesurée pour une large gamme de densité du liquide. Ces liquides de Fermi à 2D sont très intéressants du point de vue théorique. Troisièmement, il y a un désaccord important sur le début de la région de coexistence observé par des mesures de la chaleur spécifique [6] et des mesures de RMN [41]. Il n'était pas clair a priori si ces deux types de mesures pouvaient donner des résultats différents sur le début de la coexistence. Finalement un échange magnétique important a été prédit pour un solide lacunaire [42] qui devrait exister au-dessous de la phase commensurable. Ceci n'a jamais été observé.

Le but de cette expérience était d'éclaircir ces quatre points.

## 6.2 Mesures

La susceptibilité nucléaire <sup>1</sup> de l'<sup>3</sup>He adsorbé sur le Grafoil a été mesurée à des températures entre 4.8 et 600 mK pour 12 taux de couverture:  $\rho = 0.0055, 0.0107, 0.0207, 0.0307, 0.0358, 0.0411, 0.0467, 0.0523, 0.0571, 0.0625$  et  $0.0646$  atomes/Å<sup>2</sup> et à  $\rho = 0.0908$  atomes/Å<sup>2</sup> pour la détermination de l'échelle de température (voir chapitre 3.5.2). La constante de Curie  $C_\rho$  est proportionnelle au nombre de spins et augmente donc linéairement avec la densité. On utilise la constante de Curie à la phase commensurable  $C_0$  comme référence

$$C_\rho = C_0 \frac{\rho}{\rho_0} \quad (6.1)$$

où  $\rho_0$  est la densité de la phase commensurable.

Dans cette expérience le film d'<sup>3</sup>He consiste d'une seule couche qui peut être liquide ou solide. L'aspect général du signal de RMN de ces films est montré dans la figure 6.2. Le liquide est dégénéré à basses températures, et ne contribue donc au signal qu'à hautes températures, alors que le solide suit une loi de Curie jusqu'à très basses températures. Afin de souligner les déviations par rapport à la loi de Curie, on choisit habituellement un type de graphe où le produit de l'aimantation et de la température est représenté en fonction de l'inverse de la température; la loi de Curie correspond à une droite de pente nulle dans ce graphe. L'aspect général de ce type de graphe est montré dans la figure 6.3; la dégénérescence du liquide est clairement vue à basses températures et les contributions du solide et du liquides sont faciles à distinguer.

L'ensemble des données mesurées est montré dans la figure 6.4 comme le produit de

---

<sup>1</sup>La grandeur physique mesurée en réalité est le moment magnétique total et non la susceptibilité nucléaire. Néanmoins on utilise habituellement la susceptibilité ce qui est possible, parce qu'on travaille à une fréquence fixe et exprime la susceptibilité en unités arbitraires.

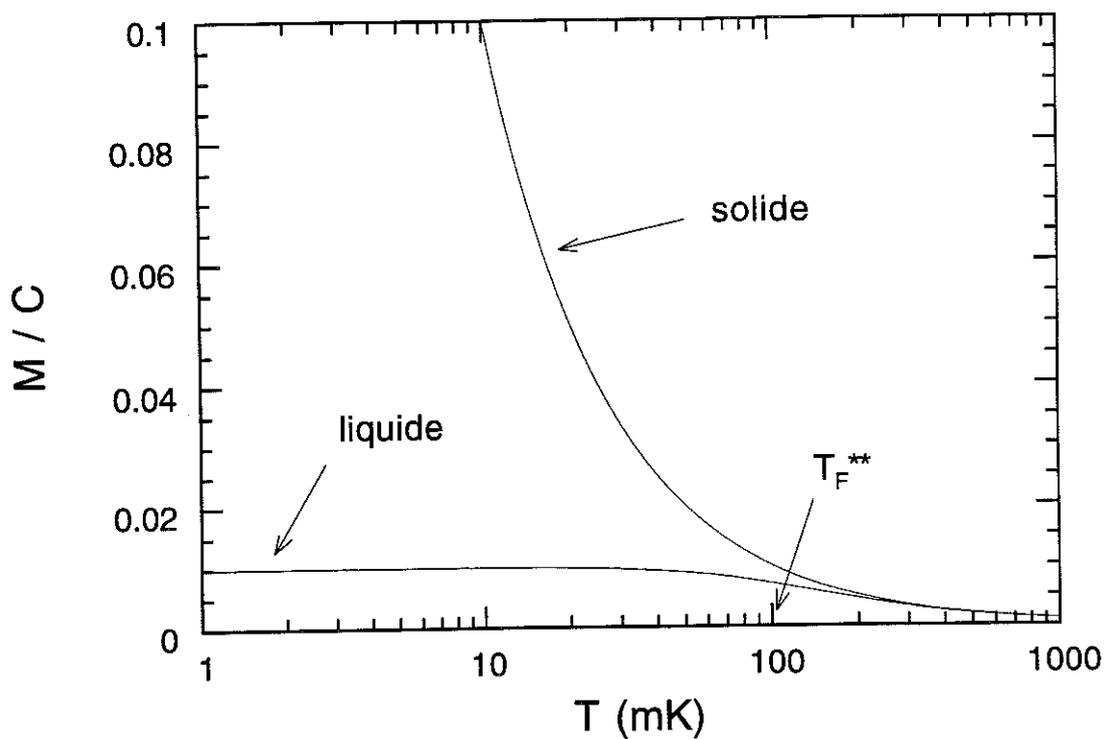


Figure 6.2: Aimantation d'une phase liquide et celle d'une phase solide en fonction de la température.

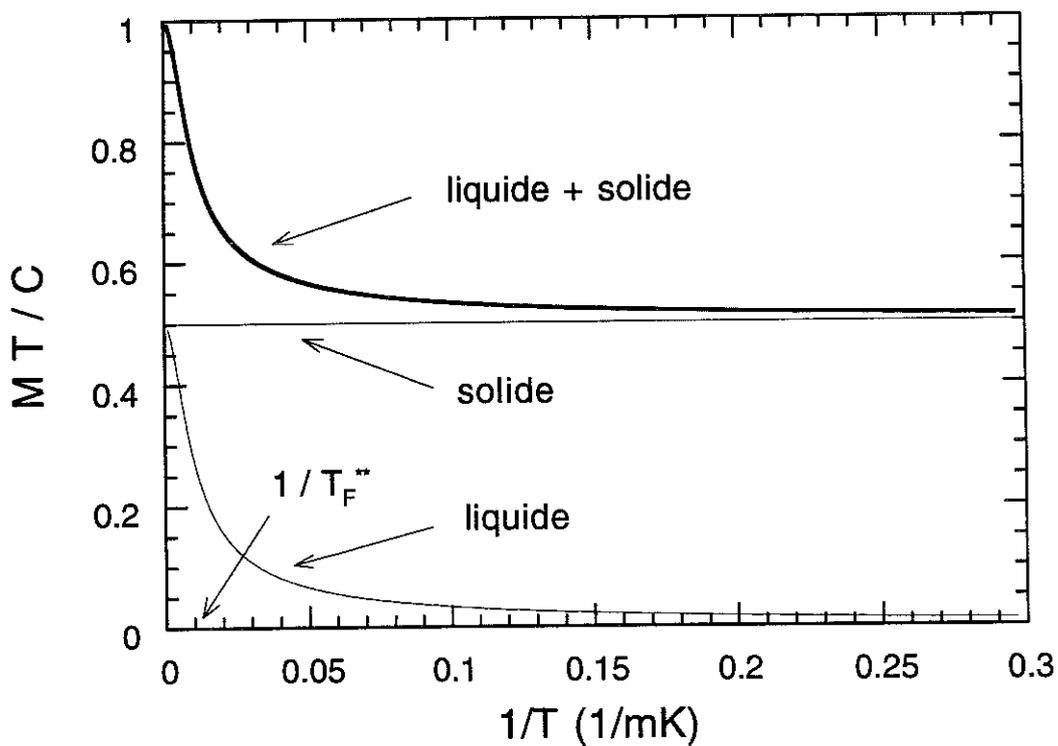


Figure 6.3: Produit de l'aimantation et de la température d'une phase liquide et celle d'une phase solide en fonction de l'inverse de la température.

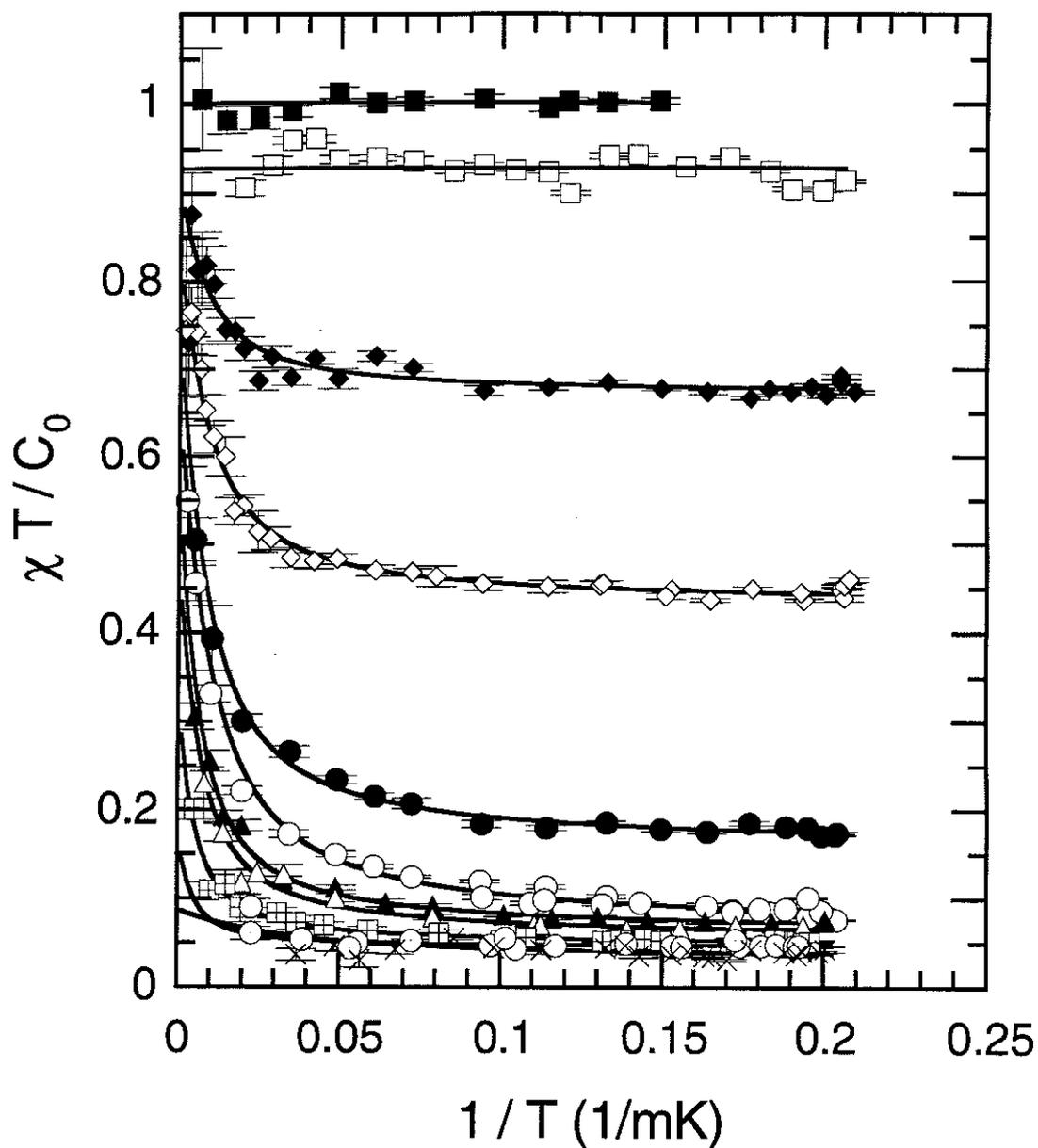


Figure 6.4: Produit de la susceptibilité et de la température normalisé par la constante de Curie de la phase commensurable  $\chi T/C_0$  en fonction de l'inverse de la température; croix: 0.0055, cercles pointés: 0.0107, carrés croisés: 0.0207, triangles vides: 0.0307, triangles pleins: 0.0358, cercles vides: 0.0411, cercles pleins: 0.0467, losanges vides: 0.0523, losanges pleins: 0.0571, carrés vides: 0.0625 et carrés pleins: 0.0646 atomes/ $\text{\AA}^2$ .

l'aimantation et de la température en fonction de l'inverse de la température. A basses températures ( $T < 10-20$  mK), on observe une contribution constante en température ce qui est la signature d'une phase solide. A plus hautes températures on voit une remontée de  $MT$  par rapport à la valeur constante, ce qui est le comportement attendu d'un liquide de Fermi: celui-ci suit la loi de Curie à des températures supérieures à la température de Fermi et est dégénéré au-dessous de cette température. La valeur limite à hautes températures correspond à la constante de Curie  $C_\rho$  et augmente linéairement avec la densité. Les barres d'erreur représentent l'erreur statistique déterminée par la mesure d'une vingtaine de raies RMN. Pour les hautes températures cette erreur représente la vraie erreur de la mesure, alors que pour les basses températures celle-ci est visiblement plus grande. Dans ce cas l'erreur visible dans la dispersion des données, est plutôt donnée par des instabilités de la ligne de base (discutées dans la section 5.4).

Les données pour des densités au-dessous de  $\rho = 0.0625$  atomes/Å<sup>2</sup> ont été ajustées par l'expression

$$\frac{\chi T}{C_0} = n_{solide} + \frac{n_{liquide} T}{T_F^{**}} (1 - e^{-T_F^{**}/T}) \quad (6.2)$$

où  $n_{solide} = N_{solide}/N_0$  et  $n_{liquide} = N_{liquide}/N_0$ ;  $N_{solide}$ ,  $N_{liquide}$  et  $N_0$  sont respectivement le nombre d'atomes dans la phase solide, liquide et dans la phase commensurable pure. Cette expression décrit un système avec  $N_{solide}$  atomes dans une phase solide et donc caractérisés par une susceptibilité suivant une loi de Curie jusqu'à très basses températures, et  $N_{liquide}$  atomes dans une phase liquide avec une température de Fermi effective  $T_F^{**}$ . Puisque  $n_{solide} + n_{liquide} = N/N_0 = \rho/\rho_0$  il n'y a que deux paramètres à ajuster  $n_{solide}$  et  $T_F^{**}$ . Cette expression simple donne un très bon ajustement dans toute la gamme des taux de couverture et des températures qu'on a étudiés ici.

La dépendance en densité de la quantité du solide  $n_{solide}$  du film d'<sup>3</sup>He est montrée dans la figure 6.5. A basses densités on observe une petite quantité de solide qui augmente légèrement de 2 % d'une monocouche jusqu'à 4 % à 0.04 atomes/Å<sup>2</sup>. Entre 0.0467 atomes/Å<sup>2</sup> et 0.0571 atomes/Å<sup>2</sup> la quantité de solide monte linéairement avec la densité, ce qui indique une région de coexistence de deux phases dont une est le liquide de Fermi et l'autre est une phase solide. Une extrapolation de l'ajustement linéaire des données dans cette région au point où le film est complètement solidifié (ligne diagonale de la figure 6.5) donne une valeur pour la densité de ce solide de 0.0641 atomes/Å<sup>2</sup>, une valeur très proche de la densité de la phase commensurable (0.06366 atomes/Å<sup>2</sup>). Cette observation confirme la supposition raisonnable que le système solidifie dans cette phase commensurable. Le début de la région de coexistence peut être caractérisé soit par une extrapolation à  $n_{solide} = 0$  (point a dans la figure 6.5 à 0.0434 atomes/Å<sup>2</sup>), soit par la densité au point d'intersection des extrapolations des ajustement linéaires à basses et à hautes densités (point b dans la figure 6.5 à 0.0449 atomes/Å<sup>2</sup>). Ceci sera discuté plus en détail dans la section 6.5. A une densité de 0.0646 atomes/Å<sup>2</sup>, le film est complètement solide et  $n_{solide} = 1$ .

La dépendance en densité de la température de Fermi effective  $T_F^{**}$  du film d'<sup>3</sup>He est montrée dans la figure 6.6. La température de Fermi d'un gaz de Fermi en deux dimensions est donnée par l'expression

$$T_F = \frac{\pi \hbar^2 N}{k_B m_3 A} \quad (6.3)$$

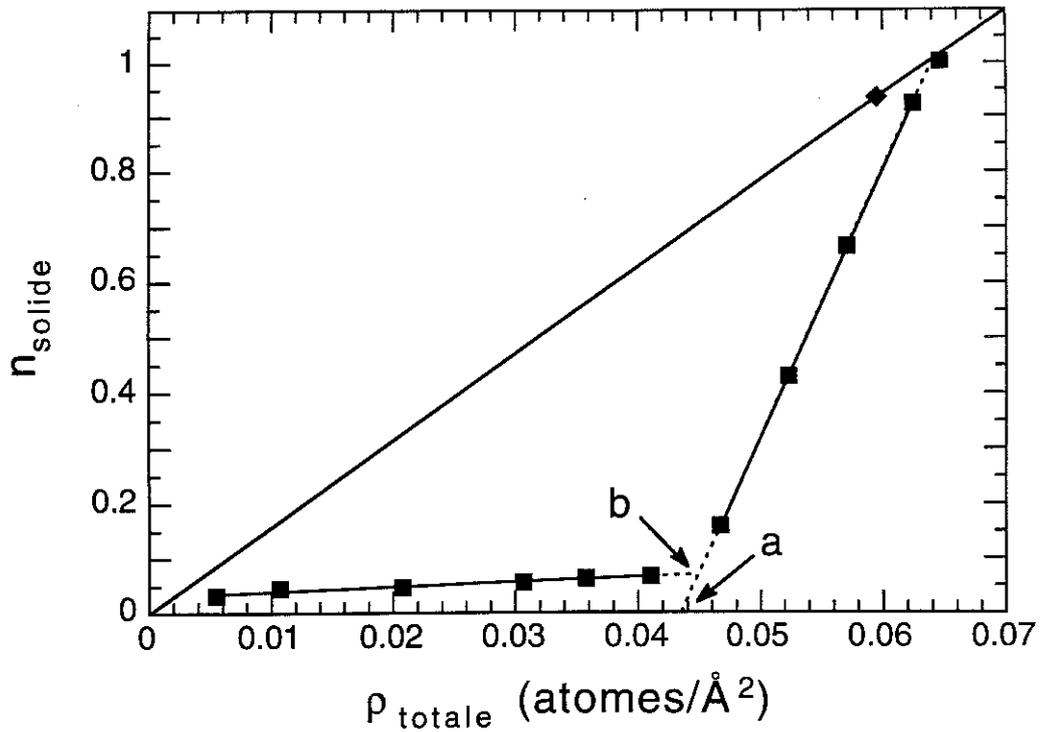


Figure 6.5: Dépendance de la quantité de solide  $n_{solide}$  de la densité; le trait diagonal correspond à un film complètement solidifié ( $n_{solide} = \rho/\rho_0$ ); les traits pleins sont des ajustement linéaires des données; les traits pointillés sont des extrapolations de ces ajustements; les points a et b marquent le début de la région de coexistence liquide de Fermi—phase commensurable pour un échantillon de graphite parfait et pour le Grafoil; le losange correspondrait à un solide contenant 6 % de lacunes suivant l'hypothèse de Greywall [6] (voir paragraphe 6.6).

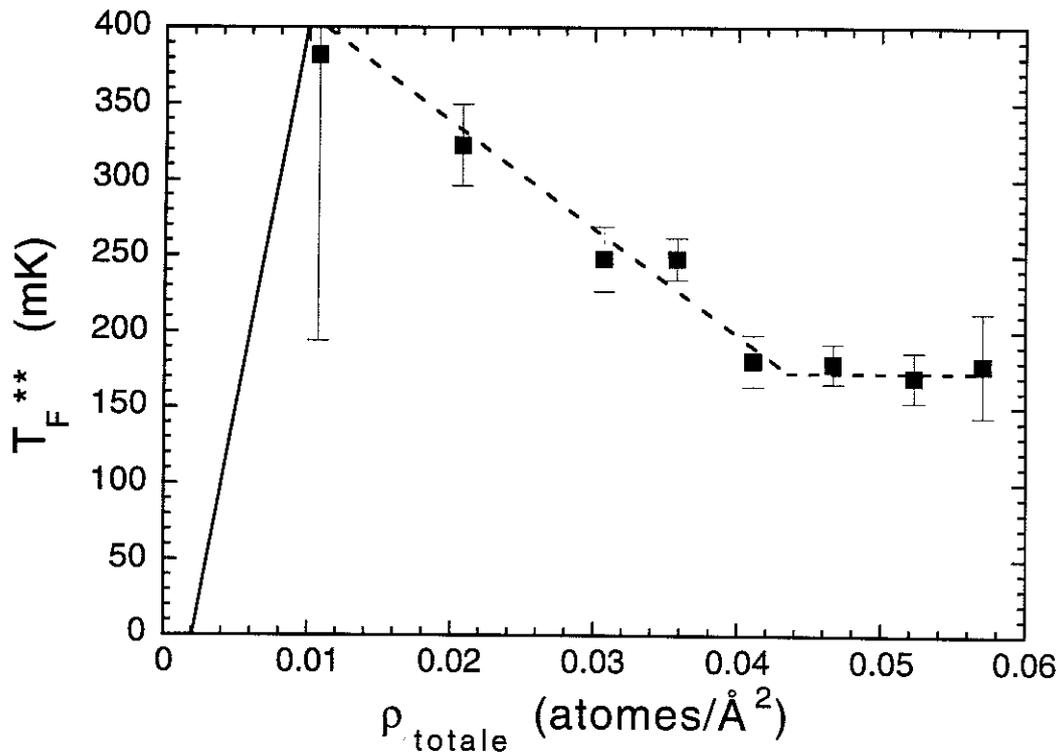


Figure 6.6: Dépendance de la température de Fermi  $T_F^{**}$  de la densité; le trait plein correspond à un gaz de Fermi; le décalage de 2% est nécessaire afin de tenir compte des hétérogénéités.

où  $N$  est le nombre des atomes,  $A$  est la surface et  $m_3$  est la masse d'un atome d' $^3\text{He}$ . Avec les valeurs des constantes physiques on obtient

$$T_F[K] = 50.53 \rho [\text{atomes}/\text{\AA}^2] \quad (6.4)$$

Cette fonction est représentée par le trait plein dans la figure 6.6 après l'avoir décalée en densité de 2 % d'une monocouche afin de tenir compte de la localisation des atomes par des hétérogénéités du potentiel d'adsorption. Pour la densité la plus faible on n'a pas pu déterminer la température de Fermi avec précision; des valeurs entre 50 et 400 mK sont consistantes avec les données. Pour les deux densités les plus petites les valeurs expérimentales sont en assez bon accord avec la fonction théorique. Pour des densités plus élevées la température de Fermi descend d'une manière significative et atteint un plateau pour des densités correspondant à la région de coexistence. Les propriétés du liquide de Fermi seront discutés plus en détail dans la section 6.4.

### 6.3 Les sites de forte adsorption

Aux plus basses densités on observe un signal de RMN qui suit une loi de Curie jusqu'à basses températures et qui est attribué à des atomes d' $^3\text{He}$  localisés par des hétérogénéités du potentiel d'adsorption. Des mesures de la chaleur spécifique à hautes températures [2] ont déjà montré l'existence des atomes d' $^4\text{He}$  localisés sur le Grafoil à basses densités. Une analyse thermodynamique des isothermes d'adsorption [43] avec ces données de chaleur spécifique a conduit à un modèle théorique [43] conduisant à la conclusion que le solide à basses densités consiste de régions d'atomes à hautes densités locales. Cette analyse a été étendue à l' $^3\text{He}$  adsorbé sur le Grafoil [44]. Le modèle contient essentiellement l'idée que les hétérogénéités du potentiel d'adsorption sont exclusivement dues aux endroits où les bords des plaques de Grafoil se joignent, en négligeant tous les autres effets. Ce modèle est décrit par l'expression

$$-\mu(N, 0) = E_b \left[ 1 + \left( 1 + \frac{N/N_c}{N_0/N_c} \right)^{-3} \right] \quad (6.5)$$

où  $E_B$  est l'énergie de liaison d'un atome d' $^3\text{He}$  sur un substrat de graphite homogène,  $N_c$  est le nombre d'atomes dans la phase commensurable,  $N_0$  est le nombre de sites de forte adsorption et  $N$  est le nombre d'atomes adsorbés. Le potentiel chimique en fonction du taux de couverture obtenu par cette expression ainsi que les données expérimentales sont montrés dans la figure 6.7; les paramètres d'ajustement sont:  $E_b = 136$  K et  $N_0 / N_c = 0.036$  [44, 45]. Pour les très basses densités il y a une distribution des énergies de liaison à cause des hétérogénéités dont la densité caractéristique est de  $0.0023$  atomes/ $\text{\AA}^2$ .

Des mesures de RMN pulsée à 1.2 K ont vérifié ces résultats [46] en montrant que 0.5 % d'une monocouche sont fortement localisés et 1.5 % de plus sont immobiles. A basses densités il y a donc 2 % de solide, en bon accord avec la densité caractéristique de  $0.0023$  atomes/ $\text{\AA}^2$ . Des mesures de RMN en continu à plus basses températures ont montré une densité caractéristique de  $0.0022$  atomes/ $\text{\AA}^2$  [41].

L'effet d'hétérogénéité est donc bien connu et nos mesures confirment les résultats antérieurs. En outre, nos mesures montrent clairement que le nombre d'atomes localisés par les sites de forte adsorption augmente légèrement avec la densité (figure 6.5). Aux plus

basses densités on trouve  $n_{solide} = 0.0324$  ce qui correspond à une "densité" des atomes localisés de  $0.00206$  atomes/Å<sup>2</sup>. Cette valeur augmente linéairement jusqu'à la densité avant le début de la région de coexistence où elle est plus que deux fois la valeur à basses densités:  $n_{solide} = 0.0668$  ( $0.00425$  atomes/Å<sup>2</sup>). En fait ce comportement est exactement ce qu'on attend du modèle de distribution des énergies de liaison cité plus haut.

Finalement on remarque qu'il faut corriger les densités mesurées pour l'effet d'hétérogénéité afin d'obtenir, par exemple les vraies densités du liquide. Si l'on suppose que le solide "hétérogène" a la densité de la monocouche comprimée, d'environ  $0.11$  atomes/Å<sup>2</sup>, on en déduit que la densité totale de  $0.0207$  atomes/Å<sup>2</sup> correspond à une densité du liquide de  $0.0183$  atomes/Å<sup>2</sup> seulement, ce qui représente une différence importante de 13 % en densité. Toutes les densités données dans la prochaine section sont des vraies densités du liquide.

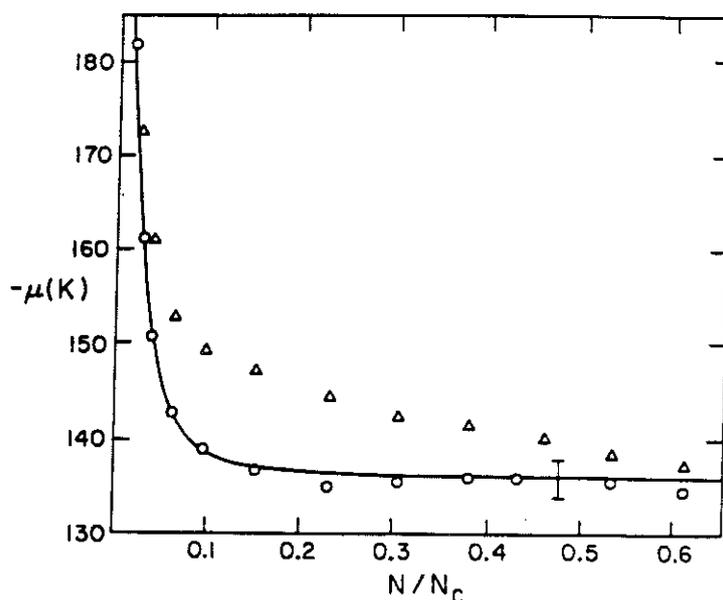


Figure 6.7: Potentiel chimique en fonction du taux de couverture  $N/N_c$  où  $N_c$  est le taux de couverture de la phase commensurable [44]; les triangles correspondent au potentiel chimique à 4.169 K; les cercles sont des valeurs corrigées à 0 K; le modèle est décrit dans les références [43, 44].

## 6.4 Le liquide de Fermi de la première couche

### 6.4.1 Introduction

Les liquides de Fermi présentent un grand intérêt aussi bien sur le plan théorique que sur le plan expérimental.  $L^3\text{He}$  adsorbé sur le Grafoil est un système modèle représentant un liquide de Fermi en deux dimensions. Ce système est particulièrement intéressant, parce qu'il existe dans une gamme de densités beaucoup plus importante que le liquide d' $^3\text{He}$  massif. Par conséquent on peut étudier en détail la transition d'un gaz de Fermi jusqu'à

<sup>2</sup>Il faut noter que cette "densité" ainsi que les densités caractéristiques citées plus haut ne sont pas des densités microscopiques, puisque les atomes ne sont pas uniformément distribués sur le substrat.

un liquide de Fermi avec des interactions fortes. Dans le cas d' $^3\text{He}$  adsorbé on observe des masses effectives entre 1 et 6 et des renforcements de susceptibilité entre 1 et 25, alors que dans le cas d' $^3\text{He}$  massif les masses effectives sont entre 2.8 et 6 et les renforcements de susceptibilité entre 9 et 25. Le domaine de faible interaction n'est donc pas accessible à l'expérience dans le cas du 3D.

Par la suite des résultats des mesures du liquide de Fermi de la première couche d' $^3\text{He}$  adsorbé sur le Grafoil seront montrés. L'analyse nécessite les valeurs de la masse effective qui ont été mesurées sur un autre échantillon [5]. Une comparaison avec des résultats précédents du liquide de Fermi de la deuxième couche d' $^3\text{He}$  sur une monocouche d' $^4\text{He}$  adsorbés sur le Grafoil [47] sera faite. Finalement des modèles théoriques seront présentés et comparés avec les résultats expérimentaux.

### 6.4.2 Résultats expérimentaux

La susceptibilité totale est montrée dans la figure 6.8 pour une densité de  $0.0523 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$ ; une densité où la quantité du solide et celle du liquide sont à peu près égales. La susceptibilité du liquide seul (après avoir soustrait la contribution du solide) est montrée également dans cette figure. La température de Fermi effective  $T_F^{**}$  a été déterminée en ajustant les données expérimentales à l'expression

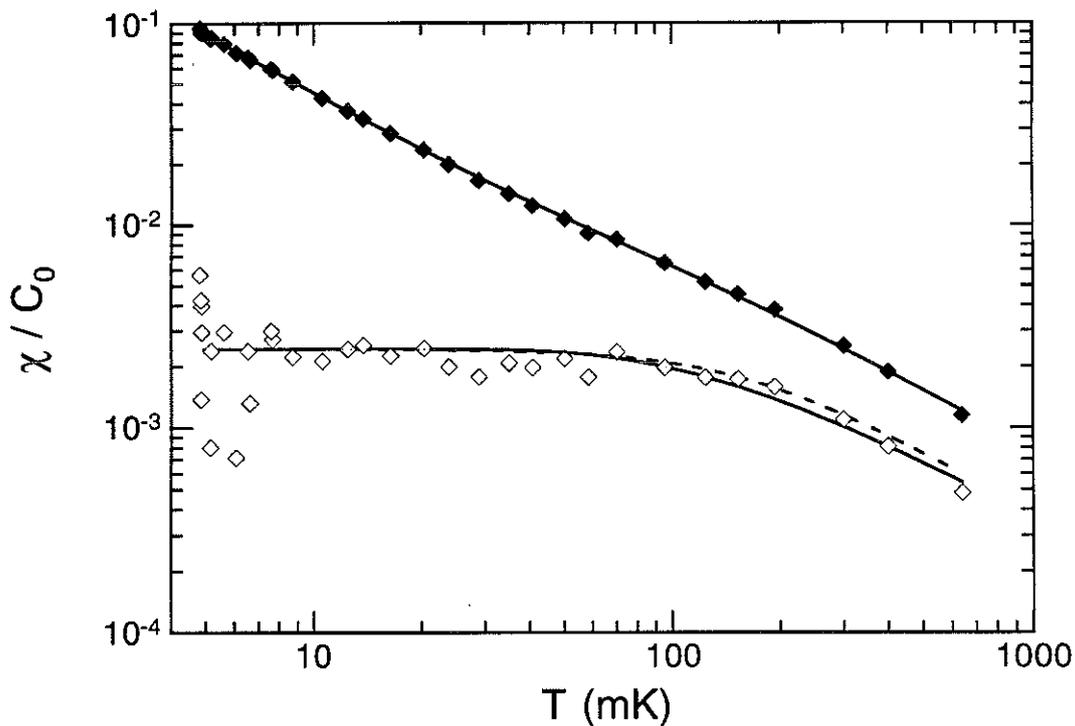


Figure 6.8: Susceptibilité normalisée  $\chi/C_0$  en fonction de la température à  $0.0523 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$ ;  $C_0$  est la constante de Curie à la phase commensurable; losanges pleins: susceptibilité totale; losanges ouverts: susceptibilité du liquide de Fermi; les ajustements sont expliqués dans le texte.

$$\frac{\chi}{C_0} = \frac{1}{T_F^{**}} (1 - e^{-T_F^{**}/T}) \quad (6.6)$$

représentée par le trait plein dans la figure 6.8. Une autre expression phénoménologique a été proposée par A.M. Dyugaev [48]

$$\frac{\chi}{C_0} = \frac{1}{\sqrt{T^2 + T_F^{**2}}} \quad (6.7)$$

qui est représentée par le trait pointillé. Les différences des températures de Fermi déterminées par ces deux ajustements sont dans les barres d'erreurs pour tous les taux de couverture.

Une quantité physique importante concernant les liquides de Fermi est le facteur de renforcement de susceptibilité qui est défini comme la susceptibilité d'un liquide de Fermi avec interactions à température nulle  $\chi(0)$  divisé par la susceptibilité d'un gaz de Fermi idéal à température nulle  $\chi_0(0)$ . Il est donné par l'expression

$$\frac{\chi(0)}{\chi_0(0)} = \frac{T_F}{T_F^{**}} \quad (6.8)$$

La figure 6.9 montre le facteur de renforcement en fonction de la densité. On voit que  $\chi(0)/\chi_0(0)$  monte jusqu'à une valeur de 10 à une densité de 0.0383 atomes/Å<sup>2</sup>. Cette densité est juste au-dessous du début de la région de coexistence et représente donc la valeur de la densité maximale accessible pour le liquide dans les films en sous-monocouche. Nos résultats sont comparés avec les données obtenues par des mesures de RMN d'un film

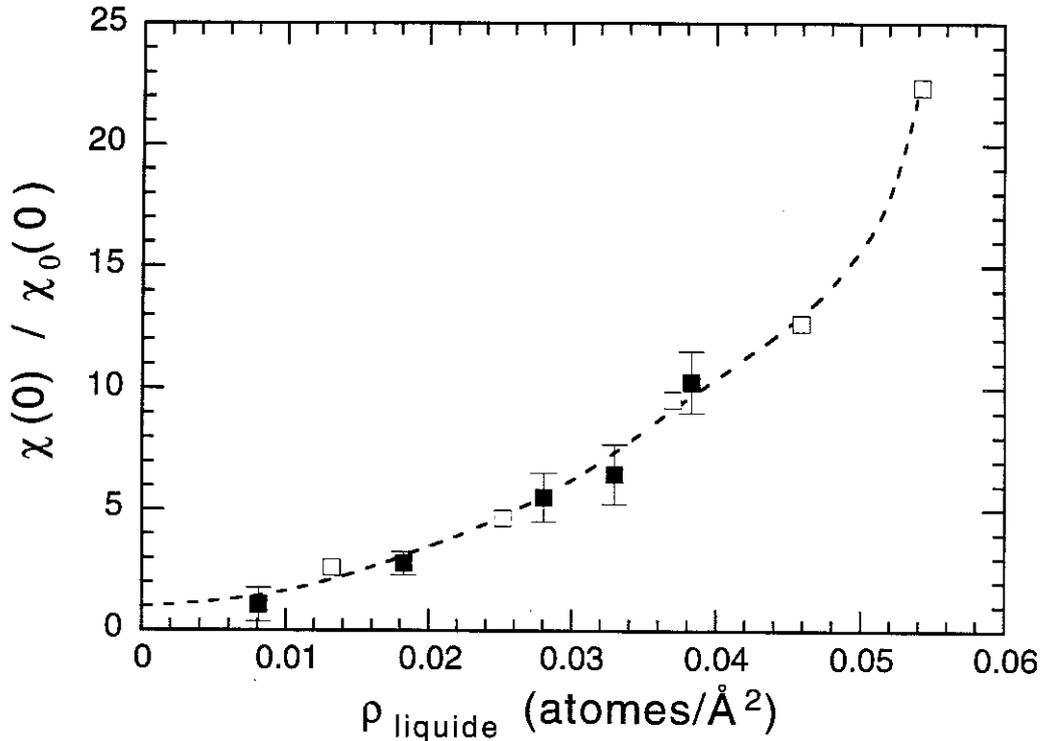


Figure 6.9: Facteur de renforcement de la susceptibilité en fonction de la densité; carrés pleins: nos résultats; carrés vides: résultats de la référence [47] (<sup>3</sup>He / <sup>4</sup>He / Grafoil).

d<sup>3</sup>He sur une monocouche d<sup>4</sup>He [47]. Dans ce dernier système le potentiel d'adsorption des atomes d<sup>3</sup>He est beaucoup plus petit (de l'ordre de quelques dizaines de Kelvins) par rapport aux atomes adsorbés sur le graphite (136 K), puisqu'ils sont adsorbés en deuxième couche. En outre la corrugation de potentiel d'adsorption qui est importante pour les atomes dans la première couche est très réduite pour la deuxième couche. Il est donc remarquable que les valeurs des facteurs de renforcement soient très semblables pour ces deux cas (figure 6.9). Apparemment ni l'influence de la délocalisation en direction z ni l'effet de corrugation ne sont très importants pour les propriétés du liquide de Fermi. Finalement on note que la gamme de densités accessible aux systèmes pré-enduits d<sup>4</sup>He est plus large, puisque l'existence du solide commensurable qui est un solide avec une densité anormement basse empêche la formation d'un liquide de Fermi plus dense dans la première couche.

Une deuxième quantité physique concernant les liquides de Fermi et accessible aux mesures est la masse effective, qui est définie comme le rapport de la masse d'un atome dans le liquide avec des interactions  $m^*$  et la masse d'un atome d<sup>3</sup>He dans le vide  $m$ . La chaleur spécifique d'un gaz de Fermi idéal pour des températures inférieures à la température de Fermi est donnée par l'expression

$$c = \frac{\pi^2}{3} N k_B \frac{T}{T_F} = \frac{\pi k_B^2 A m}{3 \hbar^2} T \quad (6.9)$$

où  $N$  est le nombre des atomes d<sup>3</sup>He et  $A$  est la surface; l'équation 6.3 a été utilisée pour éliminer la température de Fermi. En deux dimensions la chaleur spécifique est linéaire en température (pour  $T \ll T_F$ ) et ne dépend pas de la densité. Pour le cas des liquides avec des interactions, la pente augmente de valeur par rapport à celle du gaz. Cette augmentation peut être attribuée à une augmentation de la masse effective  $m^*$ . La masse effective est donc déterminée par une mesure de la pente de la relation  $c(T)$  à basses températures par rapport à la pente du gaz de Fermi calculée. Une mesure de la masse effective en fonction de la densité pour des liquides en sous-monocouche a été fait par McLean [49] et plus récemment par Greywall [50] en très bon accord avec les résultats antérieurs. Par contre, il n'est pas tenu compte dans ces mesures de l'influence des hétérogénéités sur la vraie densité du liquide comme discuté plus haut. Par conséquent, on a corrigé ici les densités nominales pour cet effet en laissant inchangées les valeurs de la masse effective; ceci est montré dans la figure 6.10. On voit de nouveau que les densités corrigées sont plus basses d'une manière significative que les densités nominales.

Les résultats expérimentaux montrent que des liquides de Fermi en deux dimensions, constitués d<sup>3</sup>He adsorbé sur le Grafoil, peuvent être explorés dans une large gamme de densités: le facteur de renforcement est compris entre 1 et 10 (première couche) et la masse effective est comprise entre 1 et 3.5.

### 6.4.3 Comparaison avec des théories du liquide de Fermi

Landau a développé une théorie phénoménologique [51, 52] concernant les liquides de Fermi en introduisant l'idée des quasiparticules. Le liquide avec des fortes interactions est considéré comme un système de quasiparticules avec la même fonction de distribution que le système sans interactions. Ces quasiparticules sont caractérisées par une masse effective et une interaction effective qui peuvent être paramétrisées par des champs moléculaires [53] qui ont une partie symétrique en spin et une partie antisymétrique en spin et sont décrits

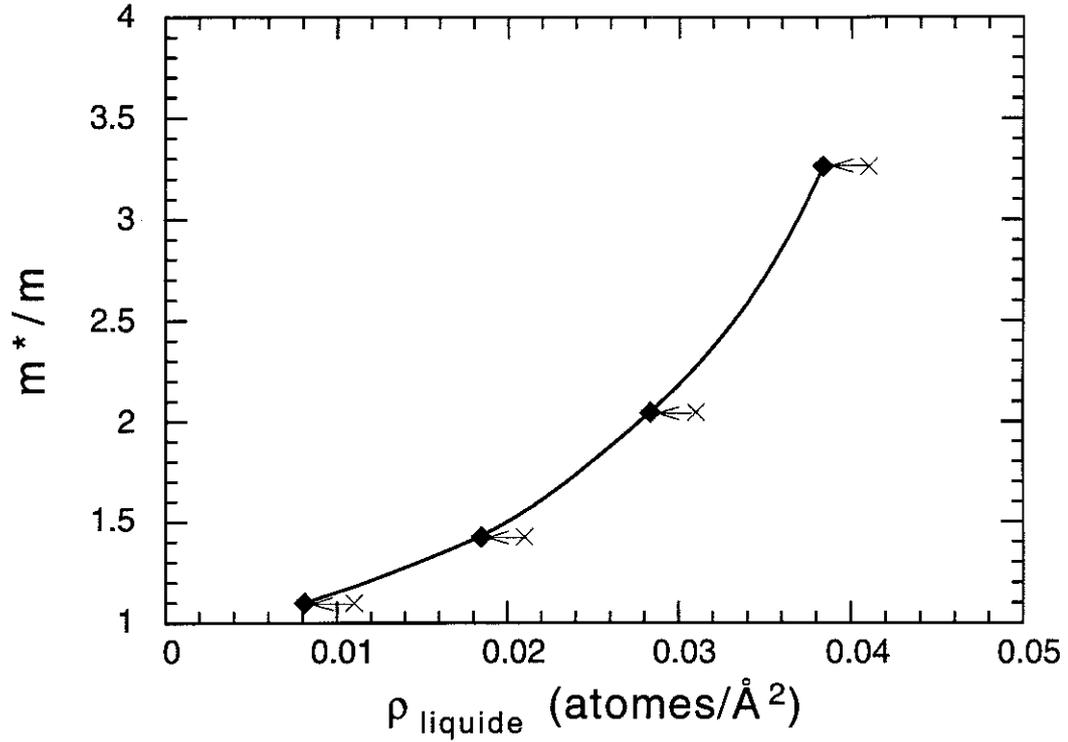


Figure 6.10: Masse effective de la référence [50] corrigée pour l'effet d'hétérogénéité; croix: densités non-corrigées; losanges: densités corrigées.

d'une manière quantitative par les paramètres de Landau. Les paramètres de Landau  $F_l^s$  ( $l = 0 \dots \infty$ ) sont liés à la partie symétrique en spin, alors que les paramètres de Landau  $F_l^a$  ( $l = 0 \dots \infty$ ) sont liés à la partie antisymétrique en spin. Habituellement on ne garde que les paramètres  $F_0^s$ ,  $F_1^s$  et  $F_0^a$  qui déterminent le comportement des quantités mesurables.

En utilisant un argument de symétrie [51, 54] on trouve une relation entre la masse effective et  $F_1^s$

$$\frac{m^*}{m} = 1 + \frac{1}{2} F_1^s \quad (6.10)$$

En deux dimensions le préfacteur de  $F_1^s$  est  $1/2$  [55], alors qu'en trois dimensions il est  $1/3$ . En outre on trouve une relation entre le facteur de renforcement de susceptibilité, la masse effective et  $F_0^a$

$$1 + F_0^a = \frac{m^*/m}{\chi(0)/\chi_0(0)} \quad (6.11)$$

Finalement il existe une relation entre la compressibilité, la masse effective et  $F_0^s$

$$1 + F_0^s = \frac{m^*/m}{\kappa/\kappa_0} \quad (6.12)$$

La théorie de Landau ne fait aucune prédiction sur la valeur des paramètres de Landau; ils doivent être déterminés par l'expérience. Si l'on veut calculer ces paramètres il faut avoir une théorie microscopique et une forme explicite de l'interaction entre les particules. Une revue récente des théories microscopique est donnée dans la référence [56]. On discute ici plus en détail deux modèles, puisqu'ils ont obtenu des résultats qui peuvent être comparés aux résultats expérimentaux.

Le premier modèle est basé sur le modèle de Stoner où la répulsion de sphères dures à courtes distances est simulée par une fonction delta

$$U(\vec{r} - \vec{r}') = U \delta(\vec{r} - \vec{r}') \quad (6.13)$$

Ce potentiel néglige complètement la partie attractive de van der Waals de l'interaction entre atomes d' $^3\text{He}$ . Dans l'Hamiltonien complet l'interaction 6.13 est intégrée sur tout l'espace et un terme décrivant l'énergie cinétique est inclus. Il faut noter que les atomes d' $^3\text{He}$  sont traités dans un "continuum".

A partir de cet Hamiltonien un calcul de RPA a été fait [57, 58, 59] menant au modèle des paramagnons, d'après lequel le renforcement de la susceptibilité est dû aux fluctuations de spin à basse fréquence. Dans ce cas, le système avec des interactions fortes est regardé comme presque ferromagnétique. Le facteur de renforcement est donnée par l'équation

$$\frac{\chi}{\chi_0} = (1 - \bar{I})^{-1} \quad (6.14)$$

où  $\bar{I}$  est le potentiel d'interaction normalisé ( $\bar{I} = U N_F$ ;  $N_F$ : densité d'états à la surface de Fermi). Pour  $\bar{I} \rightarrow 1$  la susceptibilité diverge, ce qui explique le terme "presque ferromagnétique". En outre, la masse effective renormalisée est donnée pour le cas de deux dimensions par l'expression [60]

$$\frac{m^*}{m} = 1 + \frac{9}{2} \bar{I} \ln \left( 1 + \frac{\bar{p}_1^2 \bar{I}}{12(1 - \bar{I})} \right) \quad (6.15)$$

où  $\bar{p}_1 = p_1/p_F$  est une coupure en moment qui est de l'ordre 1 [60]. Si l'on combine ces deux équations afin d'éliminer  $\bar{I}$  en prenant  $\bar{p}_1 = 1$  on obtient l'expression

$$\frac{m^*}{m} = 1 + \frac{9}{2} \left( 1 - \frac{\chi_0}{\chi} \right) \ln \left( 1 + \frac{1 - \chi_0/\chi}{12 \chi_0/\chi} \right) \quad (6.16)$$

Cette expression ne contient que des quantités accessibles aux mesures et peut donc directement être comparée aux résultats expérimentaux. D'autre part il faut remarquer que pour la dérivation de la dernière équation il a fallu plusieurs approximations. En particulier, ce modèle n'est applicable que pour un système en forte interaction, puisque seulement les termes les plus divergents en  $(1 - \bar{I})^{-1}$  ont été considérés dans les calculs [61]. Le modèle n'a pas été développé pour la transition entre un système avec des interactions faibles à un système avec des interactions fortes. On ne sait pas actuellement si les corrections pour des interactions faibles sont importantes [61].

Le deuxième modèle a comme base un Hamiltonien similaire à celui du modèle des paramagnons, avec la différence importante qu'un réseau artificiel est introduit; les atomes d' $^3\text{He}$  sont placés sur des sites de ce réseau. Le potentiel d'interaction 6.13 est remplacé par la condition qu'il n'y ait d'interaction que sur le même site. Ce modèle, qui est connu sous le nom de modèle de gaz de réseau ou modèle de Hubbard [62], a été introduit pour décrire les propriétés d'un système électronique où l'idée d'un réseau est naturelle. Pour l' $^3\text{He}$  liquide le réseau semble être artificiel; il sert pourtant à simuler la taille finie des atomes d' $^3\text{He}$  [56].

Ce modèle a été traité par une approche variationnelle [63] et étendu au cas d'une bande à demi-remplie [64], où une transition dans un état localisé est obtenue pour une

interaction finie  $U_c$ . Un lien explicite avec les théories des liquides de Fermi a été fait dans les références [65, 66], conduisant à la conclusion que l' $^3\text{He}$  liquide devrait être regardé comme "presque localisé" plutôt que "presque ferromagnétique". Un développement de ce résultat se trouve dans l'article de revue de la référence [67]. Dans ce modèle la masse effective est donnée par l'expression [67]

$$m^*/m = (1 - I^2)^{-1} \quad (6.17)$$

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

$$F_0^a = -p \left( 1 - (1 + I)^{-2} \right) \quad (6.18)$$

où  $p$  est une quantité qui dépend surtout de la densité d'états et qui est de l'ordre de 1 pour une bande symétrique [67]. Si l'on combine ces deux équations afin d'éliminer  $I$  en prenant  $p = 1$  on obtient l'expression

$$1 + F_0^a = \frac{1}{(1 + \sqrt{1 - m/m^*})^2} \quad (6.19)$$

dont les variables sont accessibles aux mesures. En fait, plusieurs approximations ont été faites pour obtenir ce résultat; le modèle n'est applicable que pour un système en forte interaction. En outre cette théorie n'est valable que pour un grand nombre de premiers voisins [67], ce qui est encore moins le cas en deux dimensions qu'en trois dimensions.

En conclusion, les deux théories discutées sont a priori valables pour des systèmes en forte interaction (environ  $m^*/m > 3$ ), alors que la gamme accessible à l'expérience correspond à  $m^*/m < 5$  environ.

La comparaison des résultats expérimentaux aux théories est détaillée ci-dessous. La masse effective en fonction du renforcement de susceptibilité est montrée dans la figure 6.11. La gamme des paramètres où les deux théories sont différentes commence exactement à un endroit qui n'est plus accessible aux expériences. C'est-à-dire qu'on ne peut pas décider par ce type de mesure si l'augmentation du facteur de renforcement de susceptibilité pour des systèmes en forte interaction est dû à une divergence de la susceptibilité (paramagnons) où à une augmentation proportionnelle de la masse effective (fermions presque localisés). On voit que les deux théories sont en bon accord avec les données en deux dimensions ainsi qu'avec les données en trois dimensions. Il faut remarquer que pour l'analyse faite dans la référence [47] sur le système  $^3\text{He} / ^4\text{He} / \text{Grafoil}$  les auteurs ont utilisé des valeurs de la masse effective de la référence [5]. Or les mesures de la chaleur spécifique ont été faites sur le système pur  $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Grafoil}$  [5], c'est-à-dire un système différent. En outre, la compression en densité de la première couche, mesurée par la diffusion des neutrons [7], est négligée dans la référence [5]. Cet effet devrait décaler les valeurs de la masse effective vers des densités plus faibles, sauf pour des densités proches de la promotion en deuxième couche.

Les mêmes données sont représentées d'une manière différente dans la figure 6.12: le graphe montre le paramètre de Landau  $1 + F_0^a$  en fonction de l'inverse de la masse effective, ce qui permet de mieux visualiser les écarts. On voit que les données du liquide en deuxième couche ont tendance à rester systématiquement au-dessous de nos données. Elles semblent mieux suivre l'expression fournie par la théorie des fermions presque localisés, alors que nos données semblent plutôt suivre l'expression des paramagnons. En

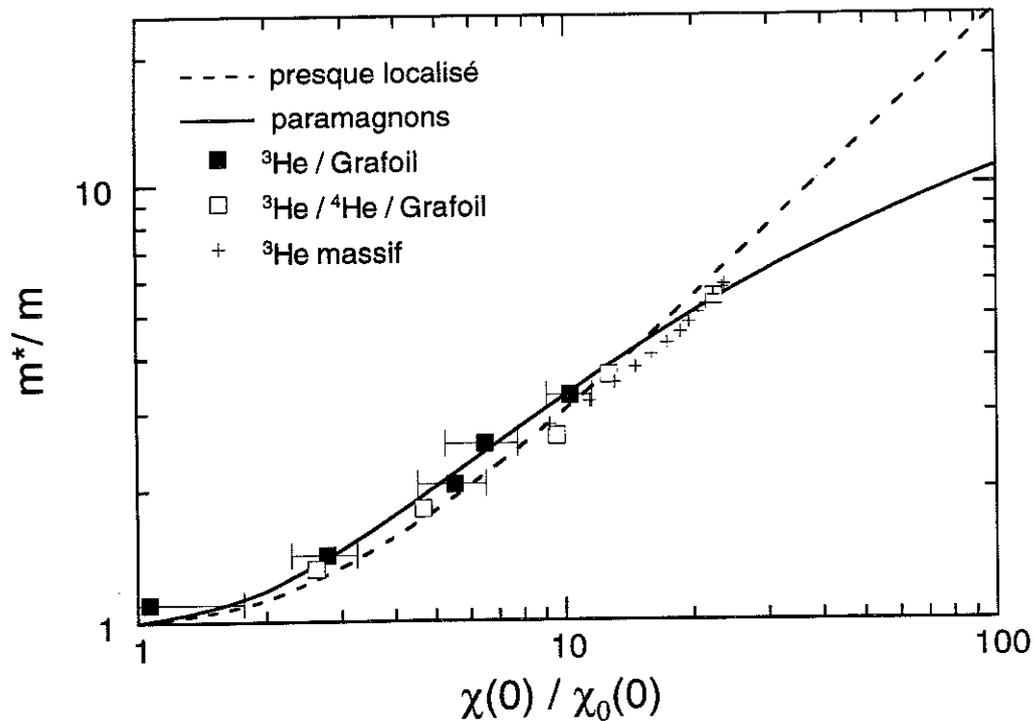


Figure 6.11: Masse effective en fonction du renforcement de susceptibilité; carrés pleins: nos mesures; carrés vides: système  $^3\text{He}/^4\text{He}$  / Grafoil de la référence [47]; croix:  $^3\text{He}$  massif des références [68, 69] (tableau dans la référence [56], p.31); le trait plein correspond au modèle des paramagnons, le trait hâché au modèle des fermions presque localisés.

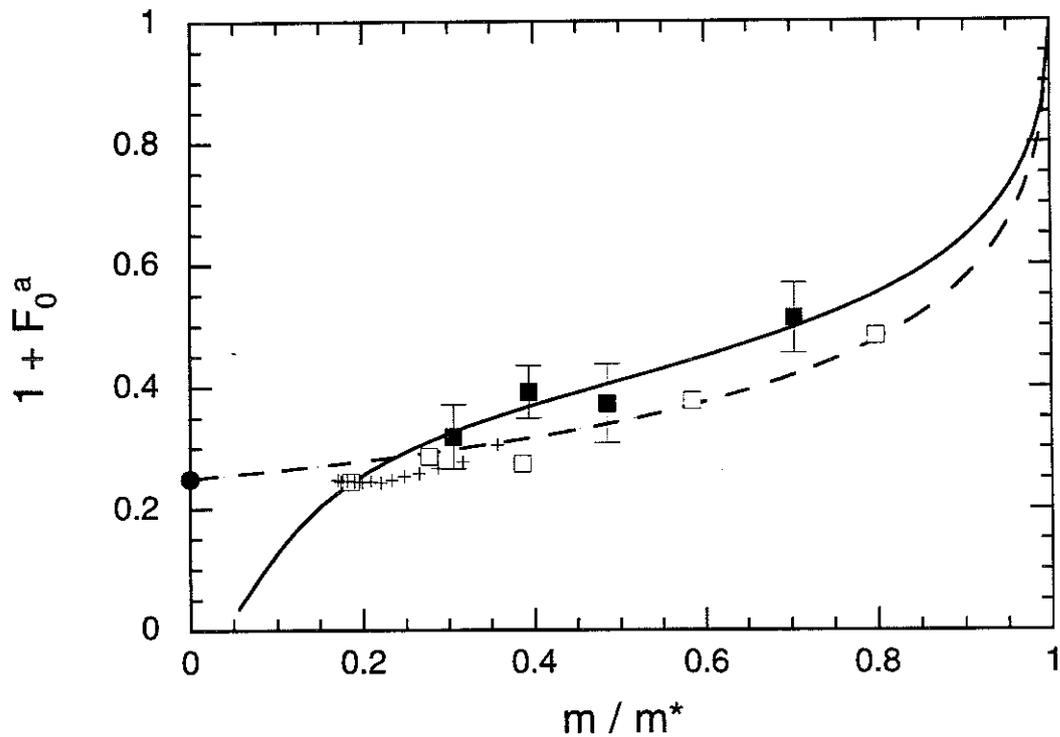


Figure 6.12:  $1 + F_0^a$  en fonction de l'inverse de la masse effective; carrés pleins: nos mesures; carrés vides: système  $^3\text{He}/^4\text{He}$  / Grafoil de la référence [47]; croix:  $^3\text{He}$  massif des références [68, 69] (tableau dans la référence [56], p.31); le trait plein correspond au modèle des paramagnons, le trait hâché au modèle des fermions presque localisés; cercle: modèle de verre de spins [70].

fait, vu les approximations nécessaires afin d'obtenir les expressions théoriques et les barres d'erreurs présentes dans les résultats expérimentaux, on ne peut pas arriver à une conclusion certaine. On note également que la courbure des données expérimentales pour  ${}^{13}\text{He}$  massif est différente des courbures des expressions théoriques.

On remarque que notre résultat pour la valeur de  $1+F_0^a$  est consistante avec la valeur de 0.25 qui a été obtenue par Castaing [70] avec un modèle phénoménologique de verre de spins valable dans la limite de forte interaction. D'autre part, des calculs récents [71] montrent la possibilité d'une dimérisation des atomes d' ${}^{13}\text{He}$  et de la disparition de la surface de Fermi. Ainsi, on assiste actuellement à une véritable mise en cause de l'interprétation concernant la nature de  ${}^{13}\text{He}$  liquide. Il serait souhaitable de disposer de calculs théoriques des propriétés thermodynamiques des systèmes étudiés ici, et en particulier une évaluation des écarts attendus par rapport à la description habituelle.

Pendant toute la discussion on a supposé implicitement que la phase liquide est homogène, ce qui est en accord avec la théorie de Miller et Nosanow [72]. Des calculs de Monte Carlo récents suggèrent que cette phase est instable par rapport à la formation d'un liquide condensé en "gouttes" à basses températures [71], mais les résultats expérimentaux sont plutôt favorables à l'hypothèse d'un "gaz" homogène dans la première couche. L'hypothèse de la formation des gouttes de liquide, cependant, pourrait être favorisée par l'expérience pour le liquide en troisième couche [74] (voir Annexe D).

## 6.5 Le début de la région de coexistence

Le début de la région de coexistence sur un échantillon de graphite sans effet d'hétérogénéité peut être estimé par une extrapolation de la droite dans la région de coexistence à  $n_{\text{solide}} = 0$  ce qui correspond au point a dans la figure 6.5, à 0.0434 atomes/Å<sup>2</sup>. L'effet d'hétérogénéité est de réduire la vraie densité du liquide par rapport à la densité mesurée. Par conséquent le début de la région de coexistence sur un échantillon de Grafoil est observé à une densité plus élevée, donnée par la densité au point d'intersection des extrapolations des ajustement linéaires à basses et à hautes densités (point b dans la figure 6.5 à 0.0449 atomes/Å<sup>2</sup>). A cette densité la vraie densité du liquide de Fermi est de 0.0421 atomes/Å<sup>2</sup>; c'est-à-dire, les potentiels chimiques du liquide de Fermi d'une densité de 0.0421 atomes/Å<sup>2</sup> et de la phase commensurable sont égaux. Par conséquent, sur une plaquette de graphite sans défauts le début de la région de coexistence serait à 0.0421 atomes/Å<sup>2</sup>.

Dans des mesures de la chaleur spécifique à très basses températures une valeur de 0.043 atomes/Å<sup>2</sup> a été trouvée pour le début de la région de coexistence [6]. On pourrait considérer que la différence de 4 % entre ces deux valeurs est dans les barres d'erreurs combinées de l'échelle de taux de couverture; en fait elle peut être attribuée à une autre cause (voir section 6.6.).

Une contradiction plus importante est trouvée si l'on compare notre résultat à des mesures de RMN précédentes [41], où une valeur de 0.032 atomes/Å<sup>2</sup>, très inférieure à la valeur déterminée par nos mesures, a été observée. La densité de la phase commensurable complète est trouvée dans toutes les expériences à la même densité (environ 0.06366 atomes/Å<sup>2</sup>). Par conséquent, la différence ne peut pas être attribuée à un décalage proportionnel de l'échelle de taux de couverture. Une explication a été proposée par Greywall [6], qui a observé au cours de mesures préliminaires une transition appa-

rente à  $0.035$  atomes/Å<sup>2</sup>, un effet dû à un recuit insuffisant (référence 12 dans [6]). Il est connu [2] qu'un recuit insuffisant peut donner lieu à une distribution non-homogène des atomes d'<sup>3</sup>He adsorbés, mais une recherche systématique n'a pas été faite. Les auteurs de la référence [41], cependant, assurent avoir adopté une procédure expérimentale de recuit correcte [75]. La cause de la différence entre notre valeur du début de la région de coexistence et celle de la référence [41] reste donc inconnue.

## 6.6 La solidification et le solide lacunaire

Greywall a observé [6] que la solidification complète pourrait avoir lieu à une densité inférieure à celle de la phase commensurable pure. D'après son interprétation, le système solidifie dans une phase contenant 6 % de lacunes, qui sont ensuite éliminées quand on approche de la densité de la phase commensurable pure.

Nos mesures sont en désaccord avec cette interprétation: on voit dans la figure 6.5 que l'extrapolation de l'ajustement linéaire des données dans la région de coexistence au point où le film est complètement solidifié (ligne diagonale de la figure 6.5) donne une valeur de la densité de  $0.0641$  atomes/Å<sup>2</sup>; une valeur très proche de celle de la phase commensurable ( $0.06366$  atomes/Å<sup>2</sup>). On en déduit que le système solidifie effectivement dans la phase commensurable pure. La densité où une solidification en un solide contenant 6 % de lacunes devrait avoir lieu est indiquée par le losange plein dans la figure 6.5.

En outre, on ne trouve pas de déviations de la loi de Curie (les températures de Curie-Weiss sont inférieures à  $0.2$  mK dans nos mesures à basses températures), alors qu'un échange important (de l'ordre de quelques milliKelvins), prédit par Guyer [42], devrait donner lieu à des effets magnétiques observables. L'hypothèse de l'existence d'un solide lacunaire au-dessous de la phase commensurable est donc infirmée par nos mesures.

En fait, ce résultat n'est pas inconsistant avec les mesures de Greywall, si l'on considère une deuxième interprétation des données de chaleur spécifique déjà proposée par Greywall [6]. Greywall a défini le taux de couverture correspondant à la phase commensurable pure comme celui où il y a un minimum de liquide. Puisqu'à  $200$  mK la chaleur spécifique est complètement dominée par le liquide, ceci correspond à un minimum dans l'isotherme à  $200$  mK. Cette isotherme de la chaleur spécifique de la référence [6] est montrée dans la figure 6.13; le minimum est observé au point c. L'échelle de taux de couverture de Greywall est en fait ajustée de quelques pourcents afin que le point c corresponde exactement à  $0.06366$  atomes/Å<sup>2</sup> (ceci sera discuté plus en détail dans le chapitre 7.5). Le changement de pente à  $0.0595$  atomes/Å<sup>2</sup> (point b) a été attribué à une solidification dans un solide lacunaire. Par contre, il est également possible que ce changement de pente soit une conséquence des atomes moins fortement adsorbés sur le Grafoil. Dans ce cas la phase commensurable pure se trouverait à une densité déterminée par une extrapolation de l'isotherme avant le point b jusqu'à zéro; ceci donne environ  $0.061$  atomes/Å<sup>2</sup>. Il faudrait décaler le taux de couverture de Greywall de  $0.06366/0.061$  c'est-à-dire de  $4.4$  % afin de faire correspondre la phase commensurable pure à  $0.06366$  atomes/Å<sup>2</sup>. Si l'on fait ceci, on trouve une densité de  $0.045$  atomes/Å<sup>2</sup> pour le début de la région de coexistence, ce qui est en parfait accord avec notre résultat. Le signal du liquide qu'on trouve maintenant au-dessus de la phase commensurable est attribué aux atomes qui sont situés aux sites de faible adsorption et qui sont donc plus difficilement localisables.

Le problème est donc la détermination correcte de l'échelle de couverture. Greywall

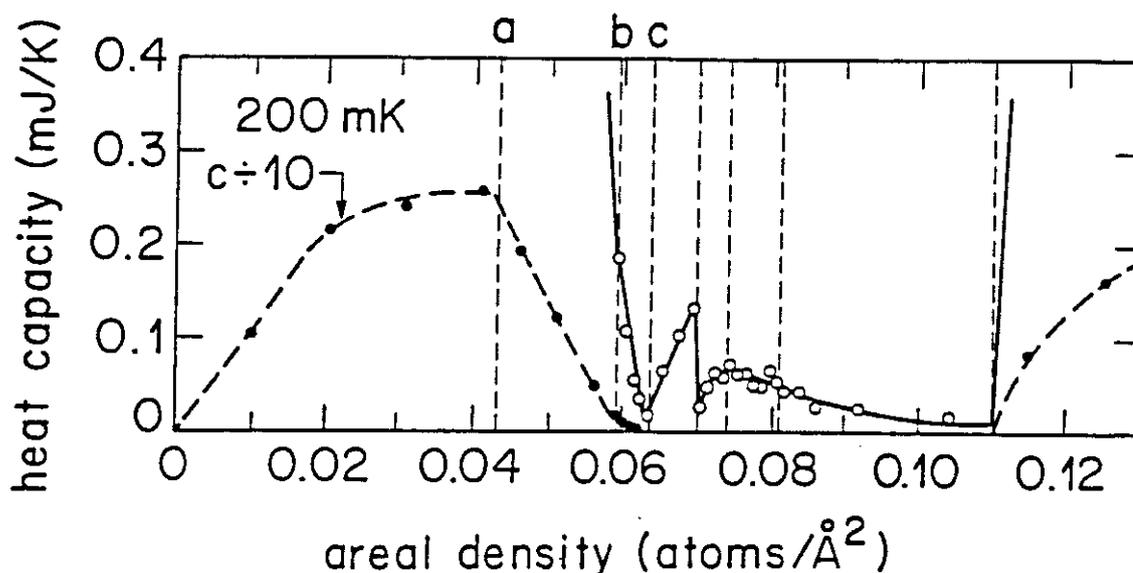


Figure 6.13: Isotherme à 200 mK de la chaleur spécifique de la référence [6].

propose deux échelles de couvertures différentes dont une est en parfait accord avec la nôtre. Notre échelle de couverture est basée sur celle de Bretz et al. [2] où le pic de fusion de la chaleur spécifique le plus grand (la température de fusion la plus élevée) correspond à la phase commensurable parfaite. Par conséquent, en prenant notre échelle de couverture on trouve que la solidification coïncide avec la température maximale de fusion. Il est difficile d'imaginer qu'un solide lacunaire fonde à une température plus élevée que la phase commensurable parfaite. Il semble donc raisonnable de penser que notre échelle de couverture représente la bonne échelle. Afin de résoudre ce problème définitivement il serait nécessaire de faire des mesures de la chaleur spécifique à hautes températures (fusion de la phase commensurable) ainsi qu'à basses températures (solidification du liquide de Fermi) et des mesures de RMN sur le même échantillon.

## 6.7 Largeur des raies RMN

La mesure des raies RMN fournit des informations supplémentaires sur la largeur inhomogène et donc sur le temps de relaxation transverse inhomogène  $T_2^*$  [33]. Elle est déterminée par un ajustement d'une fonction Lorentzienne aux points mesurés. Le paramètre d'ajustement donne la demie-largeur à mi-hauteur (HWHM).

La dépendance de la largeur des raies RMN de la densité est montrée dans la figure 6.14. A basses densités on voit uniquement le signal du solide, parce que le liquide est complètement dégénéré ( $T = 5$  mK); la figure 6.14 représente donc les largeurs du solide et non celles du liquide. La largeur importante aux basses densités totales correspond donc au signal des atomes localisés (forte densité locale), alors que le minimum en largeur correspond au signal des atomes dans la phase commensurable; la région intermédiaire est due à une superposition de raies correspondant à ces deux largeurs. La décroissance de la largeur en fonction de la densité totale indique que le solide fortement localisé a une densité de plus en plus faible. Lorsque la phase commensurable commence à se former ( $0.0449$  atomes/Å<sup>2</sup>), la largeur se réduit davantage, car le signal est dominé par celui de cette phase, atteignant une valeur indépendante de la densité totale. Par ailleurs, la

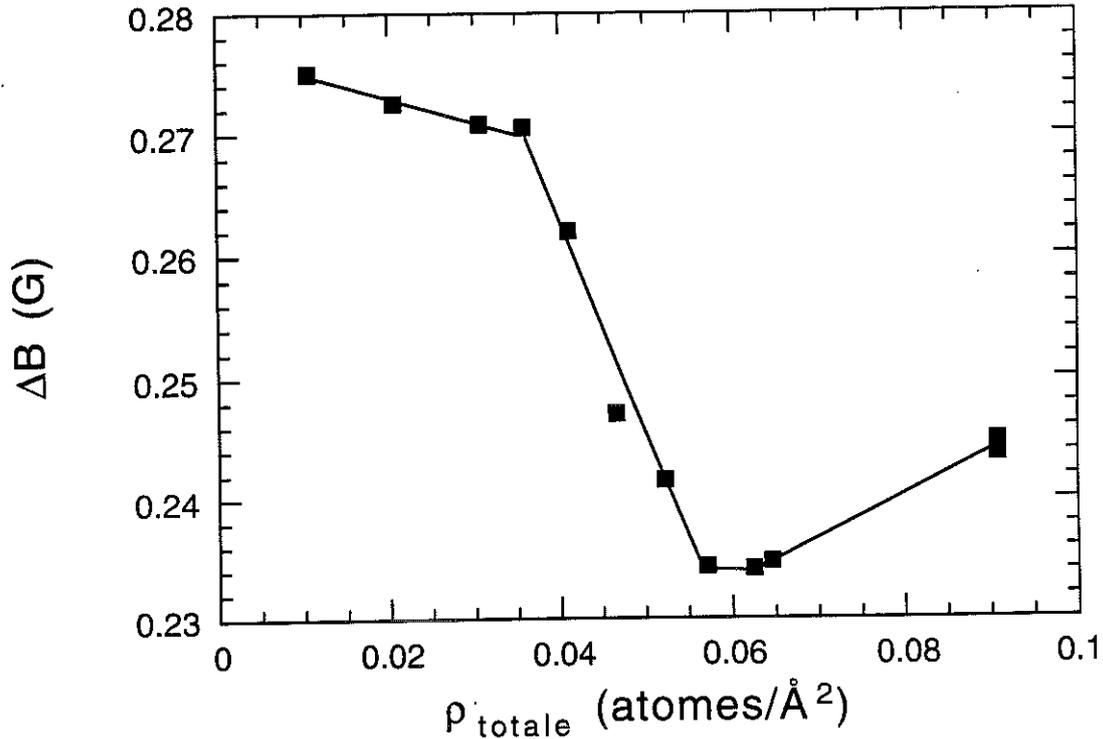


Figure 6.14: Largeurs des raies RMN en fonction de la densité; la largeur est définie comme HWHM;  $T = 5$  mK; l'inhomogénéité de la bobine contribue à cette largeur de  $\Delta B_0 = 0.21$  G.

largeur des raies augmente de nouveau quand on passe de la phase commensurable à la phase incommensurable; cet effet est dû à l'augmentation des interactions dipolaires avec l'augmentation de la densité (voir la référence [18]). Finalement on remarque que Satoh et Sugarawa ont trouvé un minimum en  $T_2$  à la phase commensurable par des mesures de RMN pulsées à 1 K [76], ce qui implique un maximum en  $\Delta B$ . Cette observation n'est pas incompatible avec nos mesures, puisqu'à 1 K le liquide de Fermi n'est plus dégénéré et il contribue donc à la largeur des raies.

La dépendance en température de la largeur des raies RMN est montrée dans la figure 6.15 pour une densité de  $0.0523$  atomes/Å<sup>2</sup>. On voit que la largeur diminue d'une région où la largeur est importante à une région caractérisée par une largeur plus faible avec un régime de transition à 40 mK environ. Pour expliquer cet effet, on note d'abord que la largeur du liquide est plus faible à cause du rétrécissement par le mouvement ("motional narrowing"). Puisque le liquide de Fermi est dégénéré à basses températures, sa contribution n'intervient qu'à hautes températures. On a donc une superposition d'une contribution provenant du solide et d'une autre provenant du liquide, avec une largeur résultante dépendant de la température. On voit aussi que la valeur de la largeur limite à hautes températures est plus basse que celle déterminée précédemment pour la phase commensurable (figure 6.14). La largeur intrinsèque correspondant au liquide est très faible; on en déduit que la valeur mesurée à hautes températures (0.21 G) est entièrement due à l'inhomogénéité de l'aimant. Si l'on soustrait à la largeur mesurée à la phase commensurable la largeur inhomogène, on déduit une valeur de la largeur homogène de l'ordre de 30 mG, en bon accord avec l'expérience de Satoh et Sugawara [76].

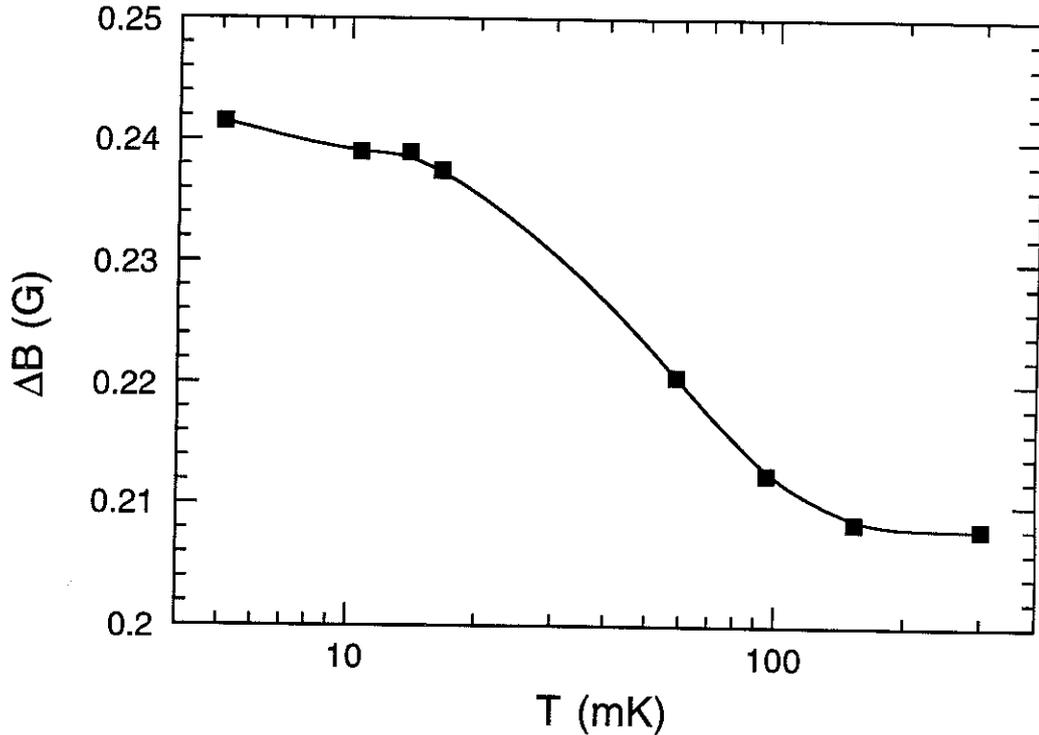


Figure 6.15: Largeurs des raies RMN en fonction de la température; la largeur est définie comme HWHM; densité 0.0523 atomes/Å<sup>2</sup>; la contribution à la largeur de raie due à l'inhomogénéité de l'aimant est  $\Delta B_0 = 0.21$  G.

## 6.8 Conclusion

Aux plus basses densités, les atomes d'<sup>3</sup>He sont localisés par des hétérogénéités du potentiel d'adsorption, ce qui est vu par un grand signal de RMN à basses températures. On a observé que le nombre d'atomes localisés augmente linéairement avec la densité totale. Ceci est qualitativement en accord avec un modèle [44] basé sur une distribution des énergies de liaison. Une correction importante des taux de couverture est nécessaire afin d'obtenir les vraies densités, en particulier dans le cas du liquide.

La susceptibilité nucléaire des liquides d'<sup>3</sup>He adsorbés en sous-monocouche est très bien décrite par des expressions phénoménologiques simples. La température de Fermi effective a été déterminée dans une large gamme de densités, allant des très basses densités jusqu'à la solidification complète. La dépendance du facteur de renforcement de susceptibilité en densité est très similaire à celle mesurée dans le système <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He/Grafoil [47]. Ceci implique que le comportement des liquides de Fermi n'est pas fortement affecté par la corrugation ou la valeur du potentiel d'adsorption. Afin d'obtenir le paramètre de Landau  $F_0^0$ , il faut utiliser des résultats de la chaleur spécifique [50]; on a dû modifier les densités de cette référence afin de tenir compte des atomes localisés. On a trouvé un bon accord entre toutes les expériences (<sup>3</sup>He/Grafoil, <sup>3</sup>He/<sup>4</sup>He/Grafoil et l'<sup>3</sup>He massif) et les modèles théoriques. Il est surprenant que des théories partant de bases très différentes arrivent au même résultat si on les compare à l'expérience. Malheureusement les théories ne peuvent pas être appliquées dans la région de transition des interactions faibles à des interactions fortes, une région bien accessible à l'expérience. Il serait donc souhaitable d'étendre le domaine de validité des modèles théoriques dans cette région. Du point de

vue expérimental, il serait nécessaire d'effectuer des mesures très précises à basses densités où les signaux sont extrêmement petits. Une meilleure sensibilité des mesures de RMN serait exigée, ainsi qu'une mesure de la masse effective par des techniques de capacité calorifique sur le même échantillon.

Le début de la région de coexistence entre le liquide de Fermi et la phase commensurable est trouvé à  $0.0449$  atomes/Å<sup>2</sup> par nos mesures. Ceci est en bon accord avec des mesures de la chaleur spécifique [6]; l'accord devient excellent si l'on utilise la deuxième échelle de couverture proposée par Greywall. Par contre, nos mesures sont en désaccord sérieux avec des mesures de RMN précédentes où une valeur de  $0.032$  atomes/Å<sup>2</sup> a été trouvée. Nous supposons qu'un recuit insuffisant est la cause de cette valeur différente.

L'hypothèse de l'existence d'un solide lacunaire dans une large gamme de densités (plusieurs pourcents) n'est pas consistante avec nos données. En outre, aucune déviation importante par rapport à la loi de Curie n'a été observée pour les densités au-dessous de la phase commensurable, alors qu'un échange important a été prédit pour un solide lacunaire [42].

La largeur des raies RMN a été mesurée pour toutes les densités. La dépendance en densité et en température peut être comprise d'une manière qualitative. En outre, on observe bien dans une gamme de densités une largeur constante correspondant à celle de la phase commensurable, puis une augmentation de la largeur de raie pour des densités supérieures à celle que nous avons déterminée pour la phase commensurable complète. La précision de nos résultats est malheureusement limitée par l'inhomogénéité de notre bobine; des mesures systématiques de largeur de raie en fonction de la température et de la densité, dans un champ plus homogène, devraient fournir des informations précises sur la structure et le diagramme de phases dans le régime sous-monocouche.

# Chapitre 7

## Le diagramme de phases de la deuxième couche jusqu'à la solidification

### 7.1 Introduction

La deuxième série de mesures porte sur les propriétés du liquide de Fermi de la deuxième couche d' $^3\text{He}$  adsorbé sur le Grafoil ainsi que sur la solidification de cette deuxième couche.

Jusqu'à présent il n'y avait pas de mesures de RMN précises sur le liquide de Fermi de la deuxième couche des films purs, alors que ce liquide est particulièrement intéressant, puisque sa densité peut être variée dans une gamme beaucoup plus importante que celle du liquide de la première couche. En outre, il est intéressant de comparer ce système, d'une part, au liquide en première couche et, d'autre part, au système  $^3\text{He} / ^4\text{He} / \text{Grafoil}$  qui a déjà été étudié [47], qui correspondent à des potentiels d'adsorption différents.

De même, la solidification de la deuxième couche n'a jamais été mesurée d'une manière précise par des méthodes de RMN, alors qu'elle joue un rôle important, puisqu'elle correspond au début de la région antiferromagnétique, observé à des densités de 0.19 atomes/ $\text{\AA}^2$  environ (voir appendice C et les références citées). Par ailleurs, on dispose de mesures de la chaleur spécifique dans le régime associé à la solidification de la deuxième couche [5].

Les résultats obtenus par RMN sur les propriétés du liquide en deuxième couche, présentés dans ce chapitre, montrent des effets physiques nouveaux par rapport à ceux observés en première couche.

### 7.2 Mesures

L'aimantation de  $^3\text{He}$  adsorbé sur le Grafoil a été mesurée à des températures entre 3.5 et 300 mK pour 13 taux de couverture:  $\rho = 0.1375, 0.150, 0.157, 0.164, 0.167, 0.170, 0.172, 0.174, 0.176, 0.178, 0.180$  et  $0.182$  atomes/ $\text{\AA}^2$  et à  $\rho = 0.0908$  atomes/ $\text{\AA}^2$ , en utilisant l'échelle de température discutée dans le chapitre 3.5.3. La constante de Curie  $C_\rho$  est proportionnelle au nombre de spins et augmente donc linéairement avec la densité. Dans cette expérience, on a déterminé la valeur de la constante de Curie à la densité de 0.0908 atomes/ $\text{\AA}^2$ ,  $C = 2156$  u.a. Ce résultat permet de calculer pour la constante de Curie de la monocouche ( $0.108$  atomes/ $\text{\AA}^2$ ) une valeur de 2545 u.a. Pour les mesures

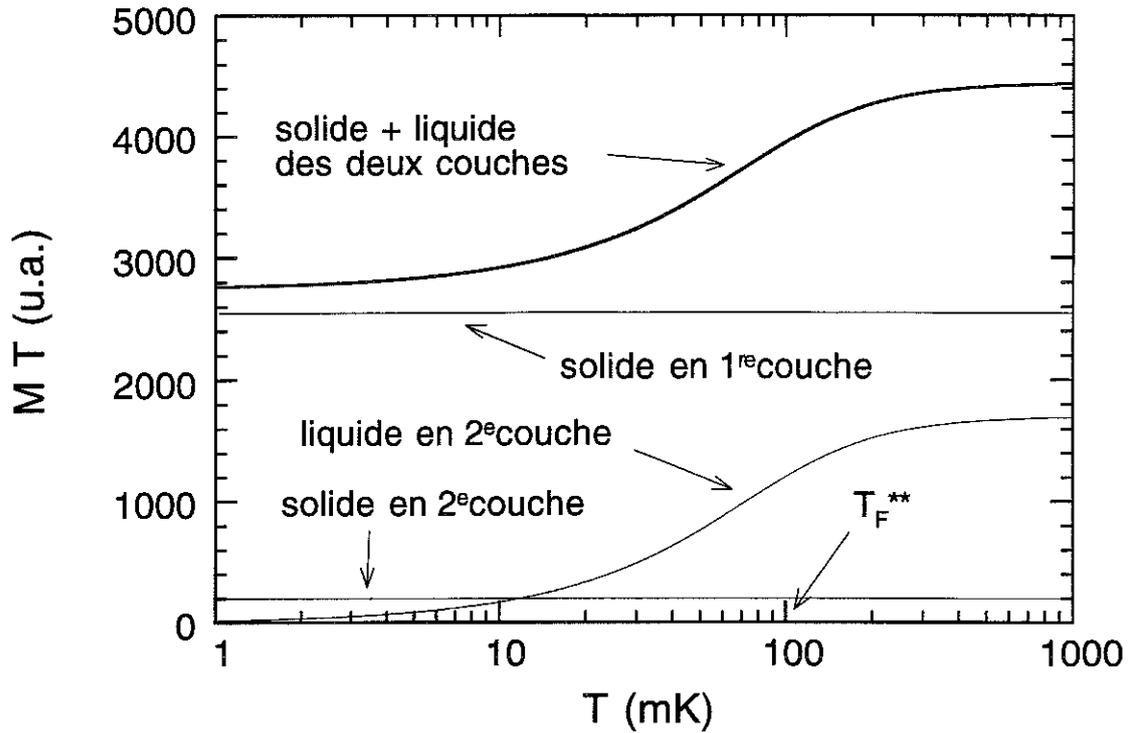


Figure 7.1: Produit de l'aimantation et de la température en fonction de la température dans une échelle logarithmique pour un film en deuxième couche.

en deuxième couche il n'y a pas une densité de référence aussi évidente et bien connue que celle de la phase commensurable pour la première couche; la constante de Curie de la monocouche permet cependant d'effectuer une normalisation arbitraire, mais utile et intuitive, des valeurs des moments magnétiques mesurés.

Dans cette expérience le film d' $^3\text{He}$  consiste d'une première couche solide et d'une deuxième couche liquide ou partiellement solide. L'aspect général de la dépendance en température de l'aimantation est montré dans la figure 7.1, représenté comme le produit de l'aimantation et de la température en fonction de la température dans une échelle logarithmique. L'aimantation de la première couche paramagnétique est la contribution dominante à basses températures. La contribution du solide en deuxième couche est petite à cause de la faible quantité d'atomes présents dans cette couche. Le liquide est dégénéré à basses températures, et ne contribue donc au signal qu'à hautes températures. La dépendance en température de l'aimantation du liquide peut être décrite par l'expression correspondant au gaz de Fermi modifié ou par celle donnée par Dyugaev [48], déjà décrite au chapitre 6.

L'ajustement des données expérimentales peut être fait avec l'expression

$$MT = 2545 \left[ \frac{\rho_{\text{solide}}}{0.108} + \frac{(\rho_{\text{totale}} - \rho_{\text{solide}})T}{0.108 T_F^{**}} (1 - e^{-T_F^{**}/T}) \right] \quad (7.1)$$

où  $T_F^{**}$  est la température de Fermi effective correspondant au gaz de Fermi modifié,  $\rho_{\text{totale}}$  est la densité totale et  $\rho_{\text{solide}}$  est la densité du solide. On remarque que la densité de la première couche peut varier, car elle est comprimée lorsque des atomes d' $^3\text{He}$  sont mis dans la deuxième couche [7]. D'autre part, les données expérimentales peuvent également être

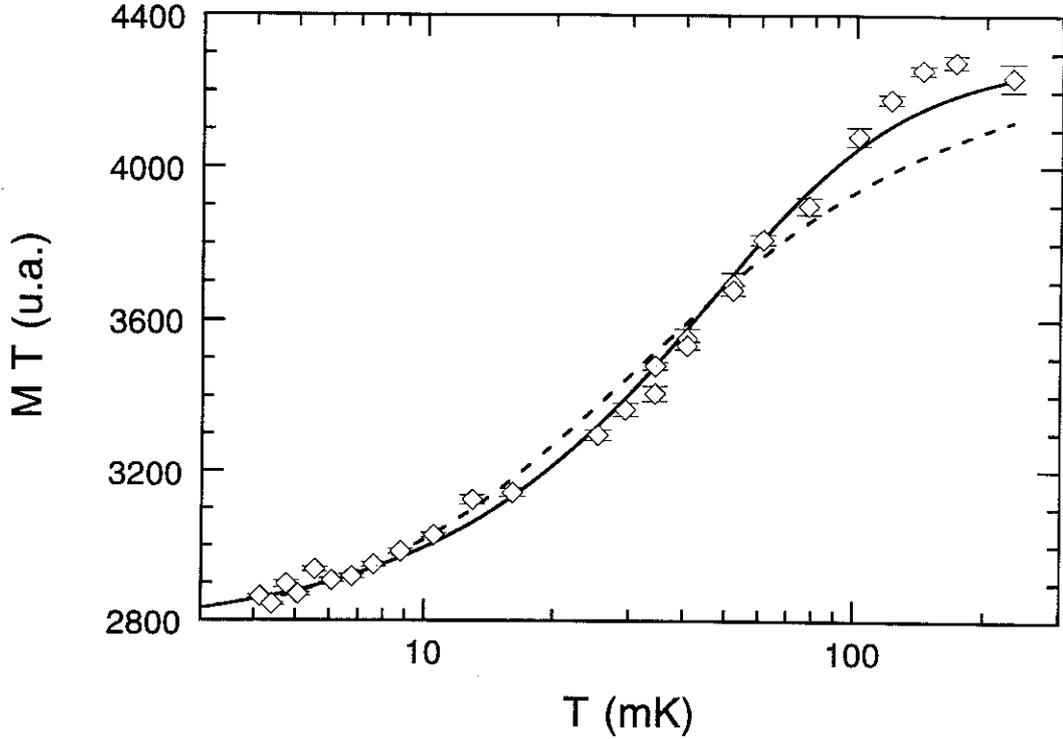


Figure 7.2: Produit de l'aimantation d' $^3\text{He}$  adsorbé et de la température en fonction de la température; densité:  $0.182 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$ ; trait pointillé: ajustement avec l'expression 7.1; trait plein: ajustement avec l'expression 7.2.

ajustées en utilisant pour décrire l'aimantation du liquide l'expression empirique donnée par Dyugaev [48]

$$MT = 2545 \left[ \frac{\rho_{\text{solide}}}{0.108} + \frac{(\rho_{\text{totale}} - \rho_{\text{solide}})T}{0.108} \frac{1}{\sqrt{T^2 + T_F^{**2}}} \right] \quad (7.2)$$

Aux basses densités, les deux expressions fournissent des ajustements de la même qualité, alors qu'aux densités les plus élevées ceci n'est plus le cas. Cette différence est clairement vue dans la figure 7.2 correspondant aux données à  $0.182 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$ . Contrairement aux mesures de la température de Fermi dans la première couche, dans la deuxième couche il y a donc une différence significative entre ces deux expressions pour le liquide de Fermi. Par conséquent, on a préféré ajuster les données de toutes les densités avec l'expression 7.2.

L'ensemble des données mesurées est montré dans les figures 7.3 et 7.4 pour les bas et les hauts taux de couverture respectivement. Les données sont représentées comme le produit de l'aimantation et de la température en fonction de la température dans une échelle logarithmique afin de mieux voir le régime de transition du liquide de l'état non-dégénéré à l'état dégénéré. On voit que le signal à basses températures (c'est-à-dire la quantité de solide) commence à augmenter à une densité de  $0.182 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$ . La solidification de la deuxième couche commence donc entre  $0.180 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$  et  $0.182 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$ . On voit également que la température de Fermi baisse lorsqu'on augmente la densité, puisque le régime de transition se décale vers les basses températures.

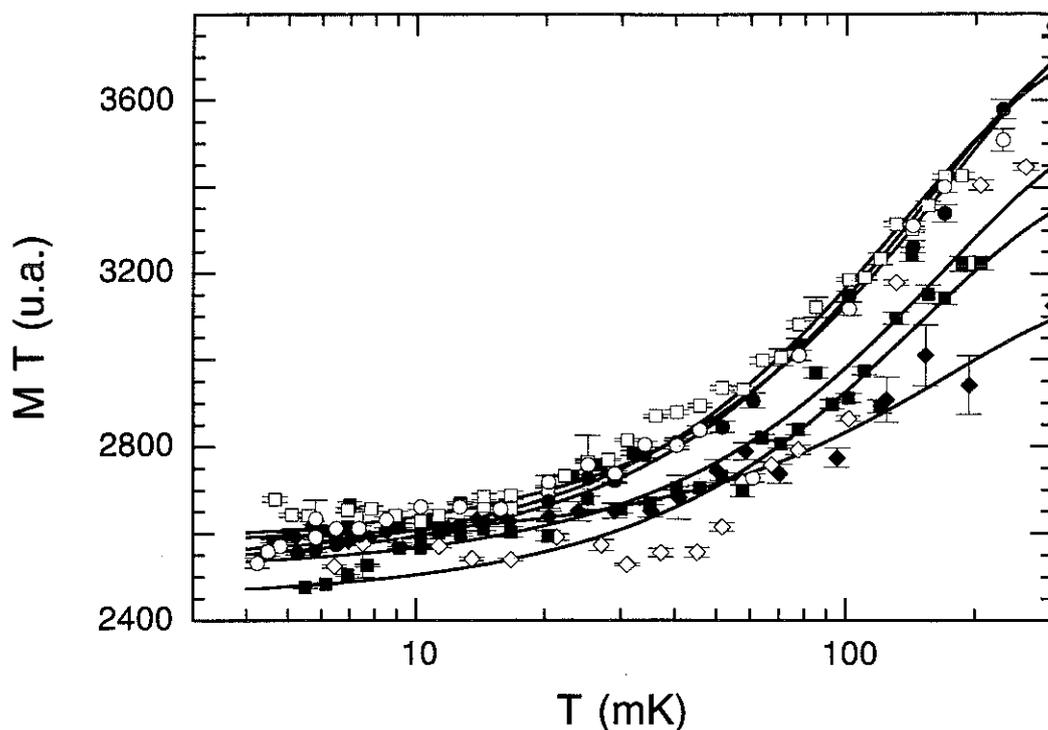


Figure 7.3: Produit de l'aimantation d' $^{13}\text{He}$  adsorbé et de la température en fonction de la température; losanges pleins: 0.1375; losanges vides: 0.150; carrés pleins: 0.157; carrés vides: 0.164; cercles pleins: 0.167; cercles vides: 0.170 atomes/ $\text{\AA}^2$ ; ajustements expliqués dans le texte.

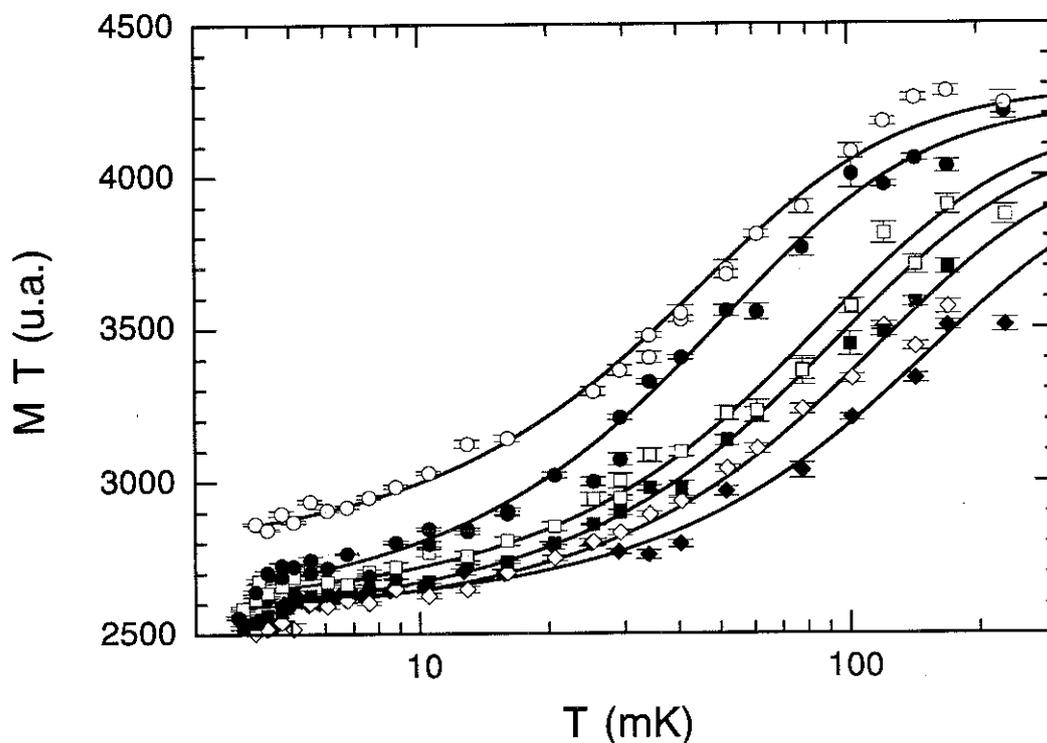


Figure 7.4: Produit de l'aimantation d' $^{13}\text{He}$  adsorbé et de la température en fonction de la température; losanges pleins: 0.172; losanges vides: 0.174; carrés pleins: 0.176; carrés vides: 0.178; cercles pleins: 0.180; cercles vides: 0.182 atomes/ $\text{\AA}^2$ ; ajustements expliqués dans le texte.

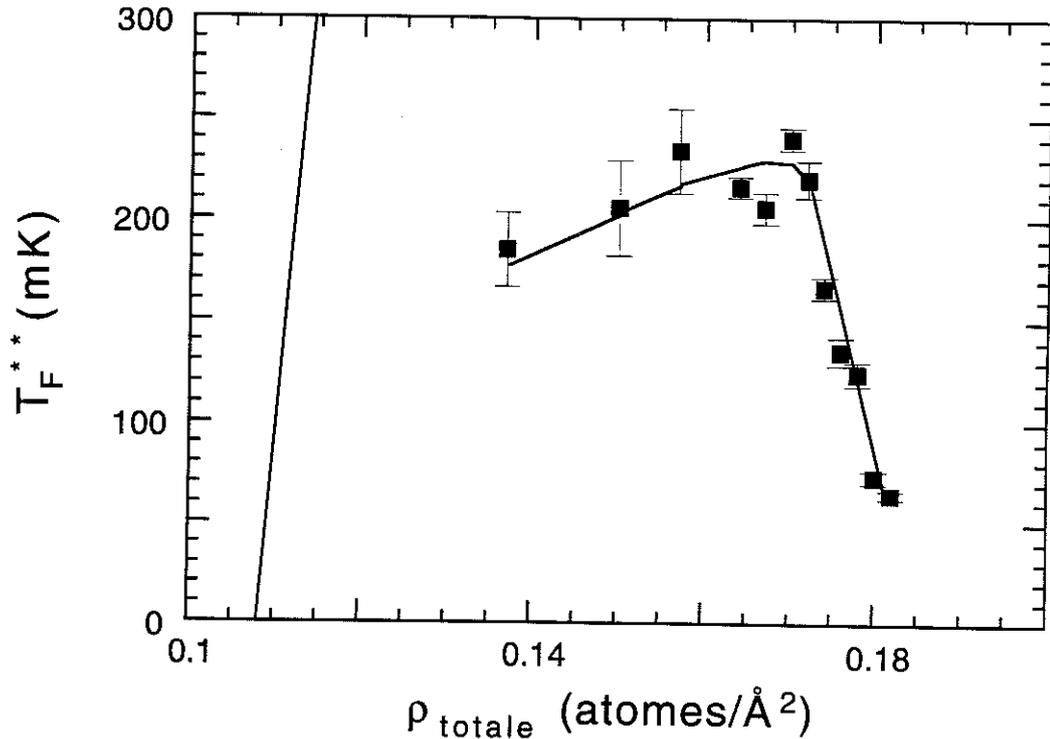


Figure 7.5: Température de Fermi en fonction de la densité ajustée avec l'expression 7.2; la droite en trait plein correspond à un gaz de Fermi idéal en 2D (équations 6.3, 6.4).

La température de Fermi effective en fonction de la densité totale est montrée dans la figure 7.5; la température de Fermi du gaz de Fermi idéal est indiquée par la droite diagonale  $T_F \text{ (mK)} = 50.53 \rho \text{ [atomes/\text{Å}^2]}$ . Il est remarquable que la température de Fermi effective semble être relativement constante dans toute la région  $0.1375\text{--}0.170 \text{ atomes/\text{Å}^2}$ , alors qu'on s'attendrait à une décroissance de cette grandeur pour un liquide de Fermi dans le régime de corrélations fortes. Dans la première couche cet effet a été vu pour toutes les densités du liquide (figure 6.6); dans la deuxième couche, cette décroissance n'est observée qu'à partir de  $0.172 \text{ atomes/\text{Å}^2}$ , ce qui correspond à un liquide d'une densité de  $0.06 \text{ atomes/\text{Å}^2}$  environ. Apparemment il y a deux régions de densité: dans la première région ( $0.1375\text{--}0.170 \text{ atomes/\text{Å}^2}$ ) les propriétés du liquide de Fermi changent peu, et dans la deuxième ( $0.172\text{--}0.182 \text{ atomes/\text{Å}^2}$ ) la température de Fermi effective décroît.

La variation de la densité du solide en première couche en fonction de la densité totale est montrée dans la figure 7.6. On voit que cette densité est constante jusqu'à  $0.180 \text{ atomes/\text{Å}^2}$ , en excellent accord avec les mesures de diffusion de neutrons [7]. Étant donnée que ces dernières fournissent une mesure directe de la densité de la phase incommensurable, il est clair qu'on n'observe pas dans nos résultats l'augmentation de surface effective décrite par d'autres auteurs [7, 18]. Il est difficile de dire à présent si ceci est dû à l'amélioration de la précision des expériences par RMN, ou s'il s'agit d'un effet d'échantillon. Pour des densités supérieures à  $0.180 \text{ atomes/\text{Å}^2}$  la quantité de solide commence à augmenter. Ceci est expliqué par le début de la solidification de la deuxième couche; la densité de ce début est déterminé à  $(0.180\text{--}0.182) \text{ atomes/\text{Å}^2}$  par nos mesures. Une extrapolation au point de la solidification complète est montrée dans l'encart de la figure 7.6 en supposant que la région de coexistence de liquide et solide dans la deuxième couche a une largeur en densité de  $0.1 \text{ atomes/\text{Å}^2}$  comme proposé par Greywall [5]. La densité du solide en fonction de la densité totale est montrée dans la figure 7.7 pour

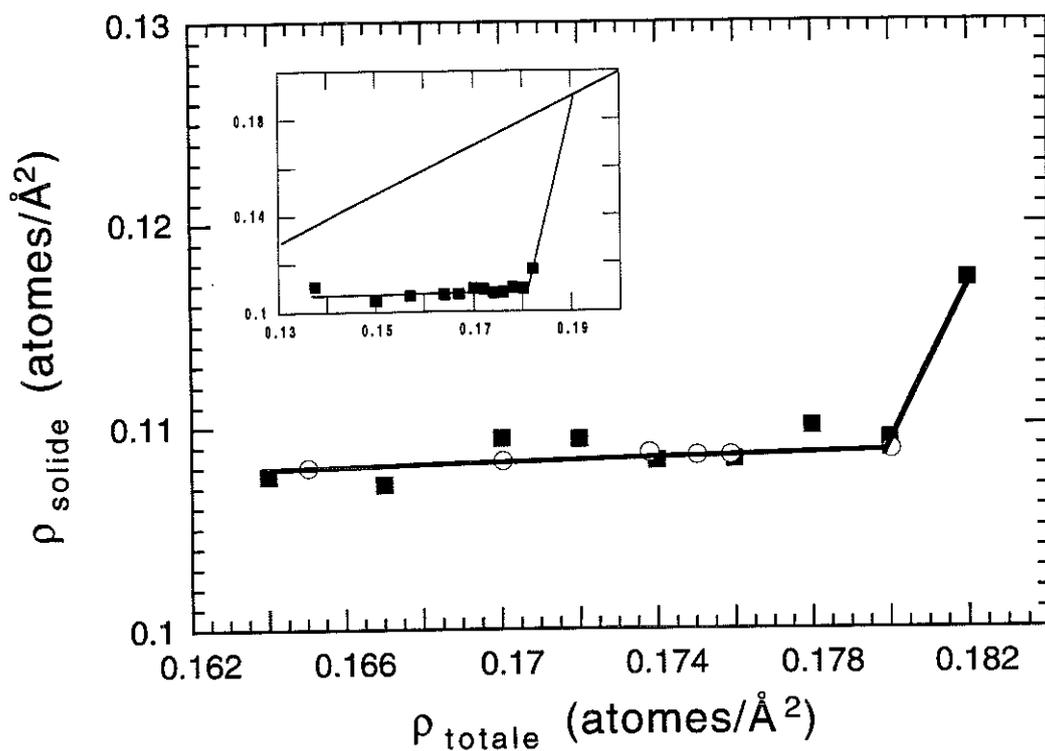


Figure 7.6: Densité du solide en fonction de la densité totale au voisinage du début de la solidification; carrés pleins: nos mesures; cercles vides: mesures par diffusion de neutrons [7]; encart: densité du solide dans une gamme plus large (extrapolation de la solidification complète à 0.19 atomes/Å<sup>2</sup> expliquée dans le texte).

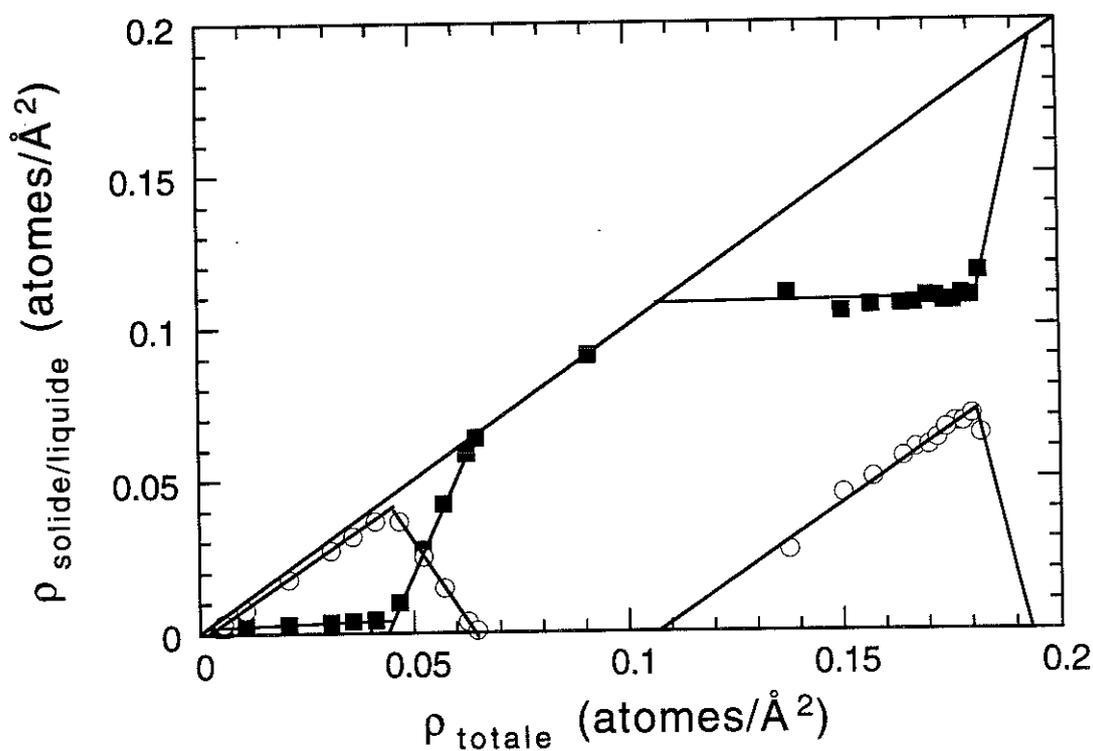


Figure 7.7: Densité du solide (liquide) de la première et de la deuxième couche en fonction de la densité; carrés pleins: solide; cercles vides: liquide.

toute la gamme des densités de la première et de la deuxième expérience. On observe clairement les régions du diagramme de phases correspondantes à la solidification de la première, puis de la deuxième couche atomique, ainsi que les quantités relatives de solide et de liquide présentes en fonction du taux de couverture. Il faut souligner le fait que la même échelle de couverture est utilisée dans les deux expériences.

### 7.3 Hypothèse de la solidification dans un solide antiferromagnétique

La densité du début de la solidification d'après Greywall étant  $0.169 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$  [5], ce qui correspondrait exactement à la "cassure" des températures de Fermi observée par nos mesures (voir figure 7.5), on s'est demandé, si, dans cette région de densité, le système n'est pas en fait déjà en train de solidifier. En effet, le solide ayant une interaction antiferromagnétique importante qui diminuerait  $M T$  également à basses températures, cet effet pourrait éventuellement fausser l'analyse des résultats. La figure 7.8 montre les résultats expérimentaux pour  $0.180 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$ , une densité où, d'après Greywall, le film devrait être presque complètement solide. Le trait plein correspond à l'ajustement fait avec l'expression 7.2; le trait pointillé-hâché correspond au signal d'un film avec une première couche solide d'une densité de  $0.108 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$ , d'un solide dans la deuxième couche d'une densité (macroscopique) de  $0.06 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$  avec une température de Curie-Weiss de  $-5 \text{ mK}$  [18] et un liquide dans la deuxième couche d'une densité de  $0.012 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$  avec une température de Fermi de  $150 \text{ mK}$ . Il est évident qu'une expression de ce type ne peut jamais ajuster les données expérimentales à cause de la courbure différente à basses

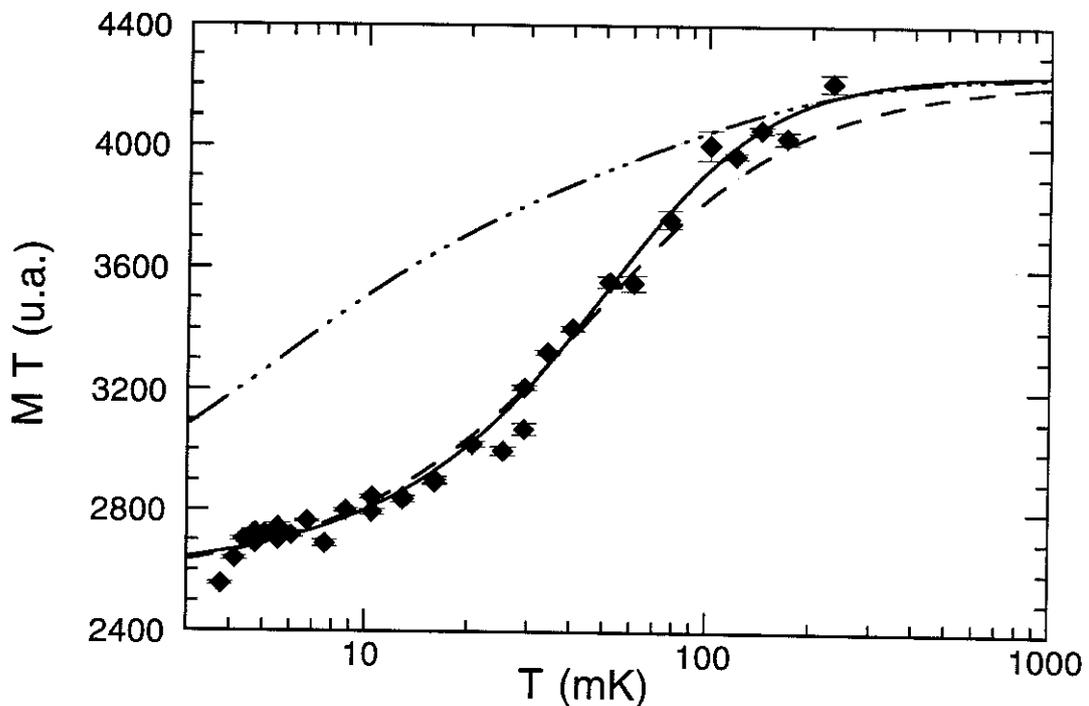


Figure 7.8:  $MT$  en fonction de la température à  $0.180 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$ ; le trait plein correspond à un liquide, le trait pointillé-hâché à un solide antiferromagnétique avec  $\theta = -5 \text{ mK}$  et le trait hâché à  $\theta = -46 \text{ mK}$ .

températures, à condition de ne pas augmenter la température de Curie-Weiss beaucoup plus. Si l'on introduit une température de Curie-Weiss dans l'expression 7.2, on obtient l'expression

$$MT = 2545 + 2545 \left[ \frac{\rho_{solide} T}{0.108 (T - \theta)} + \frac{(\rho_{totale} - 0.108 - \rho_{solide}) T}{0.108} \frac{1}{\sqrt{T^2 + T_F^{**2}} \right] \quad (7.3)$$

où la densité de la première couche est gardée fixe à 0.108 atomes/Å<sup>2</sup> et  $\rho_{solide}$  est maintenant la densité (macroscopique) du solide dans la deuxième couche. Un ajustement des données expérimentales avec cette expression donne des valeurs très petites pour la quantité de solide dans la deuxième couche et pour la température de Curie-Weiss, alors que la température de Fermi ne change pratiquement pas pour toutes les densités. Les résultats de l'ajustement avec l'expression 7.2 ne sont donc pratiquement pas changés. En outre, si l'on impose une quantité de solide dans la deuxième couche de 0.035 atomes/Å<sup>2</sup>, on obtient une température de Curie-Weiss de -46 mK (trait hachuré dans la figure 7.8). On conclut donc que la deuxième couche est liquide même à 0.180 atomes/Å<sup>2</sup> et que la solidification commence à 0.182 atomes/Å<sup>2</sup>. Par conséquent, les deux régimes observés sur la température de Fermi en fonction de la densité de la figure 7.5 sont directement associés aux propriétés du liquide de Fermi.

## 7.4 Le liquide de Fermi de la deuxième couche

### 7.4.1 Introduction

Le liquide de Fermi d'<sup>3</sup>He sur une monocouche d'<sup>3</sup>He adsorbé sur le Grafoil représente un système différent de celui des liquides en première couche pour des raisons déjà discutées dans la section 6.4.2. Le potentiel d'adsorption des atomes d'<sup>3</sup>He adsorbés en deuxième couche est de l'ordre de quelques dizaines de Kelvins, alors que celui des atomes d'<sup>3</sup>He adsorbés sur le Grafoil est de 136 K. En outre, la corrugation du potentiel d'adsorption est beaucoup plus faible dans la deuxième couche par rapport à la première couche.

On étudie ici ce deuxième système, constitué par la deuxième couche liquide des films d'<sup>3</sup>He purs. On dispose pour celui-ci de mesures précises de la chaleur spécifique [50].

### 7.4.2 Discussion des résultats expérimentaux

Le facteur de renforcement de la susceptibilité, défini comme la susceptibilité d'un liquide de Fermi avec interactions à température nulle  $\chi(0)$  divisé par la susceptibilité d'un gaz de Fermi idéal de même densité à température nulle  $\chi_0(0)$ , est donné par l'expression

$$\frac{\chi(0)}{\chi_0(0)} = \frac{T_F}{T_F^{**}} \quad (7.4)$$

où  $T_F$  est la température d'un gaz de Fermi idéal. Ce facteur de renforcement est montré en fonction de la densité dans la figure 7.9, ainsi que les résultats pour la première couche déjà montrés dans la figure 6.9. Afin d'obtenir la densité du liquide dans la deuxième couche pour nos mesures, on a soustrait une valeur constante (0.108 atomes/Å<sup>2</sup>) correspondant à la densité de la première couche. On voit qu'à une densité du liquide

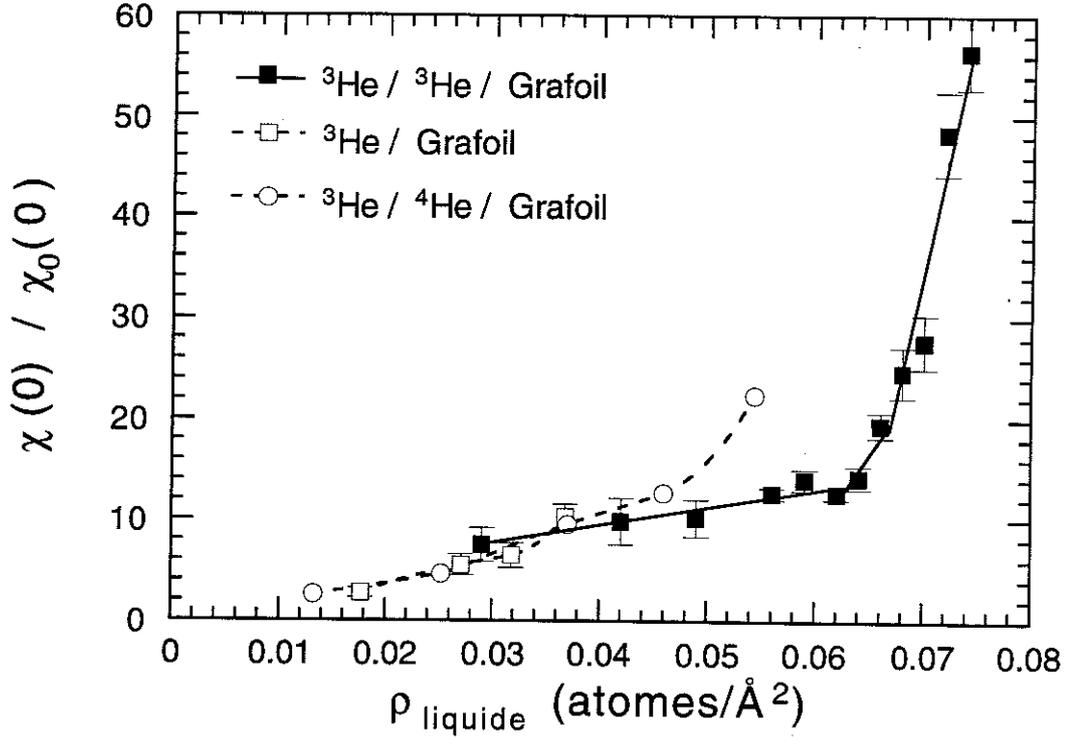


Figure 7.9: Facteur de renforcement de la susceptibilité en fonction de la densité; carrés pleins: nos résultats de la deuxième couche; carrés vides: nos résultats de la première couche; cercles vides: système  $^3\text{He} / ^4\text{He} / \text{Grafoil}$  de la référence [47]

de  $0.03 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$  le facteur de renforcement est sensiblement le même pour différents systèmes expérimentaux. Pour le système  $^3\text{He} / ^3\text{He} / \text{Grafoil}$  mesuré ici, il augmente plus doucement que pour le système  $^3\text{He} / ^4\text{He} / \text{Grafoil}$ ; puis il y a un changement de pente à  $0.064 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$  qui est une conséquence de la cassure de la température de Fermi effective décrite précédemment. Le facteur de renforcement atteint une valeur très élevée, supérieure à cinquante aux plus hautes densités. Celle-ci est deux fois plus élevée que celle observée dans le système pré-enduit d' $^4\text{He}$ . La densité correspondant au début de la solidification de ce dernier système semble être inconnue, mais la promotion dans la troisième couche est observée à  $0.069 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$  [47]. En tout cas, aucune mesure à des densités supérieures à  $0.054 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$  n'a été rapportée; en outre, les mesures de la référence [47] ont été faites à des pas de  $0.01 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$  en densité, ce qui n'est pas assez fin pour voir l'effet de l'augmentation dramatique du facteur de renforcement observé dans un intervalle d'environ  $0.01 \text{ atomes}/\text{\AA}^2$  dans nos mesures. Par conséquent, il est possible que cet effet existe également dans le système pré-enduit.

La deuxième quantité physique accessible aux mesures est la masse effective, que l'on peut déduire des mesures de la chaleur spécifique (voir chapitre 6.4.2); ces mesures ont été effectuées par Greywall pour le liquide de la deuxième couche [5]. Malheureusement le problème de l'échelle de taux de couverture se pose de nouveau. Afin de pouvoir comparer nos résultats à ceux de Greywall, il faut augmenter les densités de la référence [5] de 6.5%, dont 2.5% sont dûs à un léger changement de l'échelle de taux de couverture fait par Greywall [77] et 4.3% sont dûs au décalage discuté dans le chapitre 6.6. Ce point sera discuté plus en détail dans la section suivante. La masse effective en fonction de la densité du liquide après cette correction (densité du solide de la première couche

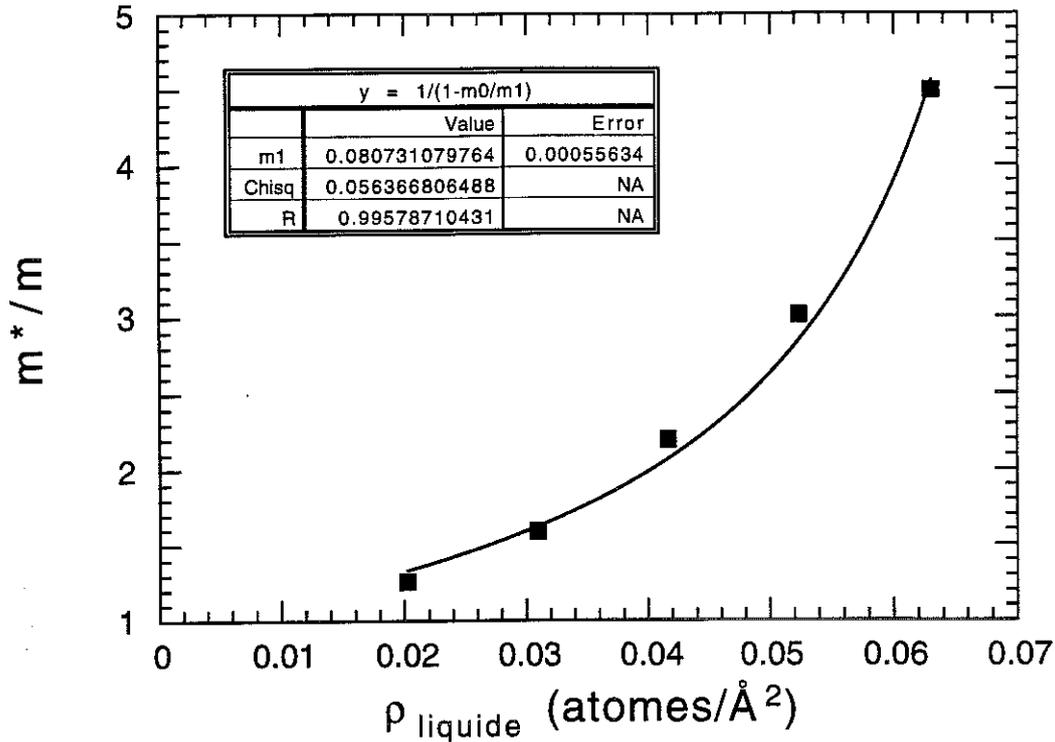


Figure 7.10: Masses effectives de la deuxième couche en fonction de la densité ajustées avec l'expression 7.5.

0.108 atomes/Å<sup>2</sup>) est montrée dans la figure 7.10. Si l'on observe les densités du liquide des figures 7.9 et 7.10, on voit que la région où le facteur de renforcement augmente beaucoup n'est pas couverte par les mesures de la masse effective, le prochain point étant déjà dans la région de coexistence. Néanmoins on peut extrapoler le comportement des masses effectives en utilisant une expression proposée par Chubukov et Sokol [78], qui ont trouvé que la dépendance de la masse effective de la densité peut être décrite par la composante d'une onde p dans la diffusion

$$\frac{m^*}{m} \approx \left(1 - \frac{\rho}{\rho_0}\right)^{-1} \quad (7.5)$$

où  $\rho_0$  est la densité où la masse effective diverge. Chubukov et Sokol ont montré que cet ajustement décrit bien les trois premiers points à basses densités. En utilisant les densités corrigées nous trouvons en fait que cette expression est en bon accord avec les données expérimentales pour toutes les densités (voir figure 7.10).

### 7.4.3 Comparaison avec des résultats théoriques

Nous avons observé des renforcements de la susceptibilité très importants dans une petite région de densité au voisinage de la solidification de la deuxième couche. Le facteur de renforcement atteint des valeurs supérieures à 50, alors que dans la première couche il n'atteint qu'une valeur de 10. Il s'agit donc d'expliquer l'origine de cet effet spectaculaire observé expérimentalement. Il n'existe actuellement aucune théorie complète permettant de prédire le comportement des liquides de Fermi en deux dimensions. Ceci est également vrai pour l<sup>3</sup>He en trois dimensions. Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent,

il existe des modèles théoriques qui, au prix d'approximations importantes, mettent en évidence certains aspects de la physique de ces systèmes. Le renforcement de l'aimantation observé suggère l'existence de fortes corrélations, si l'on suppose que le liquide est strictement bi-dimensionnel, comme dans le cas des liquides en sous-monocouche. En fait, il ne faut pas oublier que le système en deuxième couche est faiblement lié au substrat, que la densité du liquide atteint des valeurs très importantes, et que par conséquent un début de peuplement de la troisième couche ne peut être exclu a priori. Cette idée intuitive nous conduit à considérer le modèle de disques de Fermi [79, 80]. Dans les paragraphes suivants ce modèle ainsi que le modèle des paramagnons et celui des fermions presque localisés seront comparés aux résultats expérimentaux.

Ceci exige de bien connaître la dépendance en densité de la masse effective. Les mesures de Greywall ne couvrant pas de manière satisfaisante le régime de densité correspondant aux plus forts renforcements de susceptibilité, nous utiliserons l'expression 7.5 proposée par Chubukov et Sokol, dont nous avons montré précédemment qu'elle rendait bien compte des résultats expérimentaux. Il faut tenir compte cependant que la validité de cette expression n'a été démontrée expérimentalement que pour des masses effectives inférieures à cinq, et que des extrapolations au double de cette valeur seront nécessaires au cours de l'analyse suivante.

Connaissant la masse effective, il est aisé de calculer la dépendance en densité du renforcement de susceptibilité dans le cadre du modèle des paramagnons et du liquide quasi-localisé en utilisant les expressions 6.16 et 6.19. On représente dans la figure 7.11 les résultats expérimentaux et les courbes théoriques correspondant à ces deux modèles. Il est important de souligner qu'il n'y a pas de paramètre ajustable. Le désaccord observé à des densités intermédiaires n'est pas significatif, étant donné que le domaine de validité des deux théories est limité à la région de hautes densités. La dépendance approximativement linéaire du facteur de renforcement déterminé expérimentalement provient en fait de celle de  $\chi_0(0)$ . On voit, par contre, que les résultats expérimentaux à des densités élevées sont bien décrits par le modèle des fermions presque localisés et un peu moins bien par le modèle des paramagnons. Pour la densité où les renforcements les plus importants sont observés dans nos mesures le modèle de paramagnons fait intervenir une masse effective de l'ordre de sept, alors que le modèle du liquide presque localisé exige une valeur de quatorze. Des mesures de chaleur spécifique dans le domaine de densité que nous avons identifié devraient préciser la valeur expérimentale de la masse effective, et apporter une réponse à ce problème.

Comme pour la première couche, le paramètre de Landau  $F_0^a$  peut être calculé à partir du facteur de renforcement et de la masse effective (voir equation 6.11). La grandeur  $1 + F_0^a$  est représentée en fonction de l'inverse de la masse effective dans la figure 7.12 pour les données de la deuxième couche ainsi que pour les deux systèmes déjà discutés au chapitre 6. On voit que les valeurs correspondant au système  $^3\text{He} / \text{Grafoil}$  sont systématiquement plus élevées que celles du système  $^3\text{He} / ^4\text{He} / \text{Grafoil}$  qui, à leur tour, sont plus élevées que celles du système  $^3\text{He} / ^3\text{He} / \text{Grafoil}$ . On peut penser qu'il s'agit d'un effet lié à la différence des potentiels attractifs correspondant à ces trois systèmes. Il convient cependant d'être prudent, car cette différence ne se manifeste qu'aux plus basses densités où les mesures sont extrêmement difficiles. Par contre, on observe une remarquable convergence des valeurs de  $1 + F_0^a$  pour les trois systèmes à des densités élevées, vers une limite de l'ordre de 0.25. Celle-ci correspond bien à celle prédite par le modèle phénoménologique de Castaing [70]. Les mêmes données sont représentées d'une manière

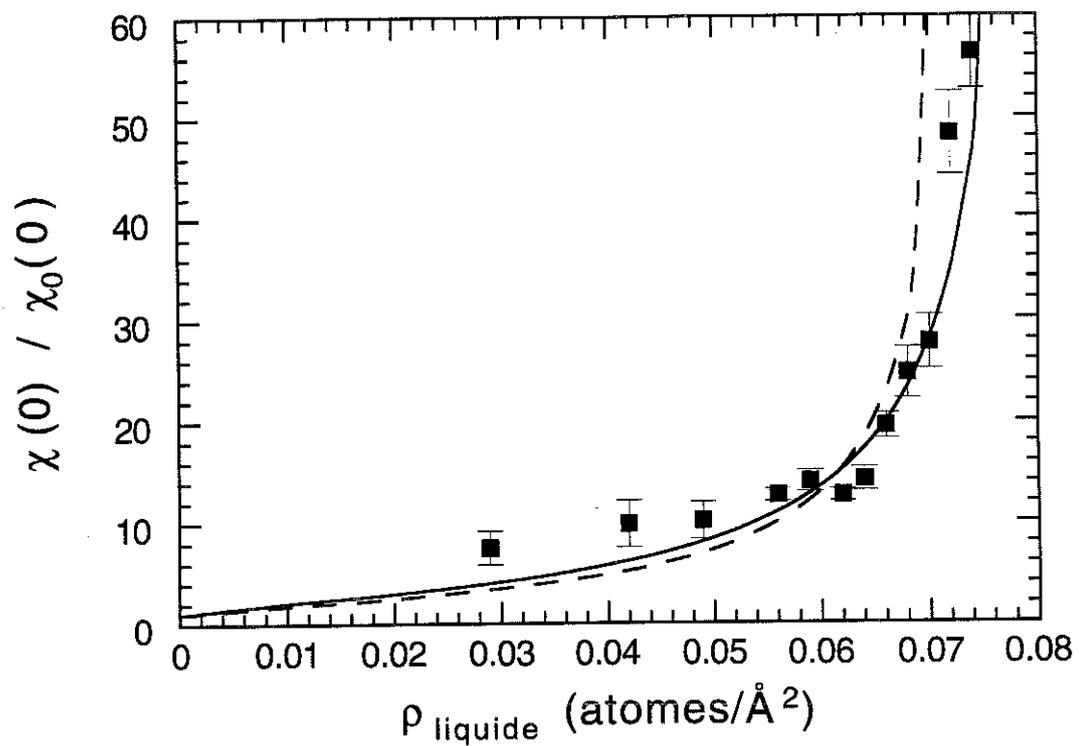


Figure 7.11: Facteur de renforcement de la susceptibilité en fonction de la densité; carrés pleins: nos résultats de la deuxième couche; trait plein: modèle des fermions presque localisés en prenant les masses effectives extrapolées à partir de l'expression 7.5; trait hâché: modèle des paramagnons avec les mêmes masses effectives.

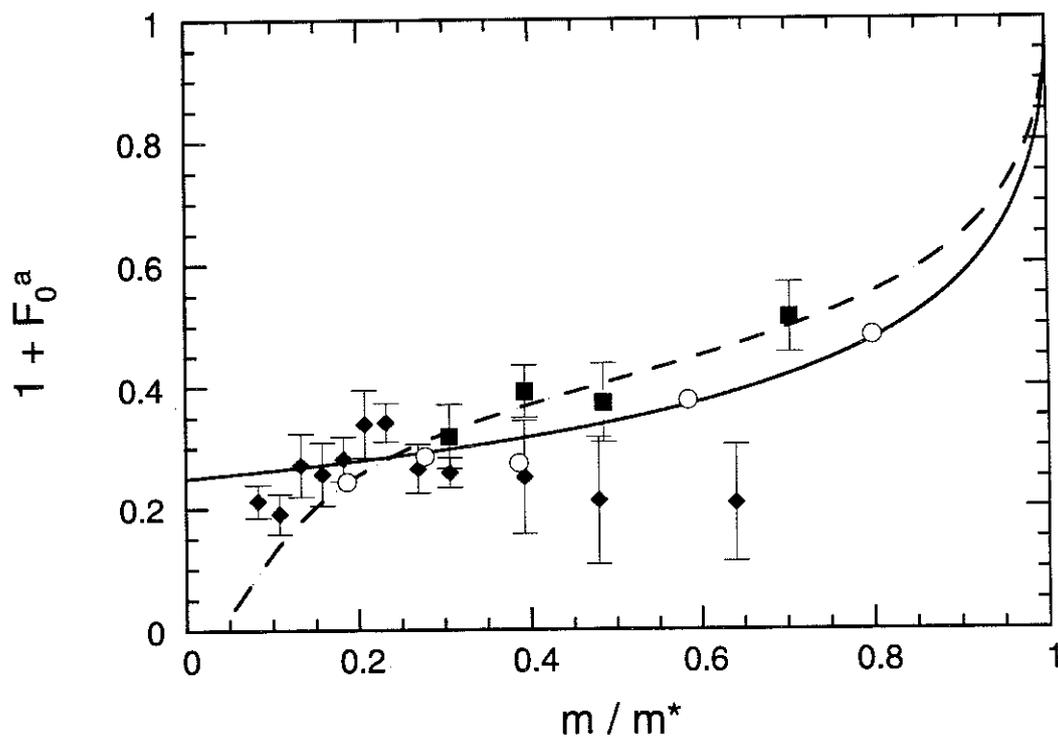


Figure 7.12:  $1 + F_0^a$  en fonction de l'inverse de la masse effective; losanges pleins:  $^3\text{He} / ^3\text{He} / \text{Grafoil}$ ; cercles vides:  $^3\text{He} / ^4\text{He} / \text{Grafoil}$  [47]; carrés pleins:  $^3\text{He} / \text{Grafoil}$ .

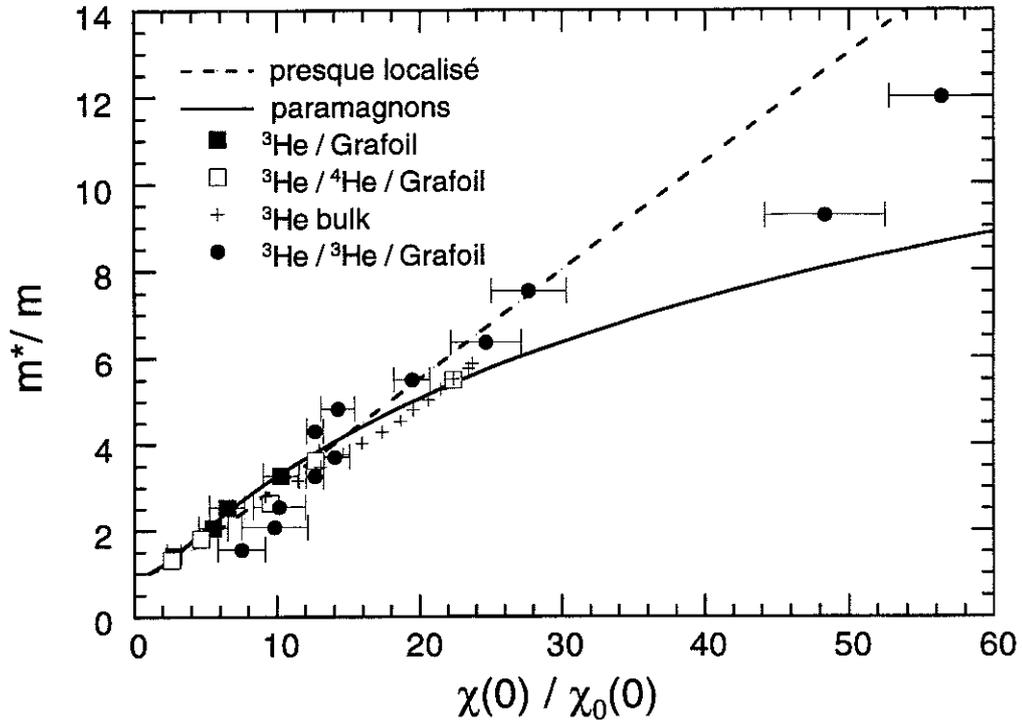


Figure 7.13: Masse effective en fonction du renforcement de susceptibilité; cercles:  $^3\text{He}/^3\text{He}/\text{Grafoil}$ ; carrés pleins:  $^3\text{He}/\text{Grafoil}$ ; carrés vides: système  $^3\text{He}/^4\text{He}/\text{Grafoil}$  de la référence [47]; croix:  $^3\text{He}$  massif; le trait plein correspond au modèle des paramagnons, le trait pointillé au modèle des fermions presque localisés; il faut noter que les masses effectives supérieures à cinq ont été obtenues en utilisant l'expression 7.5.

différente dans la figure 7.13: le graphe montre la masse effective en fonction du facteur de renforcement de la même manière que dans la figure 6.11.

D'autre côté, on a vu un changement de pente du facteur de renforcement en fonction de la densité du liquide dans la figure 7.9, un comportement qui pourrait être associé au peuplement d'un deuxième disque de Fermi (Pricaupenko et Treiner [80]). En deux dimensions la sphère de Fermi est remplacée par un disque de Fermi. Pour des films d'épaisseur finie, les états suivant la direction perpendiculaire au substrat sont décrits par un nombre quantique supplémentaire, correspondant au nombre de noeuds de la composante perpendiculaire de la fonction d'onde. On obtient une succession de "disques de Fermi". Le peuplement d'un deuxième disque de Fermi a lieu quand l'énergie d'une particule dans ce disque devient inférieure à celle dans le premier disque. Une discontinuité de la masse effective en fonction de la densité apparaît, lorsque le deuxième disque de Fermi est peuplé, à cause des nouveaux états accessibles au système. Le comportement de la chaleur spécifique pour un substrat de Césium est montré dans la figure 7.14. Le calcul de l'aimantation fait intervenir la supposition que le paramètre de Landau  $F_0^a$  est constant [80], ce qui n'est pas justifié à basses densités. Néanmoins on peut supposer que la figure 7.14 décrit qualitativement l'aimantation d'un film d' $^3\text{He}$  liquide sur un substrat faiblement attractif. La première discontinuité visible dans la figure 7.14 correspondrait alors au changement de pente observé dans la figure 7.9. Il faut cependant remarquer que le peuplement du deuxième disque de Fermi dans l'espace  $k$  coïncide avec la promotion dans la prochaine couche dans l'espace des coordonnées qui, à son tour, n'est observée

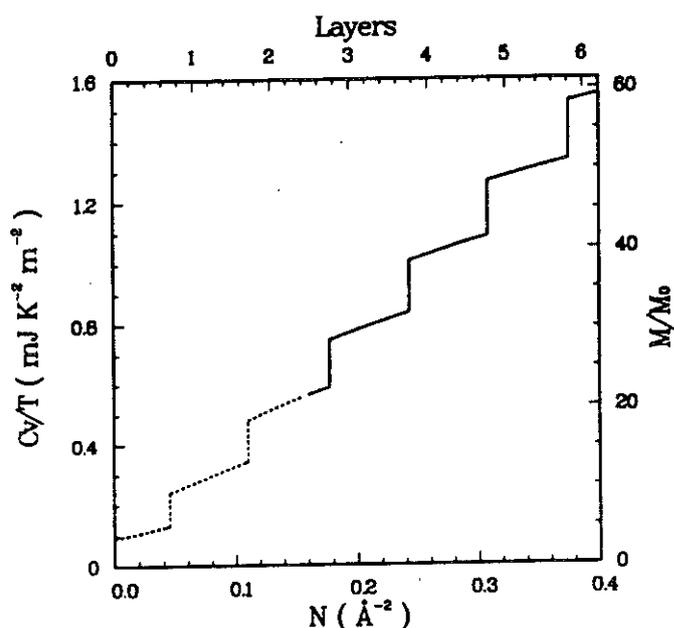


Figure 7.14: Variation de la chaleur spécifique et de l'aimantation avec la densité pour  $^{13}\text{He}$  sur le Césium d'après la référence [80].

qu'à une densité légèrement plus élevée que celle de la solidification complète [5]. Il serait donc nécessaire de supposer qu'une première promotion dans la troisième couche ait lieu à  $0.170$  atomes/ $\text{\AA}^2$ , et que les atomes rentrent de nouveau dans la deuxième couche lors de la solidification de la deuxième couche, puis qu'ils sont à nouveau promus dans la troisième couche à partir de  $0.195$  atomes/ $\text{\AA}^2$  environ. Il serait certainement souhaitable, d'une part d'effectuer des mesures de chaleur spécifique dans exactement cette gamme de densités, afin de voir si un changement de pente existe également pour les masses effectives et, d'autre part, d'avoir des calculs indiquant la densité où la deuxième disque de Fermi commence à être peuplé pour la deuxième couche d' $^{13}\text{He}$  sur un substrat de graphite.

## 7.5 La solidification de la deuxième couche

Le début de la solidification de la deuxième couche est observé à  $0.169$  atomes/ $\text{\AA}^2$  par des mesures de la chaleur spécifique [5]; c'est-à-dire à une valeur 6.5% plus basse que nos mesures. Entre l'expérience en multicouche [5] et l'expérience en sous-monocouche [6] Greywall a augmenté son échelle de couverture de 2.5% [77], parce qu'il pensait avoir trouvé la phase commensurable à une densité trop basse. D'après notre conclusion du chapitre 6.6, la phase commensurable pure se trouve à une densité encore 4.3% plus élevée; avec cette correction, on trouve donc un accord excellent entre nos mesures de RMN et celles de Greywall de la chaleur spécifique en sous-monocouche. Afin d'utiliser les mêmes échelles de couverture dans les deux expériences de la chaleur spécifique, il faut donc augmenter les densités rapportées dans la référence [5] de 6.9%. Le début de la solidification déterminé par Greywall se trouve après correction à une valeur de  $0.181$  atomes/ $\text{\AA}^2$ , ce qui est en excellent accord avec notre valeur. Par contre, Grey-

wall a observé la promotion des atomes dans la deuxième couche à  $0.109 \text{ atomes}/\text{Å}^2$ ; après la correction cette densité serait de  $0.117 \text{ atomes}/\text{Å}^2$  ce qui est certainement trop élevé. Il faut cependant remarquer que l'attribution de la promotion des atomes dans la deuxième couche à  $0.109 \text{ atomes}/\text{Å}^2$  par Greywall n'est pas extrêmement bien fondée. En effet, ses données à  $0.100 \text{ atomes}/\text{Å}^2$  ( $0.107 \text{ atomes}/\text{Å}^2$ ) ne montrent pas de signature d'un liquide, et les données à  $0.110 \text{ atomes}/\text{Å}^2$  ( $0.118 \text{ atomes}/\text{Å}^2$ ) le montrent; la valeur de  $0.109 \text{ atomes}/\text{Å}^2$  a donc été déterminée par Greywall par une interpolation un peu arbitraire.

Une autre signature bien définie est le "pic ferromagnétique" [5, 3]. Par des mesures de RMN ce pic est observé à  $0.0235 \text{ atomes}/\text{Å}^2$  [3], tandis que par des mesures de la chaleur spécifique il est observé à  $0.0235 \text{ atomes}/\text{Å}^2$  à 2.5 mK et à  $0.0225 \text{ atomes}/\text{Å}^2$  à 5 mK [5]. Il faut remarquer que le pic mesuré par la RMN correspond à une quantité maximale de la phase ferromagnétique, alors que le pic mesuré par la chaleur spécifique correspond à un maximum d'échange, où l'échange antiferromagnétique est inclus. Cet effet tend à décaler le pic "ferromagnétique", observé par la chaleur spécifique, à des densités plus basses par rapport aux mesures de RMN. En conclusion, il ne semble pas inconsistant de supposer que l'échelle de couverture de la référence [5] soit décalée de 6.9%.

Dans des mesures de diffusion de neutrons, Lauter et al. ont observé deux pics de neutrons à partir de  $0.182 \text{ atomes}/\text{Å}^2$  [7] ce qui pourrait être interprété comme le début d'une solidification de la deuxième couche. En outre, des résultats récents des mesures de RMN [81] indiquent une densité de  $0.185 \text{ atomes}/\text{Å}^2$  pour la solidification complète, mais aucune valeur pour le début de la solidification n'a été rapporté. Il serait souhaitable de déterminer par RMN la solidification complète de la deuxième couche, ce qui permettrait d'affiner quantitativement l'échelle de couvertures.

## 7.6 Conclusion

La quantité du solide en première couche est approximativement constante et en excellent accord avec des mesures de diffusion de neutrons. Par contre, l'augmentation de surface, observée par des mesures de RMN antérieures, n'est pas confirmée. Le début de la solidification de la deuxième couche est observé à  $0.180 \text{ atomes}/\text{Å}^2$ , à une valeur de 6.5 % plus élevée que celle trouvée par des mesures de chaleur spécifique. Ce désaccord peut être expliqué par le fait que les échelles de couverture diffèrent de 6.9 %, dont 2.5 % correspondent à un changement d'échelle entre les expériences en chaleur spécifique et 4.3 % correspondent à un décalage systématique de l'échelle de couvertures de Greywall que nous avons mis en évidence au chapitre 6.

Pour le liquide de la deuxième couche on a observé des renforcements de la susceptibilité très importants, allant jusqu'à cinquante. On a vérifié que le système correspondant à ces renforcements est effectivement mieux décrit par une expression d'un liquide de Fermi que par celle correspondant à un solide antiferromagnétique. Ces renforcements de la susceptibilité, les plus importants jamais mesurés auparavant, sont donc une propriété du liquide. Afin de pouvoir comparer nos résultats aux théories existantes, il est nécessaire d'utiliser les masses effectives obtenues par des mesures de chaleur spécifique. Il a fallu, d'une part, modifier les densités du liquide de ces mesures en utilisant l'échelle de couvertures que nous avons déterminée et, d'autre part, extrapoler les masses effectives mesurées d'une manière importante.

On observe un bon accord avec le modèle de fermions presque localisés et aussi avec celui des paramagnons. Un test crucial entre ces deux modèles serait la mesure de la masse effective pour le système où un facteur de renforcement maximal a été mesuré par RMN; le modèle de fermions presque localisés prédit une valeur de quatorze pour la masse effective, alors que celui des paramagnons prédit une valeur de sept. Il serait donc souhaitable d'effectuer des mesures de RMN et de chaleur spécifique sur le même échantillon (pour exclure des problèmes d'échelles de couverture), dans le régime de densités de renforcements très importants, afin de déterminer la variation de la masse effective en fonction de la densité.

D'autre part, une interprétation différente de nos résultats sur le facteur de renforcement de susceptibilité est également possible. Le modèle du peuplement succesif des disques de Fermi donne lieu à des discontinuités de l'aimantation en fonction de la densité, lorsqu'un nouveau disque de Fermi commence à être peuplé. Cette discontinuité correspondrait au changement de pente observé dans nos mesures. Sur le plan théorique, on peut espérer que les calculs variationnels de fonctionnelles de la densité développés récemment sauront fournir des résultats quantitatifs appropriés au potentiel correspondant au système  $^3\text{He} / ^3\text{He} / \text{graphite}$ . De nouveau, il serait souhaitable de mesurer la chaleur spécifique dans la gamme de densité concernée, afin de déterminer si une telle discontinuité de la pente existe également pour les masses effectives.

# Chapitre 8

## Conclusions et perspectives

Un système expérimental permettant la mesure de l'aimantation par RMN de  $^{13}\text{He}$  adsorbé sur le graphite a été construit et mis au point.

On a développé un thermomètre à courbe de fusion ayant une résolution en pression de 0.3 mbar, ce qui correspond à une résolution en température de 0.01 mK. Des modifications de la technique de construction de ces thermomètres permettant d'améliorer leur sensibilité ont été suggérées. L'échelle de température déterminée par le thermomètre à courbe de fusion est en bon accord avec celles déterminées par le thermomètre à CMN et le thermomètre qui est constitué de l'échantillon à une densité correspondant à la phase incommensurable.

Le spectromètre à RMN a été optimisé afin d'atteindre un niveau de bruit minimal; il a été montré que celui-ci est principalement dû au courant de bruit du préamplificateur. Un meilleur rapport signal-bruit ne peut donc être atteint qu'en refroidissant le préamplificateur à basses températures. La sensibilité de la détection des signaux de RMN est très bonne, ce qui est indispensable pour la mesure des signaux extrêmement petits à très bas taux de couverture. Des programmes d'acquisition de données de RMN et d'analyse des raies de RMN ont été écrits, afin de pouvoir mesurer et traiter les 40000 raies de RMN mesurées au cours de l'expérience.

Des mesures de la susceptibilité nucléaire des films d' $^{13}\text{He}$  adsorbés sur le Grafoil au-dessous de la phase commensurable en première couche ont été faites. A basses densités, une quantité de 2% d'une monocouche des atomes est localisée par des sites de forte adsorption qui correspondent aux hétérogénéités du Grafoil; le nombre des atomes localisés augmente linéairement avec la densité totale, et atteint 4% d'une monocouche au début de la solidification.

La température de Fermi effective de la phase liquide a été déterminée pour toute la gamme des densités; elle décroît dans la région où le film ne comprend que du liquide et elle reste constante dans la région de coexistence liquide-solide. Par conséquent, le facteur de renforcement de la susceptibilité augmente en fonction de la densité; il atteint une valeur maximale de dix au début de la solidification. La comparaison avec des théories des liquides de Fermi exige de considérer les masses effectives déterminées par Greywall; les densités du liquide ont été corrigées en utilisant nos résultats. On trouve un bon accord entre nos mesures du renforcements de la susceptibilité et les prédictions du modèle des paramagnons et du modèle des Fermions presque localisés.

Une propriété unique des liquides bi-dimensionnels constitués par de  $^{13}\text{He}$  adsorbé est le fait que la transition du domaine sans interactions au domaine avec des interactions

fortes peut être explorée expérimentalement. Un développement intéressant des mesures décrites ici serait donc d'étudier par RMN le liquide dans cette région de transition, ce qui nécessiterait une meilleure sensibilité et donc l'utilisation d'un préamplificateur à froid. En outre, il serait nécessaire d'effectuer des mesures de la RMN et de la chaleur spécifique sur le même échantillon afin d'éviter des problèmes d'échelle de couverture. Sur le plan théorique il serait souhaitable d'étendre le domaine de validité des théories au domaine des faibles interactions.

Le début de la région de coexistence liquide-solide a été trouvé à 0.0449 atomes/Å<sup>2</sup> pour un échantillon de Grafoil; pour un échantillon de graphite on estime une valeur de 0.0434 atomes/Å<sup>2</sup>. Ceci est en accord (après une petite correction d'échelles de couvertures) avec des mesures de la chaleur spécifique, mais en désaccord avec des mesures antérieures de RMN. La solidification complète est observée à une densité qui correspond exactement à celle de la phase commensurable; par conséquent l'hypothèse de l'existence d'un solide lacunaire n'est pas en accord avec nos mesures. L'information déduite de la largeur des raies RMN est en accord qualitatif avec les conclusions précédentes; pour une analyse plus quantitative il serait nécessaire d'avoir une bobine de champ magnétique avec une meilleure homogénéité.

Des mesures de la susceptibilité nucléaire des films d'<sup>3</sup>He adsorbés sur le Grafoil dans la deuxième couche ont été faites jusqu'au début de la solidification de la deuxième couche.

La température de Fermi effective du liquide de la deuxième couche est approximativement constante jusqu'à une densité du liquide de 0.06 atomes/Å<sup>2</sup>, puis elle décroît rapidement dans un intervalle en densité très petit (0.01 atomes/Å<sup>2</sup>). Le facteur de renforcement de susceptibilité atteint une valeur de cinquante aux densités du liquide les plus élevées. Ceci peut être expliqué théoriquement soit par l'existence d'un liquide de Fermi très fortement corrélié (modèle des paramagnons, modèle du liquide presque localisé) soit par le remplissage d'un deuxième disque de Fermi. Etant donnée que les masses effectives n'ont pas été mesurées par Greywall dans ce petit intervalle où l'augmentation importante du facteur de renforcement a été observée par nos mesures, il est difficile, à présent, de tirer des conclusions définitives. Il serait particulièrement intéressant d'effectuer des mesures de RMN et de chaleur spécifique sur le même échantillon dans cette région de densité bien identifiée (0.17–0.18 atomes/Å<sup>2</sup>). Sur le plan théorique, il serait souhaitable de disposer des calculs indiquant la densité à laquelle le remplissage d'un deuxième disque de Fermi a lieu pour un substrat de graphite.

Le début de la solidification de la deuxième couche est observé à 0.180 atomes/Å<sup>2</sup>; une densité plus élevée que celle obtenue par les mesures de la chaleur spécifique. Le rapport des densités étant le même que celui trouvé dans la première série de mesures, cet effet est donc dû à un facteur d'échelle dans les taux de couverture.

Il est certainement souhaitable de poursuivre les mesures jusqu'à la solidification complète, afin de pouvoir déterminer la structure du solide dans la deuxième couche et d'observer le début de la région antiferromagnétique. Nos mesures permettent d'effectuer un recalage des échelles de couverture utilisées à Bell Laboratories et au C.R.T.B.T., ce qui conduit à une description plus précise du diagramme de phases de <sup>3</sup>He adsorbé sur le graphite.

# Annexe A

PHYSICAL REVIEW B

VOLUME 51, NUMBER 1

1 JANUARY 1995-1

## NMR measurements on $^3\text{He}$ adsorbed on Grafoil at submonolayer coverages and millikelvin temperatures

K.-D. Morhard, J. Bossy, and H. Godfrin

*Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, Centre National de la Recherche Scientifique,  
Boîte Postale 166, 38042 Grenoble CEDEX 9, France*

(Received 30 June 1994)

Precise nuclear magnetic susceptibility results on  $^3\text{He}$  adsorbed on Grafoil are presented for submonolayer coverages in the temperature range 5–600 mK. At low areal densities, the film is in a two-dimensional homogeneous liquid state. Some  $^3\text{He}$  atoms, however, are localized by the substrate heterogeneity; our quantitative measurements show that their amount increases from 2% to 4% of a monolayer thereby leading to significant corrections of the fluid-phase density. The Fermi temperature of the liquid has been determined as a function of coverage; it decreases continuously for densities larger than 0.01 atoms/Å<sup>2</sup>. At high fluid densities, the susceptibility is enhanced by one order of magnitude with respect to the ideal-gas value. At  $\rho = 0.0449$  atoms/Å<sup>2</sup>, a two-phase coexistence region begins on a Grafoil sample;  $\rho = 0.0434$  atoms/Å<sup>2</sup> is estimated for a perfect graphite surface. The coexistence is characterized by a linear increase (linear decrease) of the solid (liquid) fraction and a constant Fermi temperature of the liquid phase. Finally, at  $\rho = 0.0646$  atoms/Å<sup>2</sup>, the liquid phase disappears completely. Our results are compared to previous heat capacity and NMR measurements at submonolayer coverages.

### I. INTRODUCTION

Currently there is considerable interest in the structural and magnetic properties of  $^3\text{He}$  films adsorbed on Grafoil,<sup>1</sup> an exfoliated graphite characterized by a large specific area. Recent work has shown that  $^3\text{He}$  films adsorbed on graphite are simple experimental model systems particularly suited for theoretical calculations and computer simulations, providing canonical examples of two-dimensional (2D) Fermi liquids and quantum solids. The phase diagrams of the first and of the second layer have been studied by NMR and heat capacity techniques, leading to the observation of two-dimensional nuclear antiferromagnetism and ferromagnetism. A review of this subject is given in Refs. 2–5.

The first layer of  $^3\text{He}$  on Grafoil, which represents the simplest of the systems mentioned above, displays a variety of structural phases. At very low surface densities, all adsorbed atoms are localized by substrate heterogeneities, building up immobile patches of high-density solid. At higher surface densities, a 2D fluid phase of increasing density is observed until the system enters a fluid-solid coexistence region where the solid phase consists of the commensurate  $\sqrt{3}$  phase. The density of the pure commensurate phase is  $\rho = 0.06366$  atoms/Å<sup>2</sup>, as calculated from the graphite lattice parameter. By increasing the density still further, the system evolves from the commensurate solid to several other phases, then forms an incommensurate solid, and finally promotion of atoms into the second layer occurs.

Although, at first sight, this phase diagram seems to be rather well established, there remain several open ques-

tions, especially when analyzing data with high precision. Several physical properties depend crucially on the accuracy of the measured densities: for instance, the density dependence of the effective mass, the existence of vacancy commensurate solids, commensurability effects in multilayer films, etc. Unfortunately, since the existence of localized atoms at low densities is not detected by heat capacity measurements at low temperatures, the densities reported in heat capacity work are less accurate than usually believed. Finally, there is a serious discrepancy between heat capacity<sup>6</sup> and previous NMR data<sup>7</sup> on the onset of the coexistence region mentioned above.

It is the aim of this work to clarify the questions related to heterogeneity and to the transition to the commensurate phase as well as to investigate in detail the properties of submonolayer liquid  $^3\text{He}$ .

### II. EXPERIMENTAL DETAILS

A general discussion of the surface physics techniques developed in our laboratory to study adsorbed  $^3\text{He}$  at millikelvin temperatures can be found in a recent publication.<sup>8</sup>

The dilution refrigerator used in the present experiment reaches a minimum temperature of less than 3 mK at a flow rate of 140  $\mu\text{mol/s}$ . With the whole experimental setup mounted, this minimum temperature increases to about 3.3 mK. Contrarily to the experiment described in Ref. 8, here the experimental cell is located outside the mixing chamber as shown in Fig. 1. This construction suppresses the background signal from the  $^3\text{He}$  in the

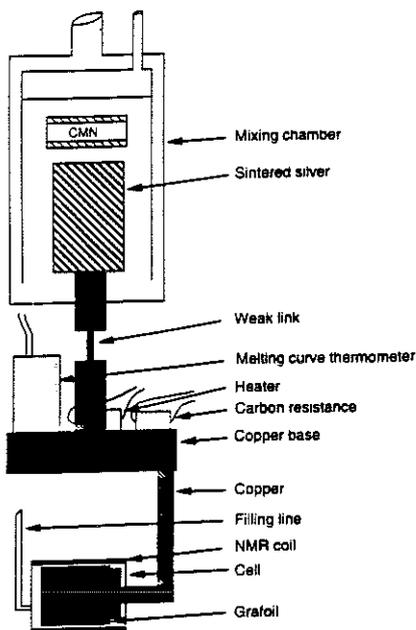


FIG. 1. Experimental setup.

mixing chamber at the cost of a reduced thermal shielding. The graphite sample consists of a stack of Grafoil<sup>1</sup> plates bonded on both sides to thin copper foils in order to ensure a good thermal contact. Therefore 26 Grafoil plates of length 2.3 cm and thickness 0.4 mm were bonded to 13 copper foils, each stack being separated from the next one by cigarette paper. The assembly is of cylindrical overall shape and fits inside a 1.5 cm diameter plastic cell. The copper foils are welded to a copper post that passes through the cell's end cover, ensuring thermal contact to a copper base by means of a copper wire. The copper base is thermally coupled to a silver heat exchanger located inside the mixing chamber through a calibrated thermal resistance with  $R_{th} = 400/T$  ( $\text{K}^2/\text{W}$ ). The copper base is mechanically attached to the body of the plastic mixing chamber by three Vespel rods. A 1.2 mm inner diameter filling capillary is connected to the cell through a 2.5 cm length, 1 mm inner diameter Araldite tube. The diameter of the capillary increases at the higher-temperature locations inside the cryostat, up to 2.5 mm at room temperature, where it is connected to the gas handling system. The NMR coil is wound on the body of the plastic sample cell. It consists of 211 turns of 0.04 mm diameter copper wire; its diameter is 1.95 cm and its length 2.4 cm. Its inductance was measured to be 0.46 mH. Electrical connections to the coaxial line are made with Niomax 065CN superconducting wire.

The temperature was determined by a  $^3\text{He}$  melting-curve thermometer located on the copper base (see Fig. 1). The design is similar to Greywall and Busch's,<sup>9</sup> but the performance was optimized to give a lower noise and an improved stability against thermal cycling. Further details will be given in a forthcoming publication. A

carbon resistance (Speer 100  $\Omega$ ), appropriately filtered against electrical interference, was also used as thermometer in the temperature range above 10 mK. It was calibrated against the  $^3\text{He}$  melting-curve thermometer at low temperatures and against a CMN thermometer placed in the mixing chamber. The temperature regulation of the copper base was ensured by the temperature controller of the capacitance bridge associated to the melting-curve thermometer, or by that of the resistance bridge, depending on the temperature range.

At the lowest temperatures, we observed a temperature gradient between the copper base and the experimental cell. This was deduced from a deviation of the susceptibility from a Curie law for an adsorbed  $^3\text{He}$  sample at a coverage  $\rho = 0.0908$  atoms/ $\text{\AA}^2$  where previous data<sup>8</sup> exclude any substantial departures from a Curie law. The measured susceptibility could be well described by a model assuming a constant heat leak. All sample temperatures given in this work have been corrected for this effect. This correction is only important at low temperatures; in particular, the minimum sample temperature in this work was 4.8 mK. The source of the heat leak could be attributed to a faulty thermal anchoring of the coaxial line of the NMR coil onto the copper base. This was verified by a complementary measurement at the coverage  $\rho_0 = 0.0908$  atoms/ $\text{\AA}^2$ ; improving the thermal ground caused a reduction of the heat leak to a nonmeasurable level.

To determine the surface area of our Grafoil sample we made an adsorption isotherm at 4.2 K (Fig. 2). Bretz *et al.*<sup>10</sup> give the adsorbed volume at perfect registry (areal density  $\rho_0 = 0.06366$  atoms/ $\text{\AA}^2$ ) and an adsorption isotherm at 4.2 K measured on the same Grafoil sample. By scaling the two isotherms, we determine the surface area of our cell to be  $A_c = 46.87$  m<sup>2</sup>. This area determination based on the commensurate phase defines the "commensurate coverage scale"<sup>8</sup> for our sample.

The samples were prepared by introducing known amounts of  $^3\text{He}$  gas into the experimental cell at 4.2 K. The cell was then heated to 8 K for several hours (typically overnight) to anneal the  $^3\text{He}$  film. Great care was

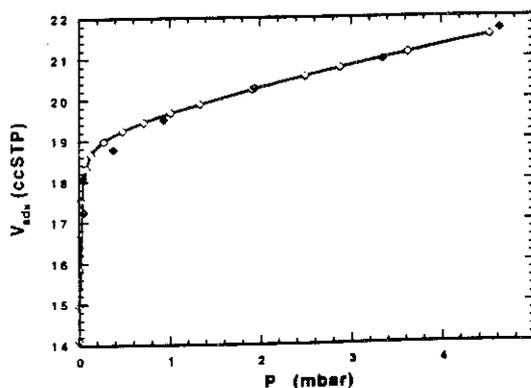


FIG. 2.  $^3\text{He}$  adsorption isotherm at 4.2 K; open squares, our data; solid squares, data of Bretz *et al.* (Ref. 10) scaled to superpose our data.

taken to lower the temperature sufficiently slowly in order to ensure thermodynamic equilibrium.

The NMR signal was measured with a continuous wave spectrometer operating at a frequency of 470.6 kHz corresponding to a magnetic field of 14.5 mT. The maximum voltages on the rf coil were limited by heating of the Grafoil sample and typically ranged from 2 to 10 mV. The absorption signal on the coil was about 1  $\mu$ V at coverages below 0.4 layers and at 5 mK. The area under the NMR absorption signal was determined by numerical integration of the NMR line. It is important to ensure that the whole NMR line is covered by the field sweep. This is done by determining the minimum field sweep leading to less than 2% loss of area for each coverage. This sweep amplitude was found to be around 8 G in all our coverages and corresponds to about 30 times the linewidth. The number of NMR lines taken for averaging ranged from 30 to 150 lines depending on temperature and was limited by the systematic error becoming larger than the statistical error at that number. It has to be stressed that the susceptibility is determined by numerically integrating the NMR signal and not by fitting a Lorentzian. Theoretically, the statistical error bars could be reduced by using the second method, but at the cost of possible systematic errors in the case of the NMR line not following a Lorentzian behavior.

### III. EXPERIMENTAL RESULTS

The nuclear susceptibility of adsorbed  $^3\text{He}$  has been measured at 12 coverages ( $\rho = 0.0055, 0.0107, 0.0207, 0.0307, 0.0358, 0.0411, 0.0467, 0.0523, 0.0571, 0.0625, \text{ and } 0.0646 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$  as well as  $\rho = 0.0908 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$  for calibration purposes) at temperatures between 4.8 and 600 mK. The nuclear susceptibility  $\chi$  is proportional to the area under the NMR absorption signal.<sup>11</sup> The Curie constant  $C_\rho$  is proportional to the number of spins, and hence to the areal density  $\rho$ . In this coverage range, it is convenient to use the Curie constant  $C_0$  at the commensurate phase density  $\rho_0$  as a reference:

$$C_\rho = C_0 \frac{\rho}{\rho_0},$$

where  $\rho_0 = 0.06366 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$ . We determine  $C_0$  by a calibration run at a coverage of  $0.0908 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$  corresponding to a solid incommensurate phase where previous experiments showed that there are no substantial departures from a Curie law.

At the low coverages studied here, the system is expected to consist of both liquid and solid phases. Due to the degeneracy of the liquid for temperatures below the Fermi temperature (found to be at about 200 mK), the measured total susceptibility is dominated by the large Curie contribution of the solid. At temperatures larger than the Fermi temperature, the spins of both phases follow a Curie law. It is therefore convenient to show the experimental results in a plot of  $\chi T/C_0$  vs  $1/T$  in order to emphasize departures from Curie behavior; this plot can be seen in Fig. 3. The high-temperature limiting value

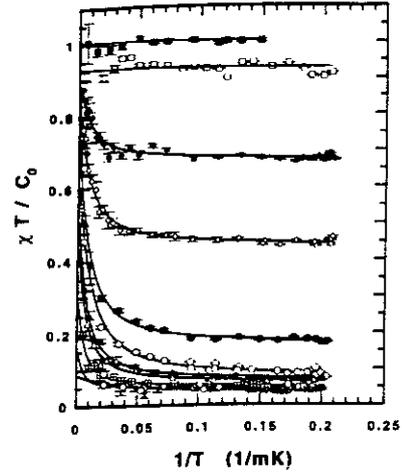


FIG. 3. Normalized susceptibility  $\chi T/C_0$  as a function of the inverse temperature;  $C_0$  is the Curie constant of the commensurate phase; crosses, 0.0055; dotted circles, 0.0107; crossed squares, 0.0207; open triangles, 0.0307; solid triangles, 0.0358; open circles, 0.0411; solid circles, 0.0467; open diamonds, 0.0523; solid diamonds, 0.0571; open squares, 0.0625; and solid squares, 0.0646 atoms/ $\text{\AA}^2$ .

of  $\chi T/C_0$  is proportional to the amount of adsorbed helium. At temperatures below about 40 mK, a strongly coverage dependent Curie contribution, corresponding to the solid phase, is found. The liquid contribution is also clearly seen in Fig. 3: It corresponds to the rapid decrease of  $\chi T/C_0$  as a function of  $1/T$  due to the onset of degeneracy. The error bars correspond to the statistical error determined from the measurement of several NMR lines. The  $1\sigma$  error bars represent adequately the experimental uncertainty for small signals, as observed at low coverages or high temperatures. On the other hand, the uncertainty of large signals, corresponding to high coverages and low temperatures, is clearly dominated by systematic errors; in this case the dispersion of the data (see Fig. 3) is mainly due to low-frequency instabilities of the NMR base line. The magnitude of the systematic errors is obviously deduced from the scatter in the data.

The data for areal densities below  $0.0625 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$  were fitted by the expression

$$\frac{\chi T}{C_0} = n_{\text{solid}} + \frac{n_{\text{liquid}} T}{T_F^{**}} (1 - e^{-T_F^{**}/T}),$$

where  $n_{\text{solid}} = N_{\text{solid}}/N_0$  and  $n_{\text{liquid}} = N_{\text{liquid}}/N_0$ ;  $N_{\text{solid}}$ ,  $N_{\text{liquid}}$ , and  $N_0$  are the number of atoms in the solid, liquid, and the pure commensurate phases, respectively. The expression given above corresponds to  $N_{\text{solid}}$  atoms following a Curie law and therefore being in a solid phase and  $N_{\text{liquid}}$  atoms in a liquid phase with an effective Fermi temperature  $T_F^{**}$ .<sup>7,12</sup> Since  $n_{\text{solid}} + n_{\text{liquid}} = N/N_0 = \rho/\rho_0$ , there are only two adjustable parameters  $n_{\text{solid}}$  and  $T_F^{**}$ . This very simple formula provides a good fit of the experimental data in all the temperature and coverage

range investigated here.

The coverage dependence of the solid part of the  $^3\text{He}$  film,  $n_{\text{solid}}$ , is shown in Fig. 4. At low densities, there is a small amount of solid growing linearly from 2% of a monolayer to about 4% at  $0.04 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$ . Between  $0.0467 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$  and  $0.0571 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$ , the amount of solid increases linearly with coverage, indicating a two-phase coexistence between solid and liquid. A linear extrapolation to the diagonal line where  $n_{\text{solid}} = N/N_0$  (corresponding to all of the atoms being in the solid phase) gives an areal density of  $0.0641 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$ , thereby confirming the assumption that the solid exists in the commensurate phase. The onset of the coexistence region can be characterized, as will be discussed later on, either by an extrapolation to  $n_{\text{solid}} = 0$  (point *a* at  $0.0434 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$ ) or by the intercept of the two straight lines shown in Fig. 4 (point *b* at  $0.0449 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$ ). At a density of  $0.0646 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$ , the film has completely solidified and  $n_{\text{solid}} = 1$ .

The coverage dependence of the Fermi temperature of the liquid fraction is shown in Fig. 5. The Fermi temperature of an ideal 2D Fermi gas is given by the expression

$$T_F = \frac{\pi \hbar^2 N}{k_B m_3 A},$$

where  $N$  is the number of atoms and  $A$  is the total surface area. Using the numerical values of the physical constants, this gives

$$T_F [\text{K}] = 50.53\rho [\text{atoms}/\text{\AA}^2].$$

This function is shown by the solid line in Fig. 5. Note that this line has been shifted in coverage by 2% of a

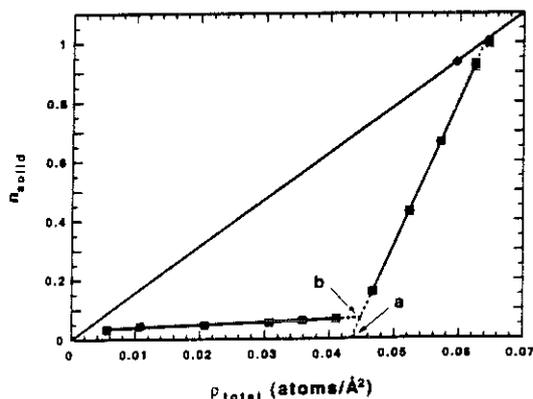


FIG. 4. Density dependence of the solid fraction  $n_{\text{solid}} = N_{\text{solid}}/N_0$  where  $N_{\text{solid}}$  is the number of atoms in solid phases and  $N_0$  that at the commensurate phase; the diagonal line corresponds to  $n_{\text{solid}} = \rho/\rho_0$  where  $\rho_0$  is the commensurate phase density; the dotted lines are extrapolations of the linear region at low densities and the linear coexistence region, respectively; the solid diamond corresponds to the value expected for a solid containing 6% of vacancies as proposed by Greywall and Busch (Ref. 6); points *a* and *b* denote the onset of the commensurate phase formation for a perfect graphite and a Grafoil sample, respectively.

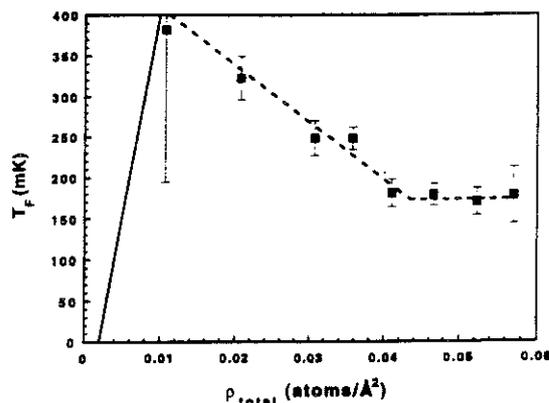


FIG. 5. Fermi temperature  $T_F^*$  as function of the areal density; the solid line corresponds to ideal-gas behavior, shifted to take into account the heterogeneity effects (see text); the dotted line is a guide to the eye.

monolayer, thereby taking into account the  $^3\text{He}$  atoms localized at surface heterogeneities. Due to the extremely small susceptibility signal at the lowest coverage, it was not possible to determine the Fermi temperature of the film at this coverage with precision; values between 50 and 400 mK are consistent with our data. For the lowest two coverages, the experimental data are in reasonable agreement with the Fermi gas expression. At higher coverages, the Fermi temperature is found to decrease substantially and then to reach a plateau for coverages in the solid-liquid coexistence region.

In Fig. 6 a plot of the total susceptibility as a function of the inverse temperature is shown for  $\rho = 0.0523 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$ , a selected coverage where the solid and liquid fractions are comparable. Also shown is the susceptibility of the Fermi liquid only; the solid part of the signal

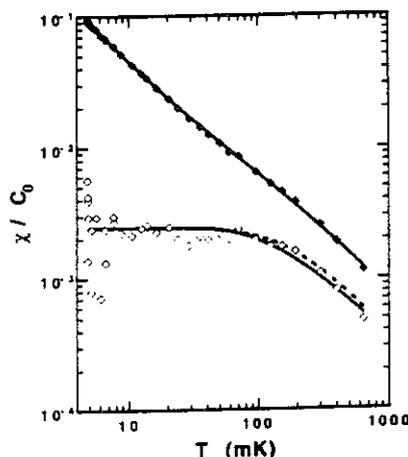


FIG. 6.  $\chi/C_0$  as a function of the temperature for  $\rho = 0.0523 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$ ; solid diamonds, total susceptibility; open diamonds, susceptibility of the Fermi liquid (the solid contribution has been subtracted); fits as explained in the text.

has been subtracted. For high temperatures the signal of the liquid decreases following a Curie law, whereas at low temperatures the susceptibility reaches a limiting value. The fit to the liquid susceptibility (corresponding to the solid line in Fig. 6) was done with the equation

$$\frac{\chi}{C_0} = \frac{1}{T_F^{**}} (1 - e^{-T_F^{**}/T}),$$

whereas the fit corresponding to the hatched line was done with the expression proposed by Dyugaev:<sup>13</sup>

$$\frac{\chi}{C_0} = \frac{1}{\sqrt{T^2 + T_F^{**2}}}.$$

The difference in the Fermi temperatures determined by the fits with both formulas was inside the error bars for all coverages. In both cases there was only one fit parameter  $T_F^{**}$ . It should be pointed out that the Fermi temperatures obtained using only the data in the degenerate regime coincide with those using the full temperature dependence. Within our present accuracy the values of the Fermi temperatures deduced from the low-temperature limiting susceptibility are the same as the characteristic degeneracy temperatures; note, however, that some difference between these two characteristic temperatures has been observed in second layer fluids in preplated systems;<sup>5</sup> we also have evidence for the same behavior in the second layer of pure  $^3\text{He}$  films. Clearly, this subject deserves further investigation.

#### IV. DISCUSSION

The small Curie-like signal at surface densities below the solid-liquid coexistence region is due to atoms localized by heterogeneities in the Grafoil substrate. We find for the amount of this solid a value of  $n_{\text{solid}} = 0.0324$  at the lowest density. This value increases linearly to 0.0628, at a density just below the onset of the coexistence region. Early heat capacity measurements on low-density samples<sup>10</sup> already showed the existence of localized atoms, forming patches at large binding energy sites. A theoretical approach is due to Elgin *et al.*,<sup>14</sup> who proposed a model based on a distribution of binding energies associated to defects of the graphite surface (corners where graphite platelets join). A characteristic coverage of 0.0023 atoms/ $\text{\AA}^2$  was found.<sup>15</sup> This was verified by pulsed NMR measurements,<sup>16</sup> deducing from  $T_2$  data that 0.005 of a monolayer are strongly localized, whereas 0.015 of a monolayer are immobile. Note that this measurement is performed at the relatively high temperature of 1.2 K. Measurements by cw NMR techniques at lower temperatures<sup>7</sup> indicate that the solid fraction corresponds to 0.0022 atoms/ $\text{\AA}^2$ . Our data agree with the magnitude reported for this effect; in addition they clearly show an increase of the solid fraction as a function of total coverage. This behavior is precisely that expected for a distribution of binding energies, as proposed by Elgin and Goodstein.<sup>14</sup>

It must be pointed out that a substantial fraction of a

monolayer (about 4%) may be affected by heterogeneity; this figure is not negligible when analyzing adsorbed  $^3\text{He}$  data.

The beginning of the formation of commensurate solid is determined by the present measurement to be at the point *b* of Fig. 4 (0.0449 atoms/ $\text{\AA}^2$ ). Note that the effect of heterogeneities is to overestimate the areal density at the onset. Its value for a perfect graphite substrate can be estimated from point *a* in Fig. 4 to 0.0434 atoms/ $\text{\AA}^2$ . Our onset value at the point *b* is slightly higher than that given by heat capacity measurements<sup>6</sup> where an onset value of 0.043 atoms/ $\text{\AA}^2$  is found. The 4% discrepancy might be considered as being within the combined error bars in the absolute coverage scale; see, however, the discussion on this point given below. A more serious discrepancy is found when comparing these figures to that found in previous low-temperature NMR measurements,<sup>7</sup> where the liquid-commensurate phase coexistence is reported to start at a density as low as 0.032 atoms/ $\text{\AA}^2$ . Note that completion of the commensurate phase is found in all experiments at the expected coverage (around 0.06366 atoms/ $\text{\AA}^2$ ). Therefore, the discrepancy can not be attributed to a proportional shift of the coverage scales. The most likely explanation is that proposed by Greywall and Busch,<sup>6</sup> stating that inadequate annealing in the experiment reported in Ref. 7 could have caused an inhomogeneous distribution of the adsorbed  $^3\text{He}$  atoms. Dramatic annealing effects on the heat capacity have been reported in the literature,<sup>6,10</sup> but, to our knowledge, no systematic investigation has been performed. The effects of annealing of submonolayer films is still a rather open problem.

The completion of the commensurate phase is a particularly interesting problem. It has been pointed out by Greywall and Busch<sup>6</sup> that total solidification may occur at coverages slightly lower than that corresponding to perfect registry. Heat capacity data suggest that an unusual solid containing as much as 6% of vacancies could be formed, this amount being reduced as perfect registry is approached. Our data do not support this contention. As seen in Fig. 4, we observe that a total solidification of the  $^3\text{He}$  film is achieved at a coverage 0.0646 atoms/ $\text{\AA}^2$ , practically coincident with the pure commensurate coverage. In Fig. 4 the point where full solidification into a vacancy solid was expected from heat capacity data is indicated. The discrepancy is obvious. It should be pointed out, however, that an alternative explanation for the heat capacity was already proposed by Greywall and Busch.<sup>6</sup> Assuming a different coverage scale, consisting basically in determining the commensurate phase coverage as that where the amount of liquid extrapolates to zero (instead of that corresponding to the actual minimum of the heat capacity isotherms), Greywall and Busch conclude that heterogeneity may explain the liquidlike signal now found above perfect commensurability. Note that the heterogeneity in this case corresponds to regions of less attractive potential. Under this assumption Greywall and Busch's original coverage scale is modified by about 4%. This corrected coverage scale is in agreement with the one used in the present work: The onset of the coexistence is now found at exactly the same coverage, and

excellent agreement is found for the total solidification coverage. In addition, in our work the commensurate coverage is defined as that having the highest melting temperature since our coverage scale is based on that obtained by Bretz *et al.*<sup>10</sup> We find therefore that complete solidification coincides with the highest melting temperature. It would be surprising that a vacancy solid phase would have a higher melting temperature than the completed commensurate phase. From this we deduce that the most likely explanation for the anomalous behavior observed by Greywall and Busch is a progressive solidification of fluid at heterogeneous sites above the commensurate phase coverage. The existence of a vacancy solid seems therefore questionable. A measurement of the heat capacity in a large temperature range (including melting), and also of the magnetic susceptibility, should be performed on the same sample to solve this problem unambiguously. Supporting the preceding conclusions is the remarkable absence of any substantial deviations of the susceptibility from a Curie law for all the coverages investigated here (Curie-Weiss temperatures are found to be smaller than 0.2 mK). That is, we find no evidence for the vacancy induced ferromagnetism predicted by Guyer<sup>17</sup> which could be expected if the solid contained 6% of vacancies.

The properties of two-dimensional liquid  $^3\text{He}$  films have attracted some interest in recent years. Heat capacity measurements<sup>10,18</sup> allowed the observation of Fermi-liquid behavior in submonolayer  $^3\text{He}$  films. Fermi temperatures on the order of 200 mK are obtained from these measurements. More accurate values were obtained by recent NMR measurements,<sup>7</sup> the first ones to investigate the fully degenerate regime. Values of the Fermi temperature in the range 150–300 mK were found. The precision of our data, however, allows one to infer the coverage dependence of the effective Fermi temperature  $T_F^*$  of submonolayer  $^3\text{He}$  films (see Fig. 5). For coverages larger than 0.01 atoms/Å<sup>2</sup>,  $T_F^*$  decreases progressively, a behavior similar to that observed in bulk liquid  $^3\text{He}$  as the pressure (and hence the density) is increased. A similar feature is observed qualitatively in the heat capacity results.<sup>10</sup> Our data display another feature compared to previous NMR results. As seen in Fig. 5,  $T_F^*$  remains constant in the liquid-solid coexistence regime, as could be expected from a simple coexistence model with a commensurate solid of constant density which is imposed by the substrate.

The Fermi-liquid properties of submonolayer  $^3\text{He}$  can be studied in a large density range, up to 0.0435 atoms/Å<sup>2</sup>. Therefore they are of particular interest from the point of view of the theory of Fermi liquids. The susceptibility enhancement, defined as the susceptibility of an interacting Fermi liquid at zero temperature  $\chi(0)$  divided by the ideal Fermi-gas value  $\chi_0(0)$ , is given by

$$\frac{\chi(0)}{\chi_0(0)} = \frac{T_F}{T_F^*}.$$

A plot of this enhancement factor as a function of the density of the liquid is shown in Fig. 7 for total surface densities below the onset of the coexistence region. Note

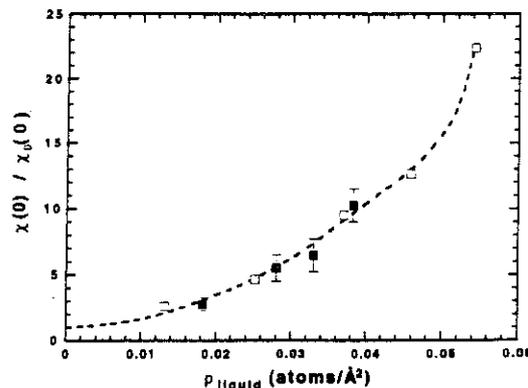


FIG. 7. Susceptibility enhancement as a function of the liquid density for the first and second layers respectively; solid diamonds, first layer (this work); open diamonds, second layer with a first layer of  $^4\text{He}$  [Lusher *et al.* (Ref. 19)]; the hatched line serves as a guide to the eye.

that the contribution of the localized atoms has been subtracted from the total density to obtain the true liquid density; the microscopic density of the solid was taken to be 0.11 atoms/Å<sup>2</sup> (that of a compressed monolayer), in order to calculate the area available to the liquid. It is interesting to compare these results to those obtained by Lusher and co-workers on a related system:<sup>19</sup> fluid  $^3\text{He}$  on top of a monolayer of  $^4\text{He}$  on a graphite substrate. In this case, the adsorption potential is much weaker with a binding energy of a few tens of Kelvin, compared to 136 K for bare graphite. In addition, the corrugation of the substrate potential is strongly reduced. Comparing both systems should, *a priori*, provide a test of the influence of the delocalization along the direction normal to the adsorption plane. A comparison of our submonolayer data with those on the preplated system is given in Fig. 7. The coverage range that can be explored on the preplated system is larger than that available on bare graphite, since, on the latter, the commensurate phase is more stable than a high-density fluid. Nevertheless, at the maximum fluid density investigated here, enhancement factors as high as 10 were observed. It is remarkable that, within error bars of similar magnitude, the enhancement factors measured for both systems have the same dependence on the liquid density.

The enhancement factor is related to the Landau parameter  $F_0^*$  by the equation

$$\frac{\chi(0)}{\chi_0(0)} = \frac{m^*}{m} \frac{1}{1 + F_0^*}.$$

The Landau parameter can be determined by taking effective mass values from heat capacity measurements. The effective mass at submonolayer coverages has been determined by McLean<sup>20</sup> and more recently by Greywall and Busch<sup>21</sup> (Fig. 8) as a function of the total density. According to our data, however, the density of the liquid is significantly lower than the total density due to the amount of localized  $^3\text{He}$ . Correcting for this effect leads

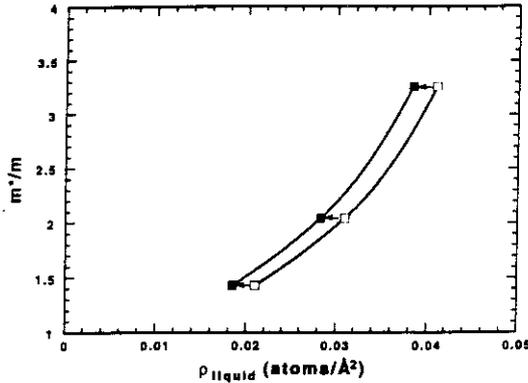


FIG. 8. Effective mass of the first layer as a function of first layer liquid density determined using the heat capacity data by Greywall and Busch (Ref. 21); open squares, first layer  $^3\text{He}$  before correction for the localized atoms (see text); solid squares, first layer  $^3\text{He}$  after correction.

to a substantial modification of the coverage dependence of the effective mass of the submonolayer liquid as indicated in Fig. 8.

The Landau parameter  $F_0^a$  deduced from the equation above, where the effective mass is taken from Fig. 8 (using the corrected coverage scale), is shown in Fig. 9 plotted as a function of the inverse of the effective mass. Also shown in Fig. 9 are the values from  $^3\text{He}$  in the second layer<sup>19</sup> as well as bulk  $^3\text{He}$  data.<sup>22</sup> Note that the second layer data correspond to  $^3\text{He}$  on top of a  $^4\text{He}$  monolayer

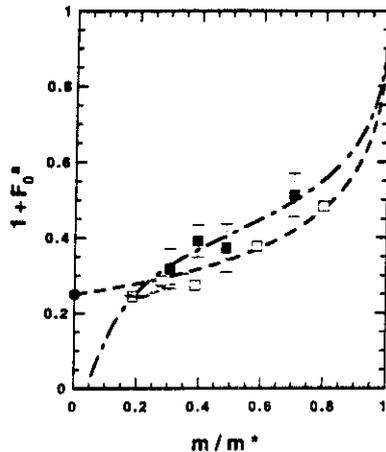


FIG. 9. Landau parameter  $1 + F_0^a$  as a function of  $m/m^*$ ; solid squares, first layer  $^3\text{He}$  [susceptibility data, this work; heat capacity, Greywall and Busch (Ref. 21)]; open squares, susceptibility data on second layer  $^3\text{He}$  with a first layer of  $^4\text{He}$  [Lusher *et al.* (Ref. 19)] and heat capacity data on pure  $^3\text{He}$  films (Ref. 21) (for the analysis a similar behavior for both systems has to be assumed); crosses, bulk  $^3\text{He}$  (Ref. 22); hatched line, almost localized fermion theory (see text); point-hatched line, paramagnon model (see text); solid circle, value from "spin-glass" model by Castaing (Ref. 30).

that were analyzed using the values of the effective mass reported by Greywall and Busch for a different system (pure  $^3\text{He}$  films<sup>23</sup>). In addition, the second layer density is not known accurately for the latter system, since the compression of the first layer as measured by neutron scattering<sup>24</sup> is not taken into account. In fact, this effect should shift the values of the effective mass to lower densities except very close to second layer promotion. It is difficult to evaluate precisely the systematic errors for the case of the second layer data of Ref. 7. As seen on Fig. 9, there is some systematic tendency for the second layer data to stay below our first layer results.

It is interesting to study from a theoretical point of view these two-dimensional systems which exist as Fermi fluids in a much wider range of densities than the bulk system. Presently there are several microscopic theories trying to explain Fermi-liquid behavior in liquid  $^3\text{He}$ . The almost localized fermion model<sup>25,26</sup> treats liquid  $^3\text{He}$  as almost localized and explains the susceptibility enhancement by an according enhancement of the effective mass. This model leads to the expressions  $m^*/m = (1 - I^2)^{-1}$  and  $F_0^a = -p[1 - (1 + I)^{-2}]$  where  $I$  is the normalized on-site interaction potential  $I = U/U_c$  and  $p$  is a quantity that depends mainly on the density of states and can be taken to be approximately one for a symmetric band.<sup>26</sup> Taking  $p = 1$  and substituting for the normalized interaction potential  $I$ , one obtains the expression

$$1 + F_0^a = \frac{1}{(1 + \sqrt{1 - m/m^*})^2},$$

which is shown by the hatched line in Fig. 9.

The paramagnon model<sup>27,28</sup> explains the susceptibility enhancement as being due to spin fluctuations and the high-density system as being almost ferromagnetic. The calculation in two dimensions leads to the expressions<sup>28</sup>  $\chi/\chi_0 = (1 - \bar{I})^{-1}$  and  $m^*/m = 1 + \frac{9}{2}\bar{I} \ln\{1 + \bar{p}_1^2 \bar{I} [12(1 - \bar{I})]^{-1}\}$ , where  $\bar{I}$  is the normalized interaction potential and  $\bar{p}_1 = p_1/p_F$  is the momentum cutoff value which is of order 1.<sup>28</sup> Again taking  $\bar{p}_1 = 1$  and substituting for the normalized interaction potential  $\bar{I}$ , one obtains the expression

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

from which the dependence of the Landau parameter  $F_0^a$  on the inverse of the effective mass can be deduced easily. This dependence is shown by the point-hatched line in Fig. 9. Note that we are considering here the crudest approximation of both theories which, in addition, are not supposed to apply to the whole density range. The paramagnon model is only applicable for large effective masses, since only the most divergent terms in  $(1 - \bar{I})^{-1}$  have been considered in the calculation.<sup>29</sup> It is not known presently whether the necessary corrections for smaller interactions are important. A similar restriction holds for the almost localized fermion theory which in addition is only valid for a large number of next neighbor atoms.<sup>26</sup> Therefore, its predictions are to be taken with care when

comparing to 2D data. The theories are therefore valid for roughly  $m^*/m > 3$ , whereas the range accessible to experiment is  $m^*/m < 5$  and  $\chi/\chi_0 < 20$ . It is therefore rather surprising that both theories describe particularly well the experimental data in a large density range. It should be noted that the trend of our data is coherent with the value  $1 + F_0^a = 0.25$  given by the phenomenological "spin-glass" model by Castaing<sup>30</sup> which is valid in the limit of large effective masses. As seen in Fig. 9, all data on 2D and 3D  $^3\text{He}$  correspond to a high-density regime where the Landau parameter  $F_0^a$  is not strongly dependent on the effective mass. In such a regime characterized by strong correlations it is not obvious that a Fermi-liquid theory does indeed apply. Recent microscopic calculations by Bouchaud and Lhuillier<sup>31</sup> suggest a strong dimerization of the  $^3\text{He}$  atoms and the disappearance of the Fermi surface. In order to investigate the crossover (or eventually the transition?) from the correlated regime to the weakly interacting Fermi fluid, it would be interesting to extend the measurements to lower densities. This would require a substantial improvement of the experimental techniques.

It has been implicitly assumed in this article that the fluid phase is homogeneous. Although recent theoretical calculations<sup>32</sup> suggest that the fluid may be unstable at low temperatures, giving rise to a liquid-gas coexistence, experimental evidence favors a homogeneous system at submonolayer coverages; phase separation, however, is not ruled out by the experiments at multilayer coverages.<sup>33</sup>

## V. CONCLUSION

Although the ground state of adsorbed  $^3\text{He}$  at low submonolayer coverages is a liquid, heterogeneity leads to the localization of a fraction of the adsorbed atoms, identified by their large NMR susceptibility at low temperatures. A linear coverage dependence of the localized fraction has been experimentally determined; it agrees qualitatively with a model based on a distribution of binding energies.<sup>14</sup>

The onset of commensurate solid-liquid coexistence has been observed at a coverage  $0.0449$  atoms/ $\text{\AA}^2$ . This border of the  $^3\text{He}$ /graphite phase diagram agrees well with

heat capacity data,<sup>6</sup> but disagrees with previous NMR measurements.<sup>7</sup> Corrections for heterogeneity lead to estimate the liquid density at this coverage to be  $0.0434$  atoms/ $\text{\AA}^2$  which would be the onset value for a perfect graphite substrate. This result should be helpful for establishing precise quantum Monte Carlo calculations. A small shift of Greywall and Busch's coverage scale, in fact already considered as an alternative in the analysis of the heat capacity measurements, leads to a simple and consistent picture of the submonolayer structural phase diagram. The existence of a vacancy solid in a large density range is ruled out by our data.

The nuclear susceptibility of submonolayer liquid  $^3\text{He}$  is rather well described by phenomenological expressions for two-dimensional Fermi fluids. The effective Fermi temperatures could be determined in a large density range, including within the commensurate solid-liquid coexistence regime. The susceptibility enhancement factor is found to be very similar, at the same density, to that determined for liquid  $^3\text{He}$  adsorbed on a  $^4\text{He}$  preplated graphite sample,<sup>19</sup> suggesting that substrate corrugation and the strength of the adsorption potential do not affect strongly the Fermi-liquid behavior. A similar conclusion is reached when discussing the Landau parameter  $F_0^a$  determined in both systems. The comparison requires the effective mass values determined by heat capacity;<sup>21</sup> we found it necessary to correct their presently known coverage dependence using our data for the submonolayer films.

A comparison of our experimental results on the first layer liquid to the almost localized fermion model shows a good agreement as already found by Lusher *et al.*<sup>19</sup> for the second layer. However, we show that a similar agreement can be claimed with the paramagnon model and also with the spin-glass model. It is surprising that theories with very different physical basis yield essentially the same results. We hope that the present results will motivate the extension to the low-density range of the calculations performed a decade ago for bulk  $^3\text{He}$ .

From the experimental point of view, it would be desirable to perform measurements on liquid  $^3\text{He}$  systems at lower densities. This would require higher sensitivity in the NMR detection, but also a simultaneous determination of the heat capacity on the same sample, to suppress coverage scale errors.

<sup>1</sup> Grafoil is manufactured by Union Carbide.

<sup>2</sup> H. Godfrin, R.E. Rapp, and H.J. Lauter, *Physica B* **169**, 177 (1991).

<sup>3</sup> D.S. Greywall, *Physica B* **197**, 1 (1994).

<sup>4</sup> H. Godfrin and R.E. Rapp, *Adv. Phys.* (to be published).

<sup>5</sup> J. Saunders, C.P. Lusher, and B.P. Cowan, in *Excitations in Two-Dimensional and Three-Dimensional Quantum Fluids*, edited by A.G.F. Wyatt and H. Lauter (Plenum Press, New York, 1991).

<sup>6</sup> D.S. Greywall and P.A. Busch, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 2788 (1990).

<sup>7</sup> J. Saunders, C.P. Lusher, and B.P. Cowan, *Phys. Rev. Lett.*

**64**, 2523 (1990).

<sup>8</sup> R.E. Rapp and H. Godfrin, *Phys. Rev. B* **47**, 12004 (1993).

<sup>9</sup> D.S. Greywall and P.A. Busch, *J. Low Temp. Phys.* **46**, 451 (1981).

<sup>10</sup> M. Bretz, J.G. Dash, D.C. Hickernell, E.O. McLean, and O.E. Vilches, *Phys. Rev. A* **8**, 1589 (1973).

<sup>11</sup> A. Abragam, *Principles of Nuclear Magnetism* (Oxford University Press, New York, 1961).

<sup>12</sup> Extensive and detailed results exist for mixture films: See D.T. Sprague, N. Alikacem, P.A. Sheldon, and R.B. Hallock, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 384 (1994), and references therein.

- <sup>13</sup> A.M. Dyugaev, *Sov. Sci. Rev. A Phys.* **14**, 1 (1990).
- <sup>14</sup> R.L. Elgin, J.M. Greif, and D.L. Goodstein, *Phys. Rev. Lett.* **41**, 1723 (1978); R.L. Elgin and D.L. Goodstein, *Phys. Rev. A* **9**, 2657 (1974).
- <sup>15</sup> M.W. Cole, D.R. Frankl, and D.L. Goodstein, *Rev. Mod. Phys.* **53**, 199 (1981).
- <sup>16</sup> B.P. Cowan and A.J. Kent, *Phys. Lett.* **106A**, 54 (1984).
- <sup>17</sup> R.A. Guyer, *Phys. Rev. Lett.* **39**, 1091 (1977).
- <sup>18</sup> D.C. Hickernell, E.O. McLean, and O.E. Vilches, *Phys. Rev. Lett.* **28**, 789 (1972).
- <sup>19</sup> C.P. Lusher, B.P. Cowan, and J. Saunders, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2497 (1991).
- <sup>20</sup> E.O. McLean, Ph.D. thesis, University of Washington, 1972.
- <sup>21</sup> D.S. Greywall and P.A. Busch, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 64 (1990).
- <sup>22</sup> Tabulated values in D. Vollhardt and P. Wölfle, *The Superfluid Phases of <sup>3</sup>He* (Taylor & Francis, London, 1990), p. 31.
- <sup>23</sup> D.S. Greywall, *Phys. Rev. B* **41**, 1842 (1990).
- <sup>24</sup> H.J. Lauter, H. Godfrin, V.L.P. Frank, and H.P. Schildberg, *Physica B* **165&166**, 597 (1980).
- <sup>25</sup> W.F. Brinkmann and T.M. Rice, *Phys. Rev. B* **2**, 4302 (1970); P.W. Anderson and W.F. Brinkmann, in *The Physics of Liquid and Solid Helium*, edited by K.H. Bennemann and J.B. Ketterson (Wiley, New York, 1978).
- <sup>26</sup> D. Vollhardt, *Rev. Mod. Phys.* **56**, 99 (1984).
- <sup>27</sup> S. Doniach and S. Engelsberg, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 433 (1966); N.F. Berk and J.R. Schrieffer, *ibid.* **17**, 750 (1966); M.T. Béal-Monod, S.K. Ma, and D.R. Fredkin, *ibid.* **20**, 929 (1968).
- <sup>28</sup> M.T. Béal-Monod and A. Theumann, in *Ordering in Two Dimensions*, edited by S.K. Sinha (Elsevier, New York, 1980).
- <sup>29</sup> M.T. Béal-Monod (private communication).
- <sup>30</sup> B. Castaing, *J. Phys. (France) Lett.* **41**, L333 (1980).
- <sup>31</sup> J.P. Bouchaud and C. Lhuillier, *Z. Phys. B* **75**, 283 (1989).
- <sup>32</sup> B. Brami, F. Joly, and C. Lhuillier, *J. Low Temp. Phys.* **94**, 63 (1994).
- <sup>33</sup> H. Godfrin, R.E. Rapp, K.-D. Morhard, J. Bossy, and Ch. Bäuerle, *Phys. Rev. B* **49**, 12377 (1994).

# Annexe B

(à apparaître dans l'édition spéciale 'Magnetic resonance of the noble gases' de Appl. Magn. Res.)

## NMR of Adsorbed $^3\text{He}$ : Surface Physics at Millikelvin Temperatures

K.-D. Morhard, J. Bossy, Ch. Bäuerle, J.P. Faure and H. Godfrin  
*Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, Centre National de la Recherche Scientifique,*  
*BP 166, 38042 Grenoble CEDEX 9, France*  
(November 4, 1994)

NMR techniques are used for the study of two-dimensional quantum systems, represented by  $^3\text{He}$  physically adsorbed on Grafoil, an exfoliated form of graphite. A description of our high sensitivity and very low power continuous wave spectrometer yielding very good signal to noise ratios at millikelvin temperatures is given. The evolution of line shapes and relaxation times with areal density is discussed. Some results of NMR measurements on  $^3\text{He}$  films adsorbed on Grafoil are presented in the last section: influence of substrate heterogeneities, Fermi liquid properties, study of phase transitions in two dimensions and magnetism in solid phases.

### I. INTRODUCTION

Currently there is much interest in the study of two-dimensional (2D) quantum fluids and solids [1-3]; that is systems where the kinetic energy at low temperatures is determined by quantum effects and not by the temperature. The  $^3\text{He}$  atom is a natural candidate for these studies, since, due to its small mass, the zero point energy is especially high. Its magnitude can be estimated from the uncertainty principle as  $E_0 = h^2/8mV^{2/3}$  where  $V$  is the volume available per particle. The kinetic energy  $E_0$  is found to be on the order of 10 K as compared to the experimental temperatures ranging from 0.001 to 1 K. Due to the fermionic character of the  $^3\text{He}$  atom, quantum degeneracy effects are to be expected (and found) at low temperatures. In addition, the fact that the  $^3\text{He}$  atom has a nuclear spin of  $1/2$  and a large magnetic moment makes it accessible to NMR experiments. The 2D system is obtained by physical adsorption of  $^3\text{He}$  on a solid substrate placed at low temperatures. The choice of the substrate is crucial, since it has to meet several important requirements:

- It has to have a large surface area, in order to obtain reasonable signals, in 2D systems the number of atoms is several orders of magnitude smaller than in usual 3D systems.
- The adsorption potential has to be very homogeneous, in order to minimize the influence of the substrate on the 2D system.
- The adsorbed contaminants (air, water, oil...) have to be easily removable, in order to obtain pure  $^3\text{He}$  films.
- The thermal properties have to be suitable, in order to allow the substrate and the  $^3\text{He}$  films to be cooled down to milliKelvin temperatures.

It has turned out that Grafoil [4], an exfoliated form of graphite, is a very good choice: it has a large surface area of about  $20 \text{ m}^2/\text{g}$ ; the adsorption potential is rather homogeneous for the planes preferentially exposed for adsorption with an adsorption potential of 136 K and a corrugation of this potential of only about 40 K; it has good cleaning properties and the samples can be cooled down to milliKelvin temperatures despite of the poor thermal conductivity when using appropriate techniques [5].

At low temperatures  $^3\text{He}$  atoms adsorbed on Grafoil form films which are homogeneously distributed over the whole sample surface. The formation of distinct layers can be observed by different techniques (adsorption isotherms, heat capacity and NMR); in particular, a "monolayer" can be defined as the point where the first layer is complete and promotion of atoms into the second layer starts. The physical quantity which characterizes two-dimensional films is the areal density  $\rho$  measured in atoms per unit area. The coverage, defined as fraction of the monolayer, is an equivalent quantity, if the areal density of the monolayer is determined. In the case of  $^3\text{He}$  on Grafoil, this corresponds to about  $0.11 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$ .

There exist mainly three experimental methods for the study of  $^3\text{He}$  films adsorbed on Grafoil: heat capacity, neutron scattering and NMR measurements. The heat capacity is particularly sensitive for the detection of liquid phases and of solid phases with large magnetic interactions, whereas NMR is rather sensitive to solid phases regardless of the exchange constant; liquid phases can also be studied, but in less favorable conditions. Neutron scattering

measurements provide a direct measurement of the lattice constant of solid phases. Therefore these three methods provide complementary information for the study of 2D  $^3\text{He}$ .

## II. NMR TECHNIQUES

### A. Spectrometer

NMR measurements at very low temperatures can be performed by pulsed or cw techniques. The latter has been preferred for several reasons: spin-lattice relaxation times in adsorbed  $^3\text{He}$  are short, the lines are substantially affected by substrate induced inhomogeneous broadening, the line shape is not a simple function of the field, etc. The cw technique yields high quality NMR lines that can be quantitatively analyzed. We have therefore limited the use of pulsed NMR to the determination of intrinsic relaxation times.

The NMR signal is measured with a high sensitivity and very low power continuous wave spectrometer working as a rf bridge Q-meter which is shown in Fig. 1. A PAR 5302 lock-in amplifier sends a signal to the current source which controls the field sweep of the magnetic field coils. It has to be noted that, due to the low temperatures and to the high sensitivity of the spectrometer, the signal to noise ratio is large enough that a simple magnetic field sweep without modulation is sufficient for very precise measurements. The rf output of the lock-in amplifier oscillator is sent to a splitter. One part of the rf passes through a calibrated attenuator (0.2 %) which serves as an amplitude reference for the absorption signal; then it is fed into the injection circuit from where it is sent to one input of a differential preamplifier.

The injection circuit is shown in Fig. 3; a constant rf current source is obtained by means of a capacitance of 0.2 pF in series with the NMR coil. This NMR coil consists of 211 turns of 0.04 mm diameter copper wire wound on the plastic sample cell of 1.95 cm diameter and 2.4 cm length. Its inductance was measured to be 0.46 mH. The parallel capacitance of the NMR tank circuit (about 250 pF) is mainly given by the coaxial line leading from the injection circuit down to the NMR coil. At (electrical) resonance, the equivalent parallel resistance is 180 k $\Omega$ . The resonance frequency was 470.6 kHz corresponding to a static magnetic field at (magnetic) resonance of 14.5 mT; the quality factor is 130. Due to temperature changes in the main He bath, the capacitance of the coaxial line leading to the NMR coil slightly changes its value, shifting the position of the electrical resonance. Therefore an additional adjustable capacitance in the injection circuit at room temperature is necessary for fine-tuning.

The other part of the rf is sent to the opposition circuit which is shown in Fig. 2. An adjustable capacitance and an adjustable resistance serve to minimize the output signal seen of the rf bridge in amplitude and phase respectively. The output of the opposition circuit is sent to the second input of the differential preamplifier.

The whole setup is controlled by a microcomputer.

We tested different commercially available amplifiers without getting satisfying results: oscillations in the Gigahertz regime (leading to substantial heating of the adsorbed films), high noise currents and a poor stability were among the problems encountered. In consequence, we were forced to develop our own amplifier; the circuit diagram of this differential preamplifier yielding a gain of 100 is shown in Fig. 4. A Siliconix n-channel JFET model U421 is used as transistor, a choice which is especially adapted for very high input impedance applications. Its nominal noise voltage is about  $10 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$  and its nominal noise current about  $0.1 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$ . A noise measurement has been performed at 4.2 K giving a rms noise at the output of the preamplifier of about  $40 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$ . The value of the noise current deduced from this measurement is on the order of  $0.2 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$  at the resonance frequency. Additional noise sources like microphonism have been minimized by using specially designed cryogenic coaxial cables. We are presently developing a preamplifier working at 4.2 K in order to further reduce the overall noise and the capacitance changes of the coaxial line in the main He bath.

The signal to noise ratio is 1000 at 10 mK and at a coverage of one monolayer. This value does not increase further at lower temperatures, since the maximum rf signal amplitude on the NMR coil is limited by rf heating of the Grafoil sample which is especially significant below 10 mK. In this case the voltage on the coil is about 2 mV and the amplitude of the NMR absorption signal is 40  $\mu\text{V}$ . The signal to noise ratio decreases with temperature, due to the Curie law temperature dependence of the signal and it is proportional to the number of atoms adsorbed.

A typical NMR measurement is performed by sweeping the magnetic field; the lock-in detection technique allows a simultaneous acquisition of the in-phase and quadrature components of the NMR signal. The number of data points taken per line is 500 and the field sweep amplitude is chosen to cover adequately the NMR line. The amplitude of the NMR signal is normalized by the amplitude of the calibrated attenuator yielding values independent of amplifier gain and rf level. Typical field sweep rates on the order of 0.1 G/s can be used even at millikelvin temperatures, without heating up the sample. The NMR lines are stored and analyzed by the microcomputer.

The total magnetic moment of all  $^3\text{He}$  spins in the sample is the quantity of physical interest; it is proportional to the

area under the NMR absorption signal [6] and is determined by numerical integration of the NMR line. Depending on temperature, between 30 and 150 lines have to be averaged to minimize the statistical error; this averaging is limited by the increasing relative importance of systematic errors due to very low frequency instabilities of the base line.

### B. Line shapes and relaxation times

Early pulsed NMR measurements at temperatures of about 1 K are reviewed by Richards [7]. Contrarily to pulsed NMR experiments above 0.5 K yielding longitudinal relaxation time values on the order of one second [7,8], we find values of about 10 ms at temperatures between 10 mK and 1 K [9] for 1.3 layers. We think that this discrepancy might be due to a heating of the Grafoil sample by the large NMR pulses used in the early experiments.

Detailed experimental studies of the evolution of the line shape as a function of density have been performed at submonolayer coverages in our laboratory [5]. Lorentzian lines are observed at low coverages; at high submonolayer coverages ( $x \approx 0.9$ ), a characteristic stretched-Lorentzian shape is found instead of the theoretically predicted rigid-lattice Gaussian line shape [10]. The lines develop broad wings whereas the center remains narrow.

Above monolayer completion the NMR line becomes Lorentzian again. In Fig. 5 a plot of a typical NMR absorption and dispersion signal is shown, taken at a temperature of 3.6 mK and an areal density of  $0.174 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$ ; this corresponds to the signal of one compressed monolayer (monolayer completion at  $0.108 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$ ), since the liquid present in the second layer is degenerated at these low temperatures. The rigid lattice linewidth expected for the compressed monolayer is one order of magnitude larger than the observed line width. This effect is qualitatively understood as resulting from the motional narrowing due to exchange between the solid first and the liquid second layer. The line width determined by cw NMR, however, is still substantially larger than that deduced from pulsed NMR: our data shown in Fig. 6 correspond to line widths of only 0.1 G. The source of inhomogeneous broadening in adsorbed  $^3\text{He}$  systems is the distribution of local fields due to the diamagnetic susceptibility of graphite platelets randomly oriented in an external magnetic field [11]. Contrarily to what was observed by Secca and Richards [12] in similar experiments at much higher temperatures (1 K), in this coverage regime we find that the transverse relaxation is exponential. We observe a variation of the transverse relaxation time as a function of frequency that we attribute to the  $10/3$  effect, the characteristic exchange frequency being on the order of 100 kHz [13].

The solidification of the second layer at areal densities around  $0.18 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$  is accompanied by a substantial broadening of the first layer signal. The identification of the first and second layer contribution to the NMR line can be performed thanks to their different temperature dependence. However, these contributions can also be distinguished directly in the NMR line shape: as seen on Fig. 7, the broad component of the line scales with the inverse temperature; the narrow component (not shown) has a very strong temperature dependence and does not scale in this plot. The broad component is associated with the first layer signal; the width is that expected for the dipolar coupling in this high-density solid. The narrow component, on the other hand, corresponds to the second layer solid; the temperature dependence of this signal is that of a two-dimensional Heisenberg ferromagnet. It has been shown by earlier work [14] that this behavior corresponds to the second layer; the present work shows that both contributions can be directly observed separately in the NMR line shape.

## III. NMR MEASUREMENTS ON $^3\text{He}$ FILMS ADSORBED ON GRAFOIL

### A. Substrate heterogeneities

Although Grafoil presents a very homogeneous substrate as mentioned in the introduction, a small fraction of the area has nevertheless a stronger binding energy than average, due to imperfections in the graphite surface. Therefore atoms residing on these sites are strongly localized and their susceptibility follows the Curie law down to very low temperatures, in contrast to atoms on homogeneous sites which tunnel so rapidly from site to site that they can be regarded as being in a liquid state showing quantum degeneracy effects at low temperatures (see next section). As a consequence, the Curie-like signal at low temperatures can solely be attributed to atoms localized to defects of the perfect graphite potential. A plot of the monolayer fraction of atoms in a solid phase is shown in Fig. 8 for submonolayer coverages. It can clearly be seen that only a few percent of a monolayer are affected by substrate heterogeneity, thereby confirming the high homogeneity of the Grafoil substrate. The majority of the atoms are on homogeneous sites and in a degenerate liquid phase. The fraction of localized atoms increases linearly from 2% of a monolayer at the lowest coverage to 4% at intermediate submonolayer coverage. The low-density value is in quantitative agreement with earlier NMR data [15,16]. The linear increase of the number of localized atoms as a function of coverage agrees qualitatively with a simple theoretical model [17,18] which takes into account the

distribution of adsorption energies in real samples. Although the localized atoms amount only to a few percent of a monolayer, they are not negligible especially at low submonolayer coverages, but lead to important corrections of the actual densities in the regions of homogeneous substrate potential [19].

## B. Fermi liquids

At low areal densities, the film in the regions of homogeneous potential consists of a liquid phase which shows quantum degeneracy effects at low temperatures. This behavior can be investigated by NMR techniques by a determination of the temperature dependence of the magnetic susceptibility. The onset of degeneracy at about 200 mK is clearly seen in our data (Fig. 9) of the susceptibility of the liquid phase as a function of the inverse of the temperature at an areal density of 0.0523 atoms/Å<sup>2</sup>. Note that the contribution of the solid present at this areal density has been subtracted. The susceptibility of the liquid follows a Curie law at high temperatures and reaches a limiting value for low temperatures; it closely follows the expression proposed by Dyugaev [20]

$$\frac{\chi}{C} = \frac{1}{\sqrt{T^2 + T_F^{**2}}} \quad (1)$$

where C is the Curie constant and  $T_F^{**}$  the effective Fermi temperature which is the only fit parameter and found to be about 200 mK at this areal density. Due to the interactions between the <sup>3</sup>He atoms, this value is reduced with respect to the ideal Fermi gas value  $T_F$  by a factor of ten, the so-called enhancement factor defined as  $T_F/T_F^{**}$ . The coverage dependence of the Fermi temperature determined by the present measurements for submonolayer coverages can be combined with heat capacity measurements [21,22] which provide the coverage dependence of the effective mass  $m^*$ . The Fermi liquid Landau parameter  $F_0^a$  can be inferred from the well known Landau expression

$$\frac{\chi(0)}{\chi_0(0)} = \frac{m^*}{m} \frac{1}{1 + F_0^a} \quad (2)$$

The values of  $F_0^a$  can be compared to theoretical predictions [19,23]. The direct magnetic interaction  $F_0^a$  is found to be very weakly dependent on the effective mass; the increase of the susceptibility enhancement factor at high densities can therefore be ascribed almost entirely to non-magnetic interactions.

## C. Phase transitions

Phase transitions in two dimensions can also be studied by NMR methods. We will discuss in detail the liquid-solid phase transition in the first layer of <sup>3</sup>He adsorbed on Grafoil. In Fig. 10 a plot of the solid fraction of a film of given areal density is shown as function of areal density. The solid fraction is determined as the susceptibility at temperatures much smaller than the Fermi temperature (where only the solid fraction is seen) divided by the susceptibility at temperatures larger than the Fermi temperature (where each atom contributes to the signal). The liquid fraction is also shown; of course it is simply given by: solid fraction + liquid fraction = 1.

At areal densities smaller than 0.045 atoms/Å<sup>2</sup>, the solid fraction is small and approximately constant. This signal is interpreted as coming from atoms trapped by heterogeneities as already discussed. At 0.045 atoms/Å<sup>2</sup>, however, the solid fraction starts to increase linearly with coverage (the liquid fraction decreases linearly), until at about 0.064 atoms/Å<sup>2</sup> where the whole film is solid. The region between these two densities corresponds to a two-phase coexistence: a high density liquid phase and a very low density solid phase, the commensurate solid. In this solid each third site corresponding to a minimum of the potential is occupied by an <sup>3</sup>He atom; from the graphite lattice parameter, the density of this solid can be calculated to 0.06366 atoms/Å<sup>2</sup>. From the very good agreement between the calculated and the measured value for the density of this commensurate phase, it can be concluded that the solid in the two-phase coexistence region indeed exists in that phase. In a similar way, the liquid-solid phase transition in the second layer can be analysed; detailed NMR measurements of the solidification of the second layer are in progress. The subsequent layers do not solidify due to the decreasing adsorption potential in the direction perpendicular to the surface.

## D. Solid phases

We have investigated by NMR methods the nuclear magnetism of the solid phases of <sup>3</sup>He in two dimensions. In the high temperature limit ( $T > 10$  mK), the nuclear magnetic susceptibility of the solid phases can be fitted by a

Curie-Weiss expression, where  $\theta$  is the Curie-Weiss temperature

$$\frac{\chi}{C} = \frac{1}{T - \theta} \quad (3)$$

Assuming 2D Heisenberg coupling between the  $^3\text{He}$  spins, the exchange constant  $J$  is given by

$$J = \frac{\theta}{3} \quad (4)$$

The coverage dependence of the exchange constant is shown in Fig. 11 for areal densities ranging from the two-layer system at 0.18 atoms/ $\text{\AA}^2$  to multilayer coverages. The system evolves from an antiferromagnetic region to a ferromagnetic region with the "ferromagnetic peak" at 0.233 atoms/ $\text{\AA}^2$ , before the exchange constant goes back to zero. It has to be noted that there is remarkable agreement between the NMR results of pure  $^3\text{He}$  films [24], heat capacity results on the same system [22] and NMR results of  $^3\text{He}$  films on top of a first layer of  $^4\text{He}$  [25].

The interpretation of these results is the following: the first layer, being very dense, has a very small exchange constant: this layer does not take part in the exchange process. Only with the solidification of the second layer at about 0.17 atoms/ $\text{\AA}^2$  significant exchange interactions are observed; they are antiferromagnetic and associated exclusively to the naked second-layer solid. From heat capacity data [22], it is known that the formation of the third layer starts at 0.184 atoms/ $\text{\AA}^2$  and that of the fourth layer at 0.24 atoms/ $\text{\AA}^2$ . The fact that the ferromagnetic peak coincides with fourth-layer promotion as well as a theoretical model of a self-bound liquid phase in the first layer [26] have led to the idea that self-bound liquid islands in the third layer lead to a ferromagnetic exchange mechanism in the underlying second-layer solid, competing with the antiferromagnetic exchange mechanism in the naked second-layer solid [27]. In this picture the maximum ferromagnetic exchange interaction is given at the areal density where all the second layer solid is covered by third layer liquid; that is at fourth layer promotion. The decrease of the exchange interaction at high coverages may be due to the compression of the second-layer solid, if the exchange is determined by in-plane multiple spin interactions. If, on the other hand, the exchange process involves the liquid above the second layer, the reduction of the exchange constant is due to quantum size-effects in the 2D Fermi liquid. The nature of the exchange process is the object of experimental and theoretical investigations [28].

#### IV. CONCLUSION

NMR techniques have been used to study two-dimensional  $^3\text{He}$  films adsorbed on Grafoil; together with heat capacity and neutron scattering measurements they provide complementary information for the study of the structure and the nuclear magnetism of these systems. Our specially designed high sensitivity and very low power continuous wave spectrometer allows high precision measurements of the total magnetic moment by numerical integration of the NMR absorption signal. The NMR line shape is Lorentzian except near monolayer completion. The contributions of the solid first and second layer can be observed separately in the NMR line shape. It could be determined that the number of atoms trapped by substrate inhomogeneities amounts to 2% of a monolayer at low densities, linearly increasing to 4% at the onset of liquid-commensurate phase coexistence. Furthermore Fermi liquid properties have been shown with an onset of degeneracy at  $T_F = 200$  mK. We have investigated the 2D phase transition between the liquid and the commensurate phase, yielding an areal density of 0.045 atoms/ $\text{\AA}^2$  for the onset of phase coexistence and 0.064 atoms/ $\text{\AA}^2$  for the completion of the commensurate phase. Finally the coverage dependence of the nuclear magnetism has been shown displaying antiferro- and ferromagnetism with a ferromagnetic peak at 0.233 atoms/ $\text{\AA}^2$ . This peak might be explained by a self-bound liquid in the third layer.

- 
- [1] Godfrin, H., Rapp, R.E., and Lauter, H.J., *Physica B* 169, 177 (1991).
  - [2] Greywall, D.S., *Physica B* 197, 1 (1994).
  - [3] Godfrin, H., and Rapp, R.E., *Advances in Physics* (to be published).
  - [4] Grafoil is manufactured by Union Carbide.
  - [5] Rapp, R.E., and Godfrin, H., *Phys. Rev. B* 47, 12004 (1993).
  - [6] Abragam, A., *Principles of Nuclear Magnetism*, Oxford University Press 1961.
  - [7] Richards, M., p. 165 in "Phase Transitions in Surface Films" ed. by Dash, J.G., and Ruvalds, J., Plenum Publishing Corporation 1980

- [8] Satoh, K., and Sugawara, T., *J. of Low Temp. Phys.* 38, 37 (1980).
- [9] Franco, H., PhD thesis, University of Grenoble (1985), (unpublished)
- [10] Mullin, W.J., Creswell, D.J., and Cowan, B.P., *J. of Low Temp. Phys.* 25, 247 (1976)
- [11] Hegde, S.E., and Daunt, J.G., *J. of Low Temp. Phys.* 32, 765 (1978), 34, 233 (1979)
- [12] Secca, M.F., and Richards, M.G., *Proceedings of LT17*, 741 (1984)
- [13] Cowan, B.P., El-Nasr, L. A., Fardis, M., and Hussain, A., *Phys. Rev. Lett.* 58, 2308 (1987).
- [14] Godfrin, H., Osheroff, D.D., and Ruel, R.R., *Phys. Rev. Lett.* 57, 1161 (1986)
- [15] Cowan, B.P., and Kent, A.J., *Phys. Lett.* 106A, 54 (1984).
- [16] Saunders, J., Lusher, C.P., and Cowan, B.P., *Phys. Rev. Lett.* 64, 2523 (1990).
- [17] Elgin, R.L., Greif, J.M., and Goodstein, D.L., *Phys. Rev. Lett.* 41, 1723 (1978).  
and Elgin, R.L., and Goodstein, D.L., *Phys. Rev. A* 9, 2657 (1974).
- [18] Cole, M.W., Frankl, D.R., and Goodstein, D.L., *Rev. of Mod. Phys.* 53, 199 (1981).
- [19] Morhard, K.-D., Bossy, J., and Godfrin, H., *Phys. Rev. B*, to be published
- [20] Dyugaev, A.M., *Sov. Sci. Rev. A Phys.*, 1 (1990).
- [21] Greywall, D.S., and Busch, P.A., *Phys. Rev. Lett.* 65, 64 (1990).
- [22] Greywall, D.S., *Phys. Rev. B* 41, 1842 (1990).
- [23] Lusher, C.P., Cowan, B.P., and Saunders, J., *Phys. Rev. Lett.* 67, 2497 (1991).
- [24] Godfrin, H., Morhard, K.-D., Rapp, R.E., and Bunkov, Yu.M., *Physica B* 194-196, 675 (1994).
- [25] Lusher, C.P., Saunders, J., and Cowan, B.P., *Europhys. Lett.* 14, 809 (1991).
- [26] Brami, B., Joly, F., and Lhuillier, C., *J. of Low Temp. Phys.* 94, 63 (1994).
- [27] Godfrin, H., Rapp, R.E., Morhard, K.-D., Bossy, J., and Bäuerle, Ch., *Phys. Rev. B* 49, 12377 (1994).
- [28] Guyer, R.A., *Phys. Rev. Lett.* 64, 1919 (1990).

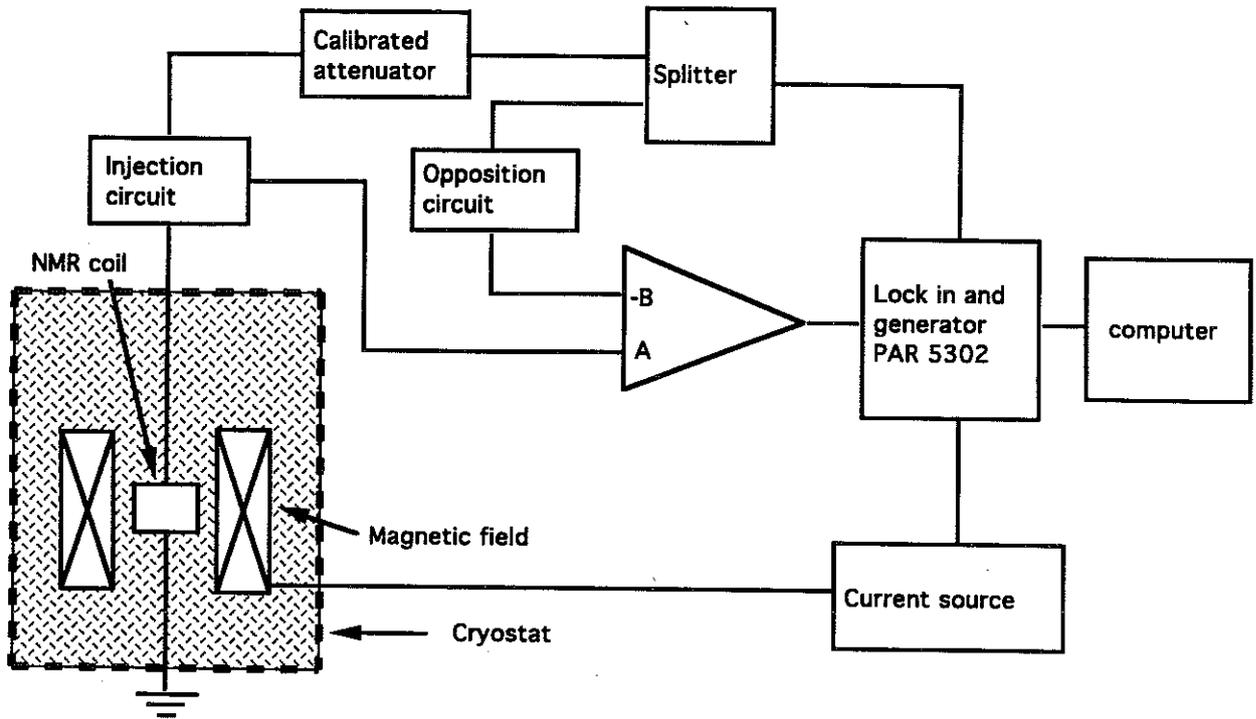


Fig.1: Block diagram of the NMR spectrometer.

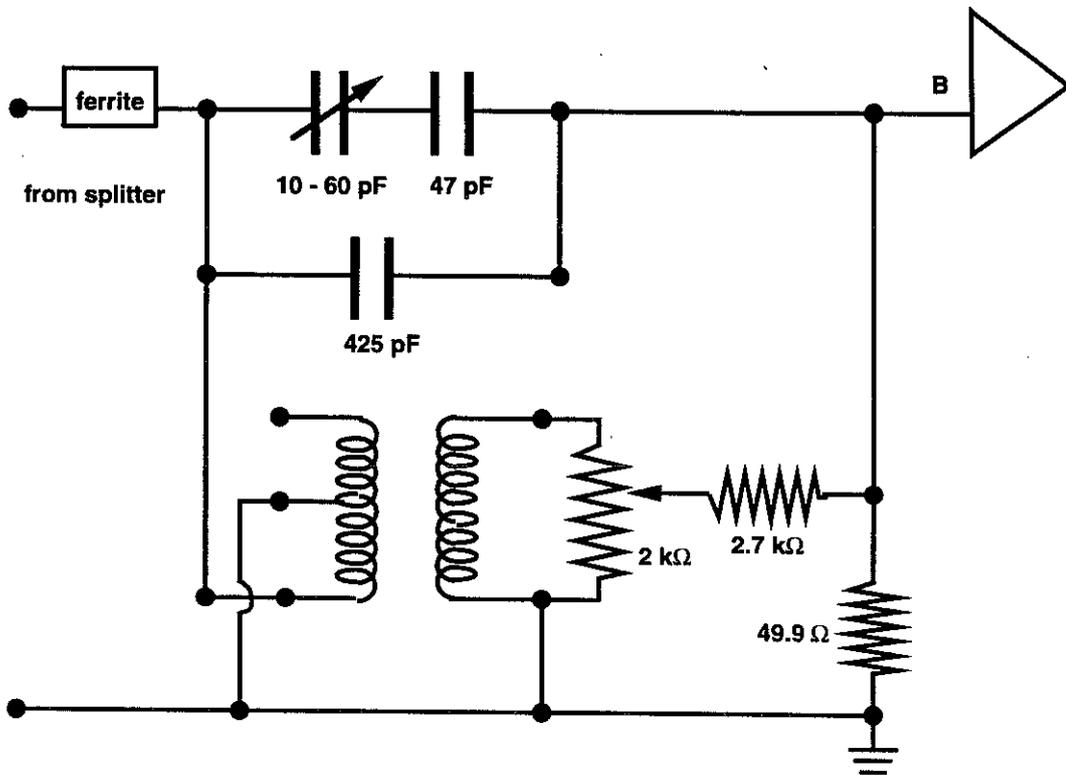


Fig.2: Opposition circuit.

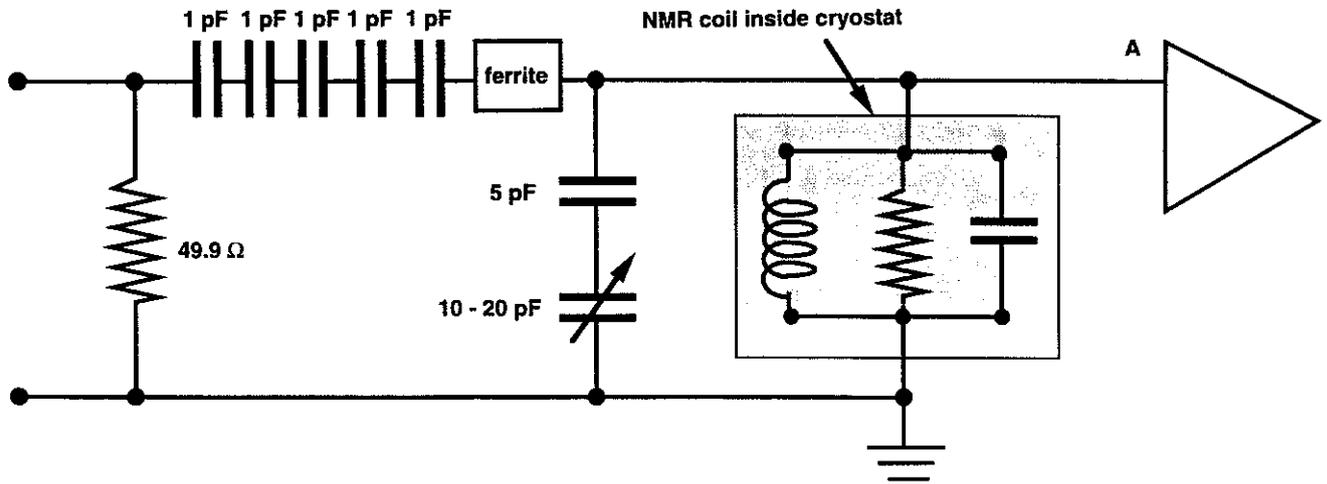


Fig.3: Injection circuit.

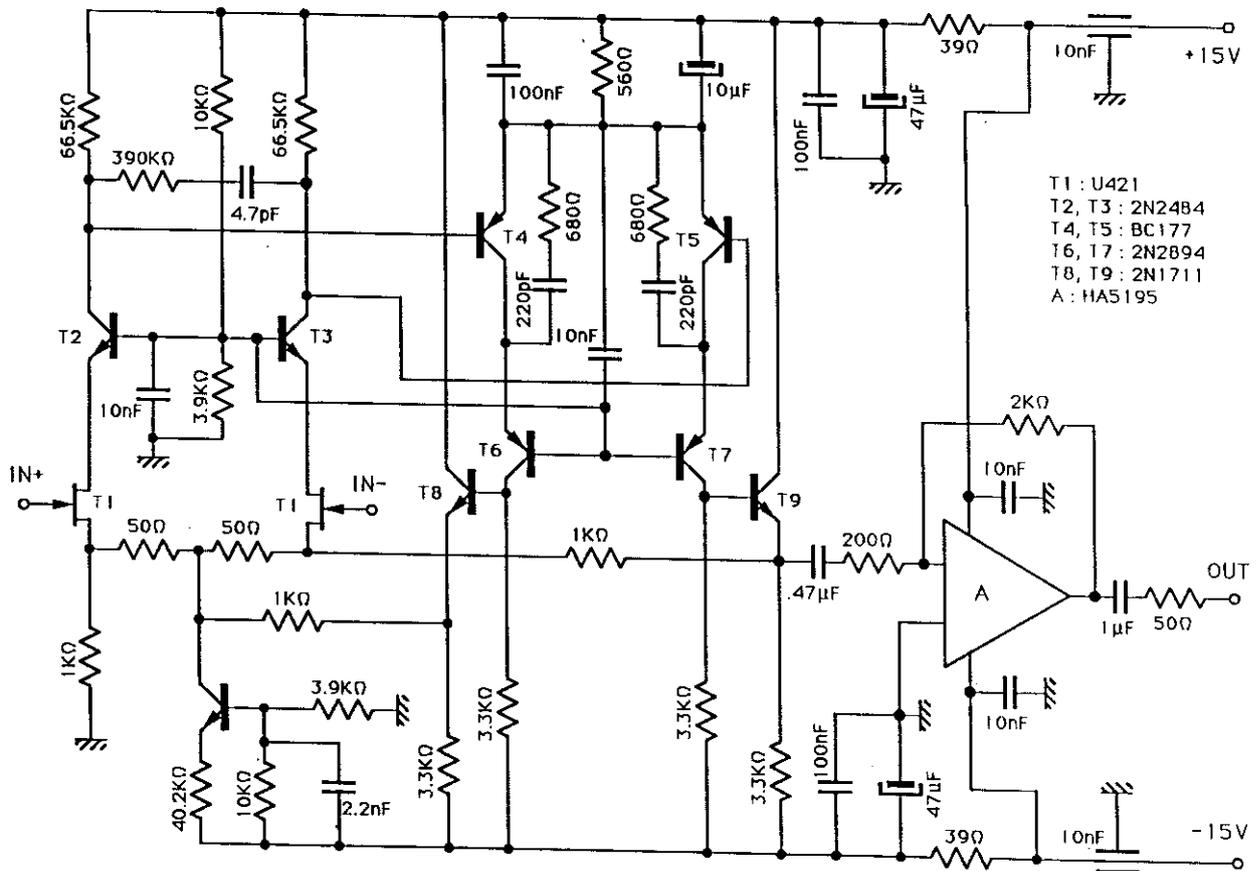


Fig.4: Circuit diagram of the differential preamplifier.

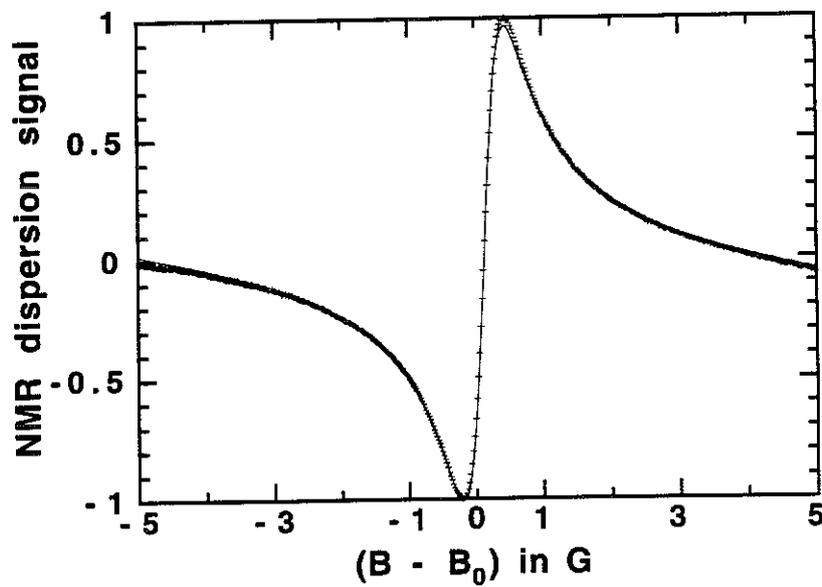
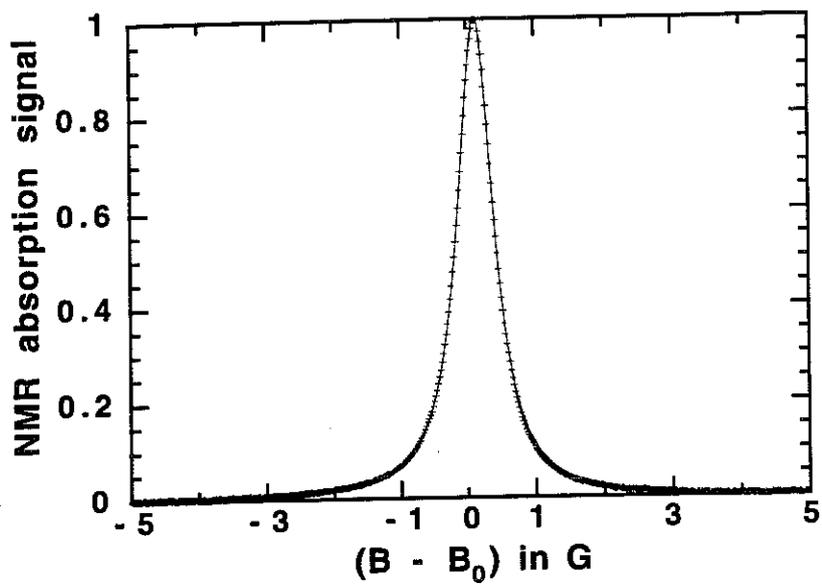


Fig.5: NMR absorption and dispersion signal fitted with a Lorentzian taken at 0.174 atoms/Å<sup>2</sup> and 3.6 mK.

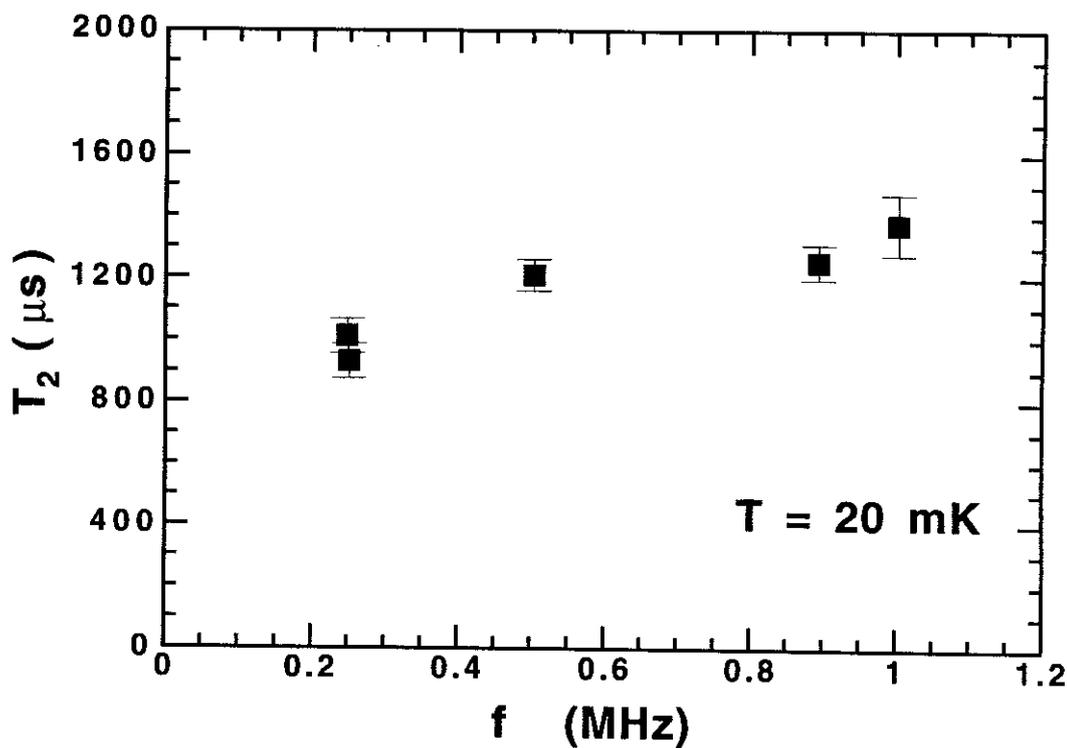


Fig.6: Transverse relaxation time  $T_2$  as function of frequency determined by pulsed NMR measurements at  $0.130 \text{ atoms}/\text{\AA}^2$  and 20 mK.

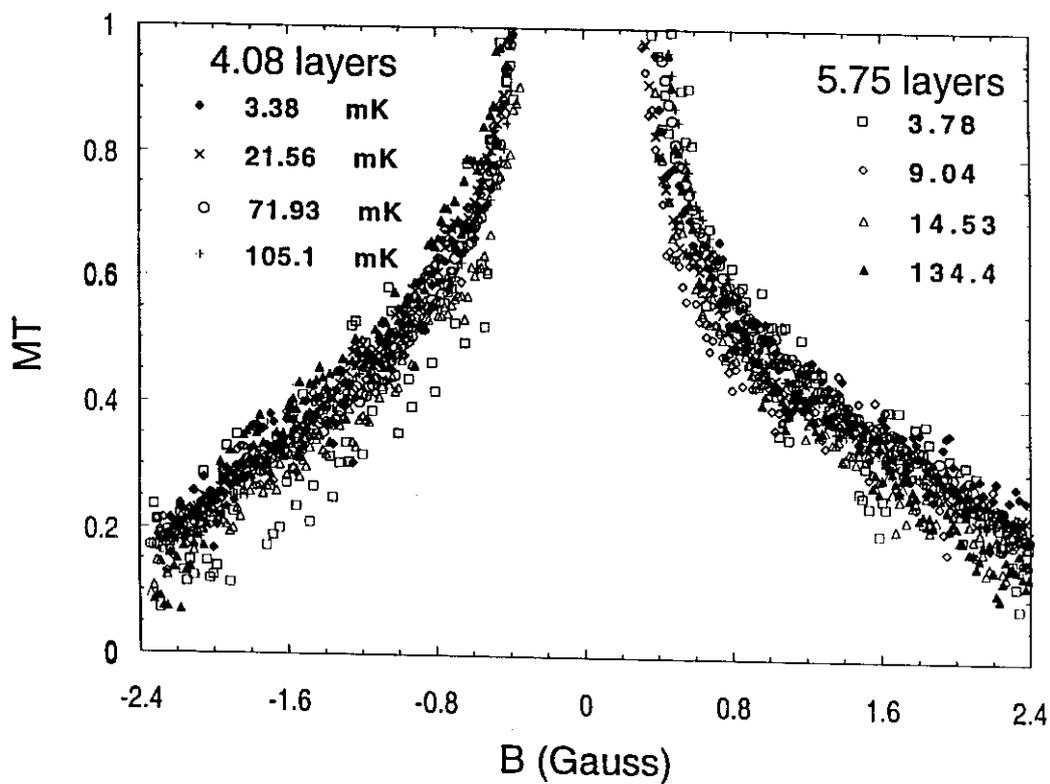


Fig.7: NMR lines at 4.08 and 5.75 layers scaled with temperature to suppress the  $1/T$  dependence; the broad component scales with temperature whereas the narrow component does not scale (not shown in this scale).

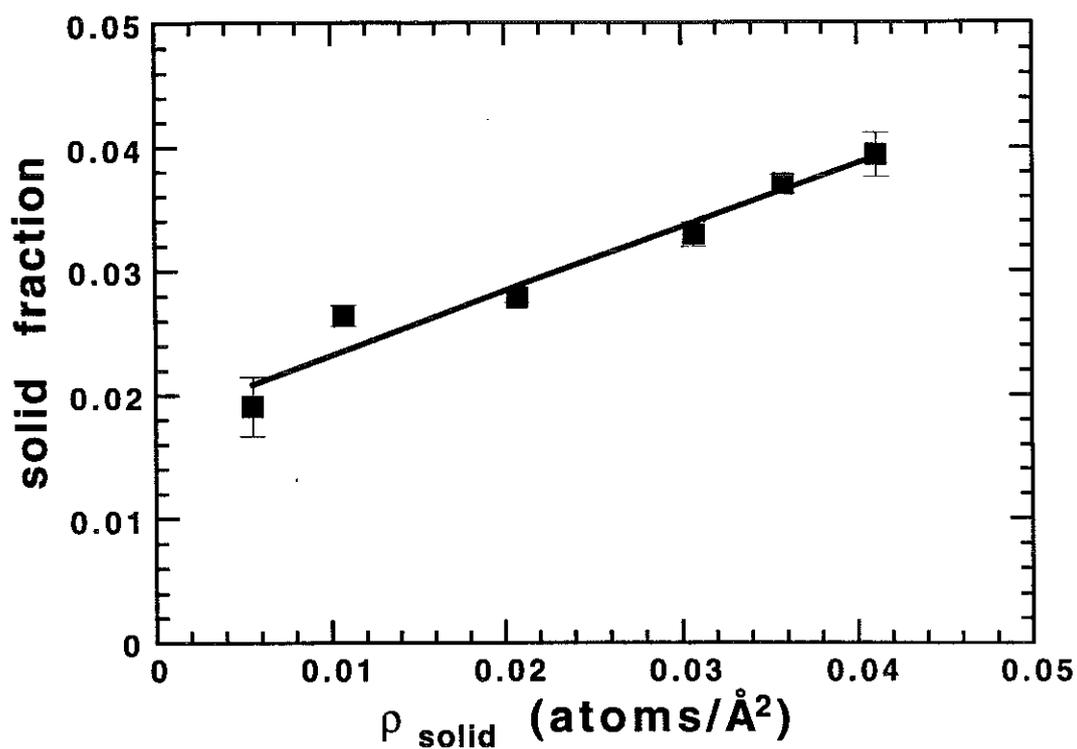


Fig.8: Solid fraction as function of the areal density.

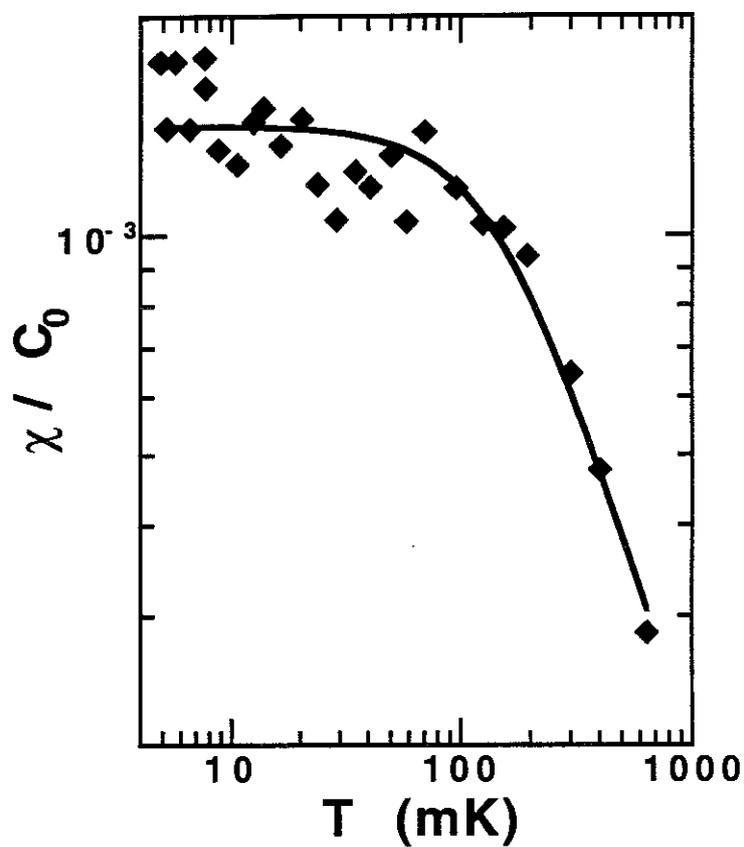


Fig.9: Susceptibility  $\chi/C_0$  of the Fermi liquid as a function of the inverse temperature for  $\rho = 0.0523$  atoms/ $\text{\AA}^2$ ; the solid contribution has been subtracted; fit as explained in the text.

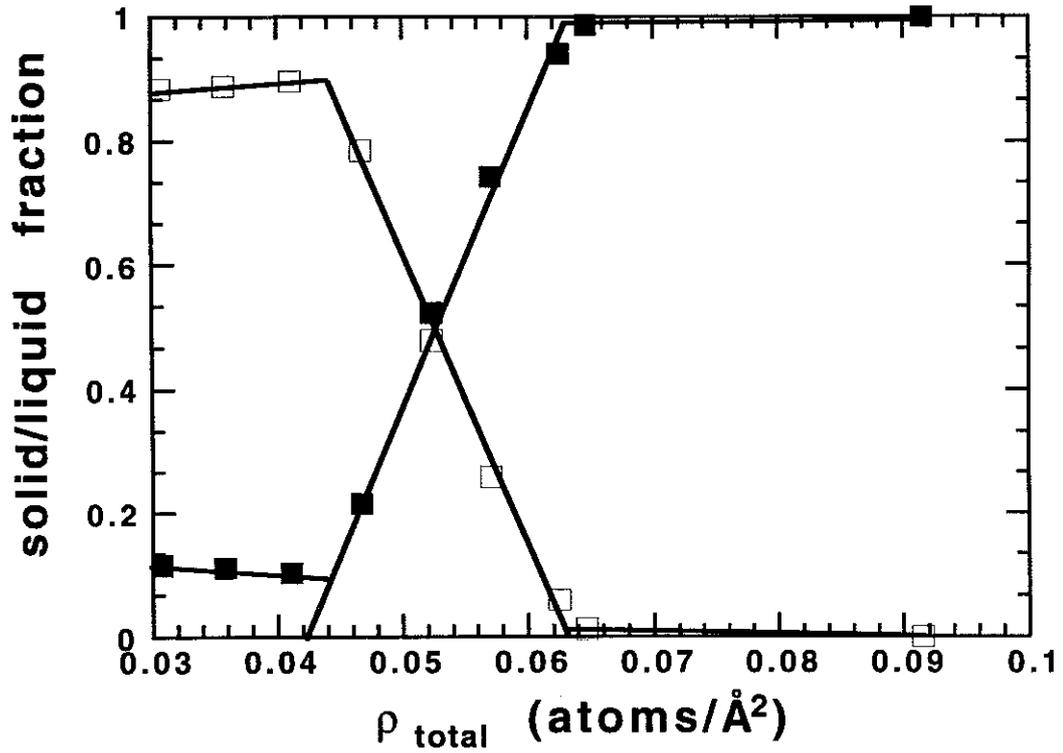


Fig.10: Solid fraction (filled squares) and liquid fraction (open squares) as function of the areal density.

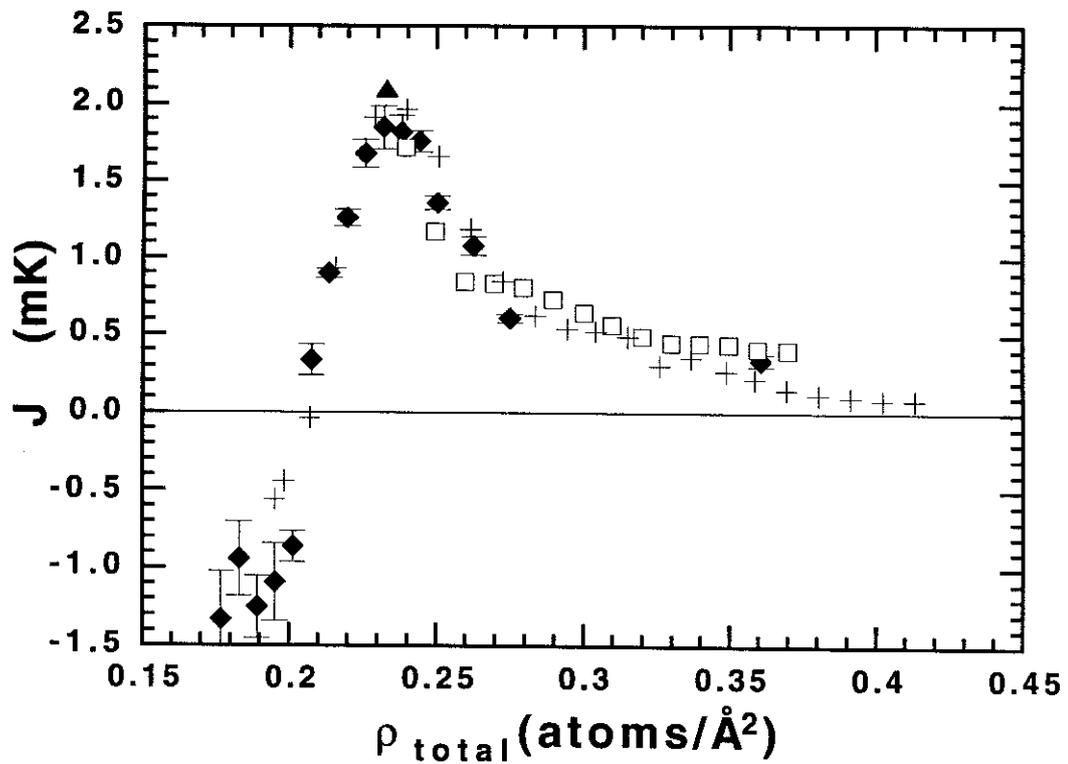


Fig.11: The exchange constant  $J$  for the second layer solid of multilayer  $^3\text{He}$  films adsorbed on graphite as a function of the total areal density; diamonds: NMR [24]; filled triangle: NMR [14]; open squares: heat capacity [22]; crosses: NMR in  $^3\text{He}$  on  $^4\text{He}$  preplated graphite [25].

## Exchange interactions in multilayer $^3\text{He}$ films adsorbed on graphite

H. Godfrin<sup>a</sup>, K.-D. Morhard<sup>a</sup>, R.E. Rapp<sup>a,b</sup> and Yu. M. Bunkov<sup>a,c</sup>

<sup>a</sup>Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, Laboratoire associé à l'Université J. Fourier, Centre National de la Recherche Scientifique, B.P. 166, 38042 Grenoble Cedex 9, France

<sup>b</sup>Instituto de Física, Universidade Federal do Rio de Janeiro, Bloco A 4° andar, Cidade Universitaria, Rio de Janeiro R.J. 21944, Brazil

<sup>c</sup>Kapitza Institute for Physical Problems, Russian Academy of Sciences, 117334 Moscow, Russia

NMR measurements of the magnetization of  $^3\text{He}$  films adsorbed on graphite are analyzed using the 2-D Heisenberg model. In the multilayer coverage range, this model provides a good fit of the experimental data, and the inferred exchange constants agree well with recent heat capacity results.

### 1. INTRODUCTION

The magnetization of  $^3\text{He}$  films adsorbed on graphite at milliKelvin temperatures has been extensively studied at Grenoble. In early experiments [1] the exchange constant  $J$  for the second layer solid was determined as a function of the coverage  $n$ ; it changed from antiferro- to ferromagnetic. At  $n=0.233 \text{ \AA}^{-2}$  the low temperature magnetization displayed a large peak above the non-interacting spins value: the "ferromagnetic peak".

### 2. INITIAL DATA ANALYSIS.

Several assumptions were needed to determine  $J$ . The extraordinary magnetism was ascribed to the second layer (little exchange was expected to occur within the dense and strongly bound first layer). The magnetization of the first layer was supposed to follow the Curie law. Its magnitude was estimated from that measured at monolayer coverage. By fitting the second layer magnetization with a Curie-Weiss law, the Curie-Weiss temperature ( $\approx 3J$ ) was determined as a function of coverage. In later measurements [2] at the ferromagnetic peak coverage, but at lower temperatures, it was

shown that the magnetization was well described by the High Temperature Series Expansion (HTSE) for the susceptibility of the 2D Heisenberg model, with  $J=2.1 \text{ mK}$ , about twice as large as the previous value. The discrepancy results from the analysis: deviations from the Curie-Weiss law are important for a 2D Heisenberg ferromagnet even at  $T \gg J$ . A new analysis of the data for all coverages with HTSE was clearly desirable.

### 3. NEW DATA and ANALYSIS.

However, experiments at lower coverages [3] revealed sources of systematic errors, leading us to perform new experiments. One of the problems originates from substantial deviations from a Lorentzian line shape. A broad component was found in the NMR lines. Hence, a fraction of the magnetization was not detected in the earlier experiments. It is associated to the dense first layer; its contribution is expected to vary as  $1/T$ , and this was verified experimentally for two coverages. The NMR lines were then corrected for the contribution of the broad component, reducing substantially systematic errors involved in the subtraction of the first layer contribution.

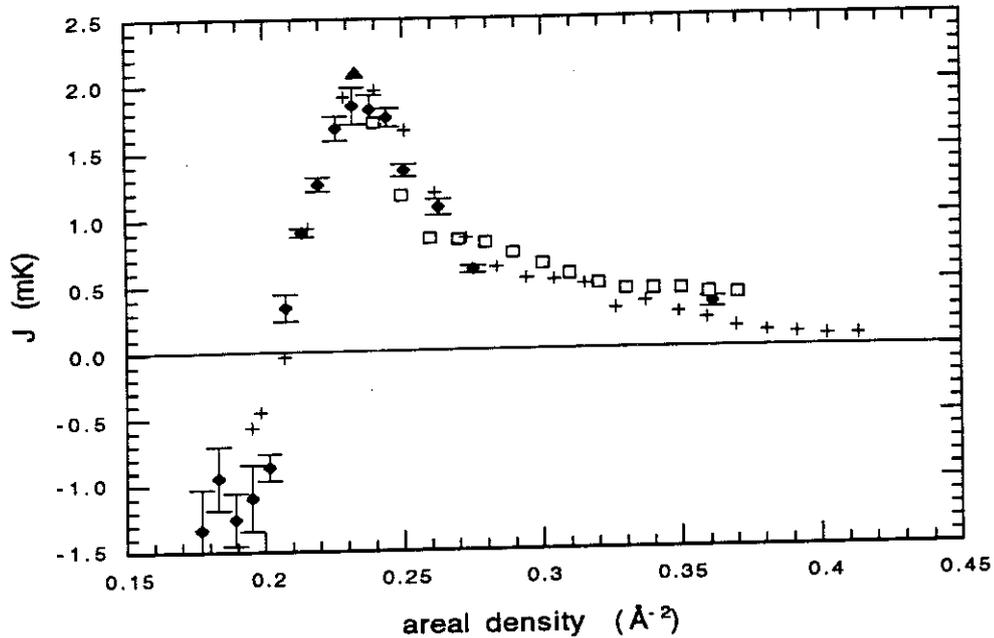


Figure 1. The exchange constant  $J$  for the second layer solid of multilayer  $^3\text{He}$  films adsorbed on graphite as a function of the total areal density; diamonds: present NMR results; filled triangle: NMR [2]; open squares: heat capacity [4]; crosses: NMR in  $^3\text{He}$  on  $^4\text{He}$  preplated graphite [5].

Also, the calibration of the CMN thermometer under a magnetic field [3] was improved and checked by measurements at submonolayer coverages. Using this corrected temperature scale improved the HTSE fits of the multilayer data at the lowest temperatures.

#### 4. RESULTS AND DISCUSSION.

The values of  $J(n)$  obtained in the present work are shown in Fig. 1. For  $J > 1$  mK the values of  $J$  deduced from the HTSE are substantially larger than those from the Curie-Weiss fits. For  $J < 1$  mK, including  $J < 0$ , there is little difference between the different analysis. The values at the ferromagnetic peak coverage agree well with the very low temperature NMR result [2]. At higher densities, there is a good agreement with the values determined by heat capacity techniques [4]. Heat capacity is in principle more sensitive to the magnitude of  $J$ , but does

not provide its sign. The coverages are expressed in the "commensurate scale" [3]; our coverages and Greywall's should agree within 4%. In order to compare our data to NMR measurements of  $^3\text{He}$  adsorbed on  $^4\text{He}$  preplated graphite [5], a 9% correction of their coverages was applied [3]. A good agreement is obtained with the pure  $^3\text{He}$  data, except at very high coverages, where a faster decrease of  $J$  could exist.

#### REFERENCES.

1. H. Franco, PhD Thesis, Université de Grenoble (1985); H. Franco, R.E. Rapp and H Godfrin, Phys. Rev.Lett. 57 (1986) 1161.
2. H. Godfrin, D.D. Osheroff and R.R. Ruel, Phys. Rev. Lett. 60 (1988) 305.
3. R.E. Rapp and H. Godfrin (in print).
4. D.S. Greywall, Phys. Rev. B41 (1990) 1842
5. C.P. Lusher, J. Saunders and B.P. Cowan, Europhys. Lett. 14 (1991) 809.

Condensation of  $^3\text{He}$  in  $2\frac{1}{2}$  dimensions and indirect exchange in adsorbed films

H. Godfrin

*Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, Centre National de la Recherche Scientifique,  
Laboratoire associé à l'Université J. Fourier, Boîte Postale 166, 38042 Grenoble Cedex 9, France*

R. E. Rapp

*Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, Centre National de la Recherche Scientifique,  
Laboratoire associé à l'Université J. Fourier, Boîte Postale 166, 38042 Grenoble Cedex 9, France  
and Instituto de Física, Universidade Federal do Rio de Janeiro, Bloco A 4° andar,  
Cidade Universitária, Caixa Postal 68528, Rio de Janeiro RJ 21945, Brazil*

K.-D. Morhard, J. Bossy, and Ch. Bäuerle

*Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, Centre National de la Recherche Scientifique,  
Laboratoire associé à l'Université J. Fourier, Boîte Postale 166, 38042 Grenoble Cedex 9, France*

(Received 1 November 1993)

The experimental properties of multilayer  $^3\text{He}$  films adsorbed on graphite are presently described by a model assuming the existence of several structural phases in the second layer and a continuous growth of uniform liquid beyond second-layer coverages. We propose an alternative model, where second-layer ferromagnetism is induced by a condensed third-layer liquid, which provides a simple description of experimental data.

The observation of two-dimensional nuclear magnetism in  $^3\text{He}$  films adsorbed on graphite<sup>1</sup> has motivated detailed studies of these systems.<sup>2-5</sup> The magnetic behavior of the second atomic layer is of particular interest: large antiferromagnetic exchange interactions are found at low coverages where this layer has probably a commensurate solid structure, whereas large ferromagnetic exchange is found at high coverages. In this last case, the solid is thought to have a solid incommensurate structure, and fluid  $^3\text{He}$  is present above the second layer.

The nature of exchange processes in these systems is not well understood. In-plane multiple spin exchange<sup>6</sup> and indirect exchange<sup>7</sup> are able to describe qualitatively the experimental results, but some difficulties arise due to the incomplete knowledge of the second-layer phase diagram. Greywall proposed a possible phase diagram<sup>2</sup> compatible with heat-capacity data; according to this interpretation there would exist two commensurate phases, characterized according to NMR data<sup>1,4</sup> by antiferromagnetic exchange constants  $J$  of similar magnitude, and an incommensurate phase shown to be ferromagnetic by NMR experiments.

The observed<sup>1,4</sup> gradual transition from antiferromagnetism to ferromagnetism is ascribed to a coexistence of structural phases. In recent ultralow temperature experiments<sup>3</sup> the saturation magnetization of the second layer was found to have a linear variation as a function of second-layer coverage, providing support to a model of coexisting antiferromagnetic and ferromagnetic structural phases in the second layer.

We discuss in this article the possibility to interpret existing data using different assumptions for the phase diagram of multilayer films, motivated by recent theoretical work on two-dimensional liquid films.<sup>8</sup> We focus on the coverage region above  $0.18 \text{ \AA}^{-2}$  where the second layer is solid. Following Greywall, liquid in the third layer is observed for coverages above  $0.184 \text{ \AA}^{-2}$ , and fourth-layer promotion at about  $0.24 \text{ \AA}^{-2}$ . This last effect occurs at the ferromagnetic peak coverage,<sup>1</sup> but this is fortuitous in the presently accepted interpretation.

Linear coverage dependences of the heat capacity and nuclear magnetization have been used to identify phase coexistence regimes.<sup>1,2</sup> However, helium layers are highly compressible and substantial density increase of a given layer is observed as a layer immediately on top begins to form. The density of a given layer is therefore non-linear in total coverage, particularly at the beginning of layer formation and around layer completion. In the coverage range we are discussing, the second layer is reaching gradually its maximum density and the third-layer density grows initially slowly and then rises almost linearly. Therefore, a measured property cannot depend linearly both on total density and in second-layer density in the coverage range discussed here; the magnetization isotherms at low temperatures, however, were found to be linear as a function of total coverage in this range, and a coexistence regime was proposed initially between two phases of different magnetizations.<sup>1</sup> According to the model presently used, one would expect a linearity in second-layer density. This contradiction motivated us to

investigate existing experimental data to determine the relevant variable for coverage dependences.

We find that several properties discussed below vary linearly with the third-layer density  $n_3$  in a substantial range of total coverages. We conclude that the third-layer fluid cannot be uniform (contrarily to what is observed<sup>2</sup> for the first- and second-layer fluids). We are led then to the hypothesis that the third-layer fluid condenses in islands, and check the consequences of puddling on the interpretation of experimental results.

In the following we define  $n_3$  as the difference between the total coverage  $n$  and that of the first and second layers ( $n_3 = n - n_1 - n_2$ ); it includes therefore all fluid contributions above the two solid layers, and is equivalent to third-layer coverage below a density presently thought to be about  $0.045 \text{ \AA}^{-2}$ .

Let us discuss first the properties of the third-layer fluid. As shown in Fig. 1, the coefficient  $\gamma$  of the contribution linear in temperature in the heat capacity displays a characteristic increase as a function of density above the density-independent value expected for a noninteracting Fermi gas.<sup>2</sup> This variation reflects the increase of the effective mass, and is similar for the first and the second layer (the low  $\gamma$  value of the point at  $n = 0.01 \text{ \AA}^{-2}$  is due to the fact that the real liquid density is much lower, since a small amount of solid is formed at substrate defects; the liquid is not in the degenerate regime in the temperature range of the measurements). The variation observed in the case of the third layer is clearly different: it is linear in third-layer coverage for  $n_3 \leq 0.04 \text{ \AA}^{-2}$  (Fig. 2), as expected for a condensed liquid phase.

Let us examine the consequences of third-layer puddling on the magnetic properties of the second layer. The variation of the effective exchange constant of the second layer<sup>1,4,5</sup> as a function of third-layer density (Fig. 3) is linear from the antiferromagnetic to the ferromagnetic regime. This suggests an antiferromagnetic exchange in the naked second-layer solid and a ferromagnetic ex-

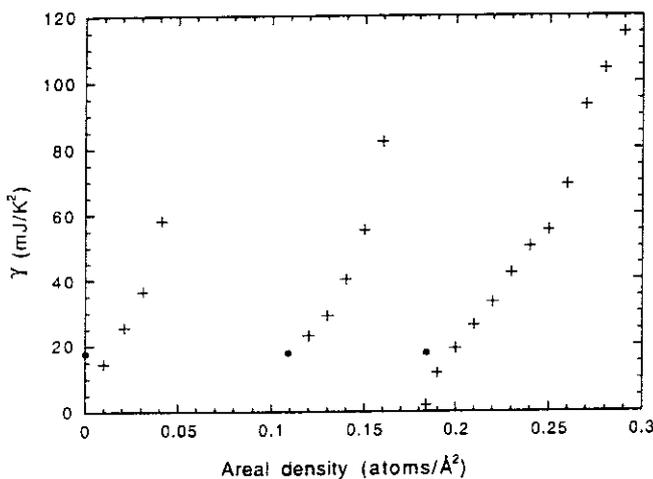


FIG. 1. Coefficient  $\gamma$  of the term linear in temperature of the heat capacity of  $^3\text{He}$  films as a function of total coverage. This Fermi-liquid contribution is shown for the first, second, and third and upper layers. The dots represent the density-independent value expected for a two-dimensional uniform Fermi liquid (data from Ref. 2).

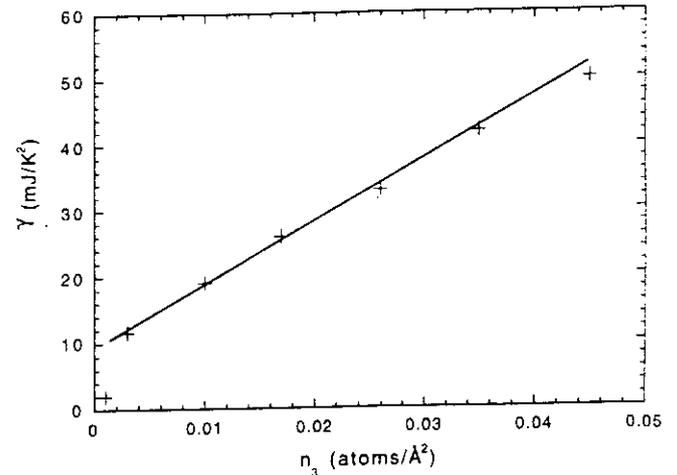


FIG. 2. Third-layer data for  $\gamma$  (see Fig. 1), represented as a function of the third-layer coverage  $n_3$  (data from Ref. 2).

change mechanism in the fraction of the second-layer solid covered by liquid islands. The process changes radically when all the second layer is covered (the islands of liquid merge); the corresponding coverage (which was associated to fourth-layer promotion in Ref. 2) coincides naturally with the ferromagnetic peak in this model. The islands may induce ferromagnetic regions either by a "compression" (cage effect) of the underlying solid, or by the indirect exchange mechanism.<sup>7</sup> Given the larger magnitude of the ferromagnetic exchange constant, the latter mechanism is probably the dominant one. This provides a possible explanation to the fact that data obtained on preplated substrates<sup>4</sup> are identical to the data for pure  $^3\text{He}$  films<sup>1,5</sup> in the strongly ferromagnetic regime (Fig. 3), despite the difference in adsorption potentials.<sup>9</sup>

Low-temperature-heat capacity isotherms,<sup>2</sup> dominated by exchange in the second layer, display a similar behavior when shown as a function of the third-layer density (Fig. 4). It should be pointed out that the behavior as a function of the second-layer density  $n_2$  is more complicated, and led to postulating the existence of a second

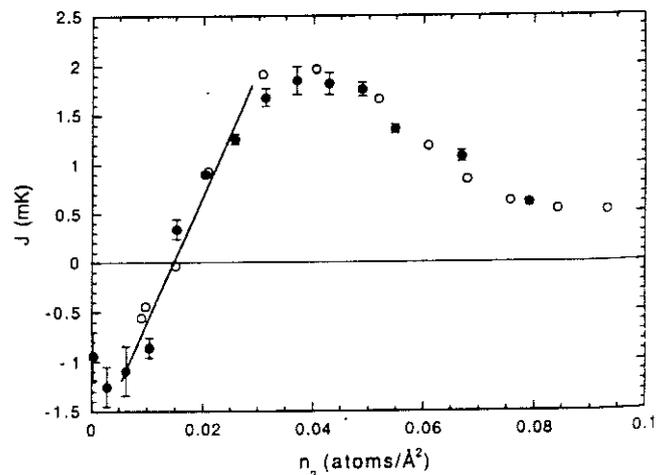


FIG. 3. Effective exchange constant  $J$  as a function of the third- and upper-layer coverage  $n_3$  (see text). Filled circles correspond to pure  $^3\text{He}$  films (Refs. 1 and 5), open circles to  $^4\text{He}$  preplated films (Ref. 4).

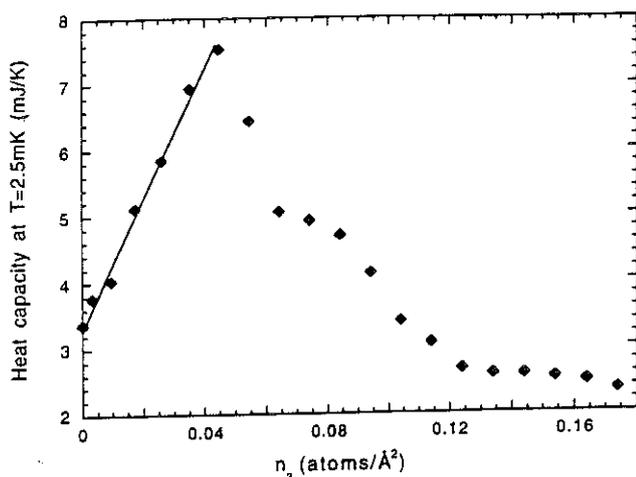


FIG. 4. Heat-capacity isotherm at 2.5 mK as a function of third- and upper-layer coverage (data from Ref. 2). Note that the linear region corresponds to two different coexistence regimes in the phase diagram of Ref. 2.

commensurate phase in the second layer,<sup>2</sup> a fact hardly compatible with the NMR data. The puddling hypothesis only requires solidification of the second layer.

Low-temperature magnetization data<sup>3</sup> are shown in Fig. 5 as a function of  $n_3$ . Again, linear behavior is observed, as expected for ferromagnetic domains controlled by the liquid islands. Note that the second-layer density is increasing in this coverage range; at the highest coverages, one obviously expects within the model presented here that this magnitude will become proportional to the *second*-layer coverage,<sup>3</sup> since all second-layer atoms are affected by the ferromagnetic exchange mechanism when the second layer is completely covered by liquid. The exchange constants determined at low temperatures<sup>3</sup> are larger than those found in the high-temperature

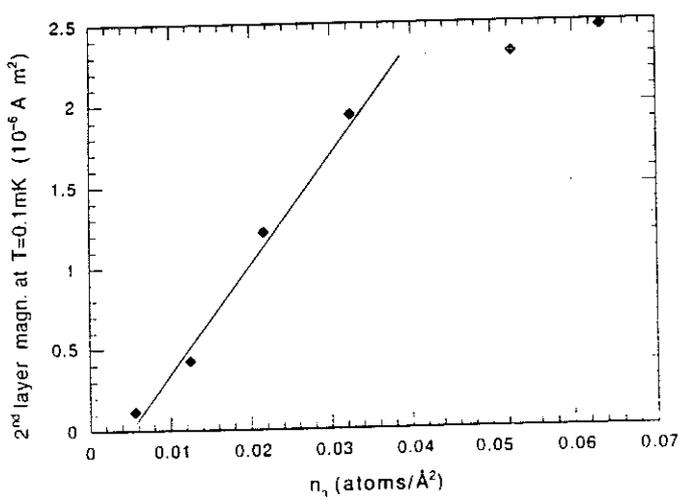


FIG. 5. Second-layer magnetization at low temperatures (corresponding to saturated ferromagnetic regions) as a function of the third- and further-layer coverage  $n_3$  (data from Ref. 3). A linear behavior in  $n_3$  is observed at low coverages. The small offset in the abscissa is probably due to differences in coverage scales with respect to Ref. 2 (see also Fig. 3). At the highest coverages the magnetization is expected to be proportional to the *second*-layer coverage (see text).

regime,<sup>1,4,5</sup> the low-temperature behavior is dominated by the ferromagnetic contributions, whereas the higher-temperature exchange constants are effective constants resulting from the combination of ferromagnetic and antiferromagnetic exchange terms weighted by the relative amounts of both phases.<sup>3</sup> The puddling model explains naturally the ferromagnetic and antiferromagnetic phase coexistence and the evolution of the magnetization as a function of temperature and coverage, including the coverage dependence of the coherence length in the spin-wave regime.

The regime linear in  $n_3$ , interpreted here as due to condensed liquid, extends approximately up to  $n_3 = 0.04 \text{ \AA}^{-2}$  in all these experiments, a reasonable value for a two-dimensional liquid. The work of Brami, Joly, and Lhuillier<sup>8</sup> clearly shows that delocalization of the  $^3\text{He}$  atoms in the third dimension may lead to a self-bound liquid state. We believe that the softer potential normal to the substrate experienced by the third-layer liquid (in comparison with that of the first and second layers) makes condensation possible; liquids in the first, second, and third layer are particularly useful model systems for theoretical calculations.

The interpretation of the nuclear magnetism of  $^3\text{He}$  multilayer films given here leads to a new interpretation of the second-layer phase diagram. In particular, the existence of the second commensurate phase is not needed to describe the low-temperature heat-capacity data. Also, fourth- and fifth-layer promotions may occur in this model at higher values of total coverage (compared to those assumed in Ref. 2): 0.26 and 0.32  $\text{\AA}^{-2}$ , respectively, are coherent with the data of Figs. 3 and 4, closer to the values expected from the bulk  $^3\text{He}$  density, and probably better related to the theoretical predictions of Guyer for indirect exchange in multilayer films.<sup>7</sup>

A detailed analysis is presently difficult due to the uncertainty in the values of  $n_3$ ; we have used the coverage values given by Greywall,<sup>2</sup> even though severe discrepancies exist with NMR and neutron-scattering data. Other difficulties are related to heterogeneity of the graphite substrate. In real samples the "islands" are probably located along the edges of the graphite platelets, and fill progressively the platelets area. At low liquid coverages heterogeneity effects may dominate, and a strict proportionality to third-layer coverage cannot be expected. The indirect exchange mechanism, for instance, will be affected when the liquid presence is restricted to the edges of the platelets.

The puddling hypothesis does not seem to contradict existing data, despite some weaknesses: the sudden increase of the coefficient  $\gamma$  of the term linear in temperature of the heat capacity (Fig. 2) at the lowest  $n_3$  values cannot only be explained by an inaccurate  $n_3$ , except if one accepts some degree of surface reconstruction or heterogeneity (edge) effects (the presently accepted model also suffers from similar difficulties: for instance, a liquid-like heat capacity is observed<sup>2</sup> at a density  $n = 0.178 \text{ \AA}^{-2}$  where no liquid should be present). Also, heat-capacity data at temperatures on the order of tens of mK are not proportional to third-layer coverage; this may not be a serious criticism, since condensation should occur only at

very low temperatures.<sup>8</sup> Another obvious oversimplification of this model is the assumption that the properties of the antiferromagnetic second-layer solid do not change as the total coverage is increased; certainly the second-layer density increase may even make the in-plane interactions become ferromagnetic;<sup>6</sup> this would lead to small deviations from the linear behavior in third-layer density. Present data are not precise enough to allow a more

detailed discussion.

The third-layer liquid puddling model provides a new possible explanation of the physics of <sup>3</sup>He films. More work is needed to establish with precision the phase diagram and the density of the individual layers of adsorbed <sup>3</sup>He multilayer systems in order to understand their extraordinary two-dimensional nuclear magnetism.

- 
- <sup>1</sup> H. Franco, Thèse de Doctorat, Université de Grenoble, 1985; H. Franco, R. E. Rapp, and H. Godfrin, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1161 (1986).  
<sup>2</sup> D. S. Greywall, *Phys. Rev. B* **41**, 1842 (1990), and references therein.  
<sup>3</sup> P. Schiffer, M. T. O'Keefe, D. D. Osheroff, and H. Fukuyama, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1403 (1993); *J. Low. Temp. Phys.* (to be published).  
<sup>4</sup> C. Lusher, J. Saunders, and B. Cowan, *Europhys. Lett.* **14**, 809 (1991); M. Siqueira, C. Lusher, B. Cowan, and J. Saunders, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1407 (1993), and references therein.  
<sup>5</sup> H. Godfrin, K.-D. Morhard, R. E. Rapp, and Yu. M.

Bunkov, *Proceedings of the 20th Conference on Low Temperature Physics, Eugene, Oregon*, edited by R. J. Donnelly (Elsevier, Amsterdam, in press).

- <sup>6</sup> M. Roger, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 297 (1990), and references therein.  
<sup>7</sup> S. Tasaki, *Prog. Theor. Phys.* **79**, 1311 (1988), and references therein; R. A. Guyer, *Physica B* **165&166**, 701 (1990); *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1919 (1990).  
<sup>8</sup> B. Brami, F. Joly, and C. Lhuillier, *J. Low Temp. Phys.* **94**, 63 (1994).  
<sup>9</sup> Also independently suggested by D. D. Osheroff (private communication).

# Bibliographie

- [1] X. Duval et A. Thomy, C.R. Ac. Sc. (France) **259**, 4007 (1964).
- [2] M. Bretz, J.G. Dash, D.C. Hickernell, E.O. McLean et O.E. Vilches, Phys. Rev. A **8**, 1589 (1973).
- [3] H. Franco, R.E. Rapp et H. Godfrin, Phys. Rev. Lett. **57**, 1161 (1986).
- [4] H. Godfrin, D.D. Osheroff et R.R. Ruel, Phys. Rev. Lett. **57**, 1161 (1986).
- [5] D.S. Greywall, Phys. Rev. B **41**, 1842 (1990).
- [6] D.S. Greywall et P.A. Busch, Phys. Rev. Lett. **65**, 2788 (1990).
- [7] H.J. Lauter, H. Godfrin, V.L.P. Frank et H.P. Schildberg, Physica B **165&166**, 597 (1990).
- [8] J. Saunders, C.P. Lusher et B.P. Cowan, dans 'Excitations in Two-Dimensional and Three-Dimensional Quantum Fluids' ed. by A.G.F. Wyatt and H. Lauter, Plenum Press, New York, (1991).
- [9] P. Schiffer, M.T. O'Keefe, D.D. Osheroff et H. Fukuyama, J. of Low Temp. Phys. **94**, 489 (1994).
- [10] H. Godfrin, R.E. Rapp et H.J. Lauter, Physica B **169**, 177 (1991).
- [11] D.S. Greywall, Physica B **197**, 1 (1994).
- [12] H. Godfrin et R.E. Rapp, Advances in Physics (prochainement publié).
- [13] H. Godfrin et H.-J. Lauter, Prog. in Low Temp. Phys., ed. par W. Halperin, (prochainement publié).
- [14] O.V. Lounasmaa, "Experimental Principles and Methods Below 1 K", Academic Press, London et New York 1974.
- [15] F. Pobell, "Matter and Methods at Low Temperatures", Springer Verlag, Berlin 1991.
- [16] H. Godfrin, Thèse d'état, Université de Grenoble 1981.
- [17] Grafoil est produit par Union Carbide.
- [18] R.E. Rapp et H. Godfrin, Phys. Rev. B **47**, 12004 (1993).

- [19] D.S. Greywall et P.A. Busch, *Physica B* **165&166**, 23 (1990).
- [20] D.S. Greywall, *Phys. Rev. B* **33**, 7520 (1986).
- [21] W.E. Fogle, J.H. Colwell et R.J. Soulen Jr., *Physica B* **165&166**, 33 (1990).
- [22] A. Hoffmann, J. Engert et W. Buck, *Physica B* **194-196**, 19 (1994).
- [23] R.R. Conte, "Eléments de cryogénie", Masson & C<sup>ie</sup>, Paris 1970.
- [24] D.S. Greywall et P.A. Busch, *J. of Low Temp. Phys.* **46**, 451 (1981).
- [25] S. Timoshenko, *Résistance des matériaux II*, Dunod, Paris 1966.
- [26] G. Pissarenko, A. Yakovlev et V. Matvéev, *Aide-mémoire de résistance des matériaux p.211*, Editions Mir, Moscou 1979.
- [27] D.S. Greywall, *Phys. Rev. B* **31**, 2675 (1985).
- [28] M. Lano et J. Bourgoin, "Point Defects in Semiconductors", Springer Series in Solid State Sciences, Springer Verlag Berlin, Heidelberg et New York 1981.
- [29] L.D. Dillon, R.E. Rapp et O.E. Vilches, *J. of Low Temp. Phys.* **59**, 35 (1985).
- [30] B. Brami, F. Joly et C. Lhuillier, *J. of Low Temp. Phys.* **94**, 63 (1990).
- [31] A. Thomy, X. Duval et J. Regnier, *Surf. Science Rep.* **1**, 1-38 (1981).
- [32] M. Richards, p. 165 dans "Phase Transitions in Surface Films" édité par J.G. Dash et J. Ruvalds, Plenum Publishing Corporation 1980.
- [33] A. Abragam, "Principles of Nuclear Magnetism", Oxford University Press 1961.
- [34] P. Horowitz et W. Hill, "The Art of Electronics", Cambridge University Press 1990.
- [35] F. Ayela, J.L. Bret et J. Chaussy, *Rev. Sci. Instrum.* **62** (11), 1991.
- [36] C. Bäuerle, *Diplomarbeit, Universität Karlsruhe* 1994.
- [37] M. Bretz, J.G. Dash, D.C. Hickernell, E.O. McLean et O.E. Vilches, *Phys. Rev. A* **9**, 2814(E) (1974).
- [38] S.V. Hering, S.W. Van Sciver et O.E. Vilches, *J. Low Temp. Phys.* **25**, 793 (1976).
- [39] S.W. Van Sciver, *Phys. Rev. B* **18**, 277 (1978).
- [40] S.W. Van Sciver et O.E. Vilches, *Phys. Rev. B* **18**, 285 (1978).
- [41] J. Saunders, C.P. Lusher, et B.P. Cowan, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2523 (1990).
- [42] R.A. Guyer, *Phys. Rev. Lett.* **39**, 1091 (1977).
- [43] R.L. Elgin et Goodstein, *Phys. Rev. A* **9**, 2657 (1974).
- [44] R.L. Elgin, J.M. Greif et Goodstein, *Phys. Rev. Lett.* **41**, 1723 (1978).

- [45] M.W. Cole, D.R. Frankl et D.L. Goodstein, *Rev. of Mod. Phys.* **53**, 199 (1981).
- [46] B.P. Cowan et A.J. Kent, *Phys. Lett.* **106A**, 54 (1984).
- [47] C.P. Lusher, B.P. Cowan et J. Saunders *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2497 (1991).
- [48] A.M. Dyugaev, *Sov. Sci. Rev. A Phys.*, **1** (1990).
- [49] E.O. McLean, PhD thesis, University of Washington, 1972 (non publié).
- [50] D.S. Greywall et P.A. Busch, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 64 (1990).
- [51] L.D. Landau, *Sov. Phys. JETP* **3**, 920 (1956).
- [52] L.D. Landau, *Sov. Phys. JETP* **5**, 101 (1957).
- [53] A.J. Leggett, *Rev. Mod. Phys.* **47**, 331 (1975).
- [54] D. Pines et P. Nozières, "The Theory of Quantum Liquids" Vol.1, Benjamin, New York 1966.
- [55] X. Neto et X. Fredkin, *Phys. Rev. B* **49**, 16 (1994).
- [56] D. Vollhardt et P. Wölfle, "The Superfluid Phases of  $^3\text{He}$ ", Taylor et Francis, London 1990).
- [57] N.F. Berk et J.R. Schrieffer, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 750 (1966).
- [58] S. Doniach et S. Engelsberg, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 433 (1966).
- [59] M.T. Béal-Monod, S.K. Ma et D.R. Fredkin, *Phys. Rev. Lett.* **20**, 929 (1968).
- [60] M.T. Béal-Monod et A. Theumann, dans "Ordering in two dimensions", édité par S.K. Sinha, Elsevier, North-Holland 1980.
- [61] M.T. Béal-Monod, communication privée.
- [62] J. Hubbard, *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **276**, 238 (1963).
- [63] M.C. Gutzwiller, *Phys. Rev. Lett.* **10**, 159 (1963).
- [64] W.F. Brinkmann et T.M. Rice, *Phys. Rev B* **2**, 4302, (1970).
- [65] P.W. Anderson et W.F. Brinkman, "Theory of Anisotropic Superfluidity in He" dans "The Helium Liquids", édité par J.G.M. Armitage et I.E. Farqhar, Academic, New York 1975.
- [66] P.W. Anderson et W.F. Brinkman, "The Physics of Liquid and Solid Helium" édité par K.H. Bennemann et J.B. Ketterson, Wiley, New York 1978.
- [67] D. Vollhardt, *Rev. Mod. Phys.* **56**, 99 (1984).
- [68] J.C. Wheatley, *Rev. Mod. Phys.* **47**, 415 (1975).
- [69] D.S. Greywall, *Phys. Rev. B* **27**, 2747 (1983).

- [70] B. Castaing, *J. Phys. Lett.* **41**, L 333 (1980).
- [71] J.P. Bouchaud et C. Lhuillier, *Z. Phys. B Cond. Matter* **75**, 283 (1989).
- [72] M.D. Miller et L.H. Nosanow, *J. of Low Temp. Phys.* **32**, 145 (1978).
- [73] B. Brami, F. Joly et C. Lhuillier, *J. of Low Temp. Phys.* **94**, 63 (1994).
- [74] H. Godfrin, R.E. Rapp, K.-D. Morhard, J. Bossy et Ch. Bäuerle, *Phys. Rev. B* **49**, 12377 (1994).
- [75] J. Saunders, communication privée.
- [76] K. Satoh et T. Sugawara, *J. of Low Temp. Phys.* **38**, 37 (1980).
- [77] D.S. Greywall, communication privée.
- [78] A.V. Chubukov et A. Sokol, *Phys. Rev. B* **49**, 678 (1994).
- [79] R.A. Guyer, K.R. McCall et D.T. Sprague, *Phys. Rev. B* **40**, 2570 (1989).
- [80] L. Pricapenko et J. Treiner, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2215 (1994).
- [81] M. Siqueira, J. Nyéki, C.P. Lusher, B.P. Cowan et J. Saunders, *Phys. Rev. B* **50**, 13069 (1994).

