

THESE

présentée par

Laurent PUECH

pour obtenir le grade de

DOCTEUR ès sciences physiques
de

L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER
de GRENOBLE

Sujet

**^3He polarisé : Propriétés magnétoélastiques
et comparaison avec deux systèmes à fermions lourds.
Obtention d'hélium polarisé à 50 mK
et étude des relaxations d'énergie dans ce système**

Soutenue le 28 Mars 1988 devant la commission d'examen :

Président : Ph. NOZIERES

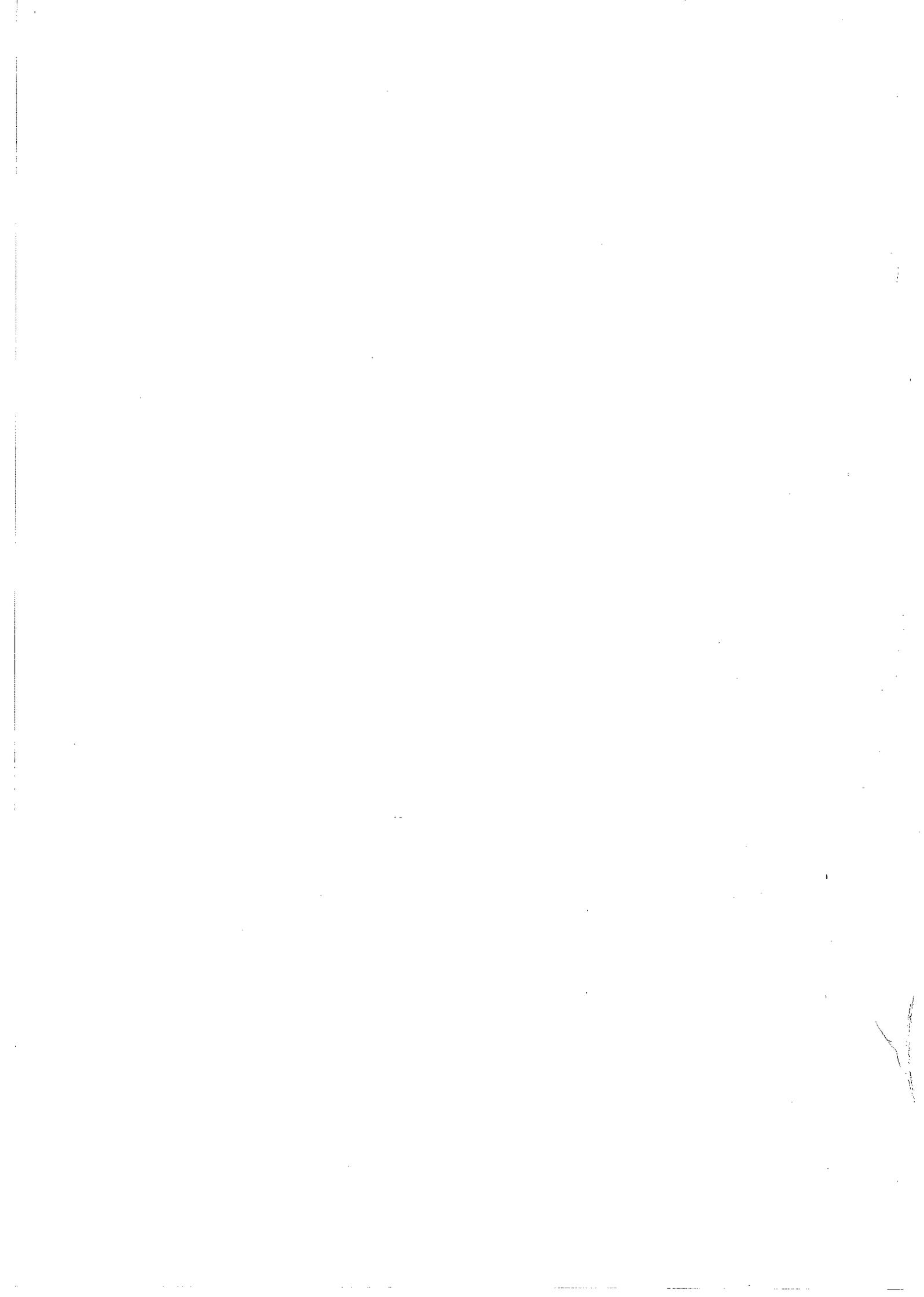
Examineurs : B. CASTAING

J. FLOUQUET

G. FROSSATI

J. LAJZEROWICZ

P.J. NACHER



A Meire,
A ma Mère.



Je remercie Philippe Nozières d'avoir accepté la présidence du jury de cette thèse, mais surtout d'avoir accompagné de ses encouragements le déroulement de ce travail.

Je remercie également Giorgio Frossati d'avoir accepté de participer à ce jury, malgré la distance. Je ne puis que souhaiter qu'il voit dans ce mémoire le travail d'un concurrent sérieux.

Je tiens à remercier également Joseph Lajzerowicz qui, en participant à ce jury, a dû, une fois de plus, lire et écouter un jargon qui ne lui est sans doute pas familier.

Je remercie également Pierre-Jean Nacher d'avoir accepté ce rôle de membre d'un jury de thèse. J'espère qu'il reconnaîtra dans ce mémoire quelques conclusions que nous avons tirées de discussions avec lui.

Je remercie bien sûr Jacques Flouquet, à plusieurs titres. Tout d'abord, c'est en grande partie grâce à son dynamisme et sous son impulsion, que j'ai abordé le sujet des fermions lourds, qui prend dans ce mémoire une place plus grande que je ne l'aurais soupçonnée. Ensuite, en tant que Directeur du laboratoire, je lui dois d'avoir pu développer ce travail dans de bonnes conditions techniques. Enfin, je le remercie d'avoir accepté de participer à ce jury.

Je remercie Bernard Castaing d'avoir proposé, dirigé et accompagné ce travail dans sa quasi-totalité. C'est principalement la façon dont il a su me communiquer son enthousiasme pour la physique, en particulier à basse température, que je souhaite saluer, et qui constitue à mon avis un modèle du genre. Je le remercie également pour l'oreille souvent indulgente qu'il a toujours prêtée à mes questions ou mes réclamations.

Je remercie très chaleureusement Pierre-Etienne Wolf qui m'a fait l'honneur de s'intéresser à nos travaux sur ^3He polarisé, pour ensuite nous faire profiter de toute sa compétence et de sa force de travail. Je souhaite qu'il trouve ici la marque de mes remerciements pour cela, mais aussi pour la chaleur des relations que nous avons.

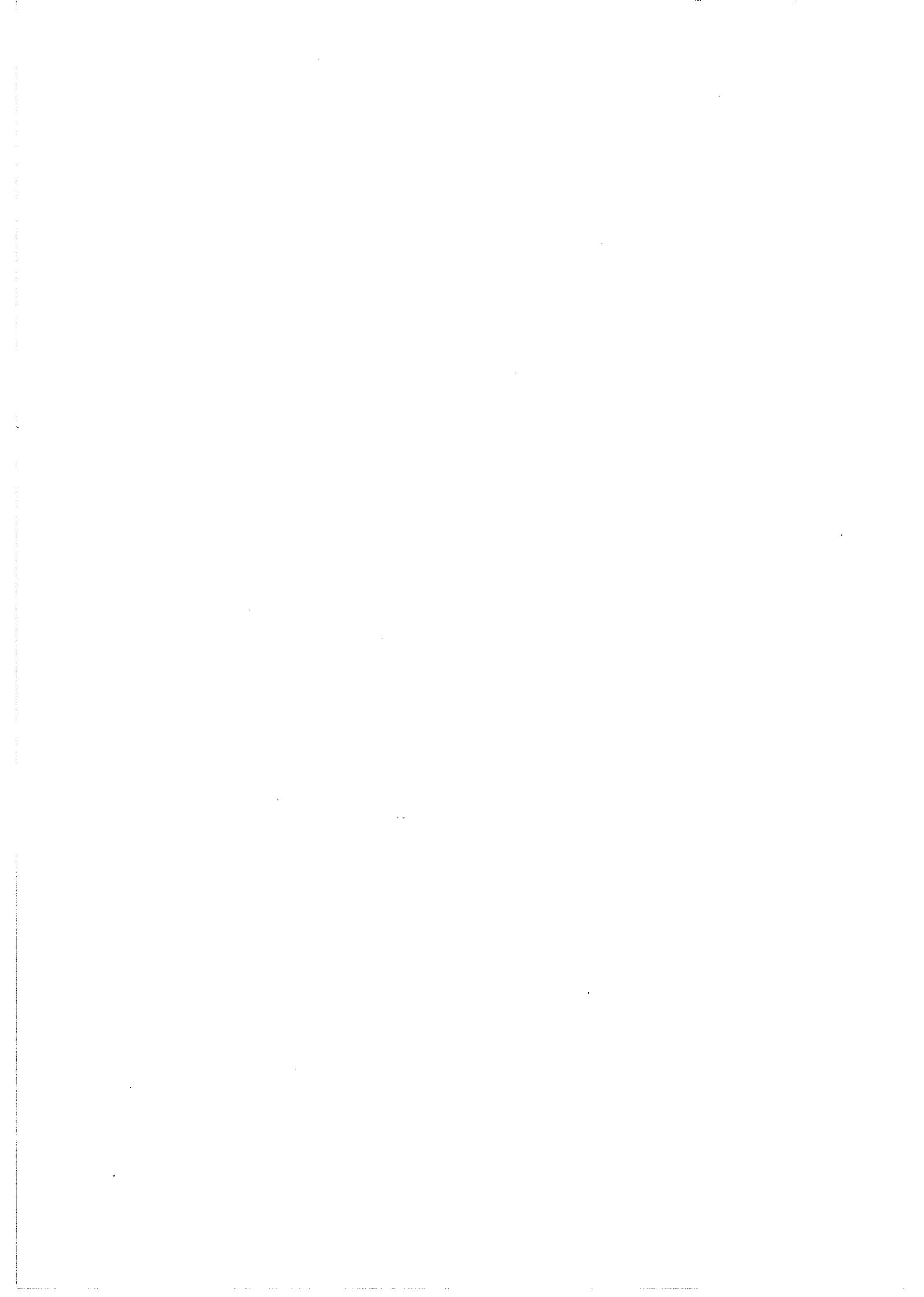
Je remercie également Grégoire Bonfait, avec qui j'ai commencé à travailler sur le ^3He polarisé, et avec lequel je partage une grande partie des travaux relatés dans ce mémoire. Qu'il sache que j'ai appris avec lui beaucoup de ce que je sais sur les expériences et les basses températures.

Lors de la réalisation de cette thèse j'ai abusé de l'aide de beaucoup que je souhaite remercier ici : J.J. Préjean, C. Paulsen, P. Haen, D. Thoulouze, A. Greenberg, M. Caussignac

J'ai également profité de l'aide ou du soutien de nombreuses personnes aussi bien ici à Grenoble, qu'à Frankfurt lors de ma visite : F. Lapiere, J.M. Mignot, J. Voiron, A. De Visser, P. Lejay, Pr Lüthi, D. Weber, I. Kouroudis., B. Hébral, H. Godfrin, M. Papoular, A. Schuhl, W. Halperin.

Ce travail n'aurait pu être réalisé sans la présence active de tous les personnels du laboratoire, dont la compétence et la gentillesse reste pour moi exemplaires.

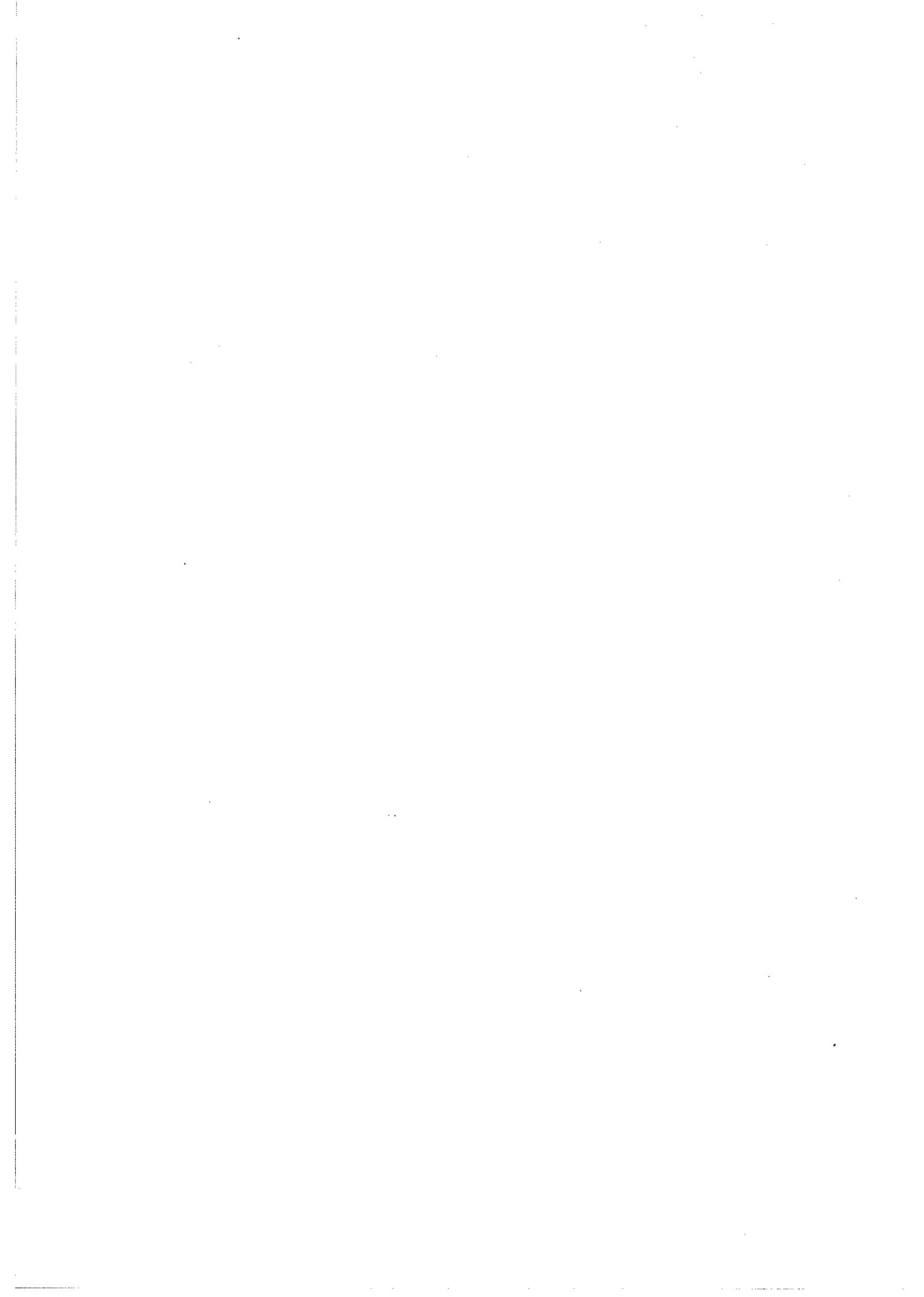
Enfin Patricia Poirier a assuré la mise en forme de ce mémoire en un temps record à partir d'un manuscrit notablement au dessus de sa température d'ordre. Qu'elle trouve ici la marque de mes remerciements sincères.



CHAPITRE I.....	1
PRESSION DE FUSION et VITESSE DU SON	
dans ^3He POLARISE.....	1
I - La pression de fusion comme test du comportement	
magnétique du ^3He	3
1) Introduction	3
2) Pourquoi la pression de fusion ?.....	5
3) Vitesse du son.....	7
4) Expérience sur la pression de fusion	9
5) Dendrites.....	13
 CHAPITRE II.....	 29
VITESSE DU SON SOUS CHAMP MAGNETIQUE DE	
CeRu₂Si₂ et UPt₃.....	29
I - Introduction.....	31
II - Caractères communs à CeRu ₂ Si ₂ et ^3He et autres fermions	
lourds	31
1) Propriétés magnéto-élastiques.....	33
2) Mesure de la vitesse du son	34
3) Commentaires sur le son transverse.....	41
4) Conclusions.....	45
 CHAPITRE III.....	 47
MAGNETOSTRICTION. SIMPLE LOI D'ECHELLE	47
II - Cellule de magnétostriction.....	74
Conclusions	75
III - Cas de UPt ₃	78
IV - Commentaires sur la loi d'échelle	79
 CHAPITRE IV.....	 85
COMPARAISON AVEC NOS RESULTATS SUR $^3\text{He}\downarrow$.....	85
I - Introduction	87
II - Travail publié	89
III - Conclusions.....	101

CHAPITRE V	103
EXPERIENCES SUR $^3\text{He}\downarrow$ A TRES BASSE TEMPERATURE	103
I - Introduction	105
II - Les choix possibles	105
III - Notre choix.....	107
 CHAPITRE VI	 119
RELAXATION D'ENERGIES DANS $^3\text{He}\downarrow$	119
I - Le principe	121
II - Refroidissement du liquide polarisé chaud	127
III - Adiabaticité.....	129
IV - Notre première cellule.....	131
 CHAPITRE VII	 143
MESURE DE L'AIMANTATION NUCLEAIRE	
A L'AIDE D'UN SQUID	143
I - Principe du flux mètre à SQUID	146
II - Notre flux mètre pour ^3He polarisé	157
A - Les précautions initiales.....	158
B - La cellule d'expérience.....	167
C - De la théorie à la pratique	168
D -Les problèmes non résolus	178
E - Sensibilité effective. Diamagnétisme de ^3He . Bruit.....	182
V - Déformation de la cellule	188
VI - Conclusions.....	189
 CHAPITRE VIII	 191
RESULTATS SUR LA RELAXATION DE LA POLARISATION NUCLEAIRE DANS LE FRITTE	191
I - Détails pratiques	193
II - Résultats d'ensemble.....	201
III - Analyse plus détaillée des relaxations	205
 CONCLUSIONS	 221

ANNEXE I- Regression pour choisir les paramètres du Chap.III.....	221
ANNEXE II-Dérivée numérique du SQUID	229
ANNEXE III-Mesure de la vitesse du son dans le ³He polarisé.....	235
REFERENCES.....	245

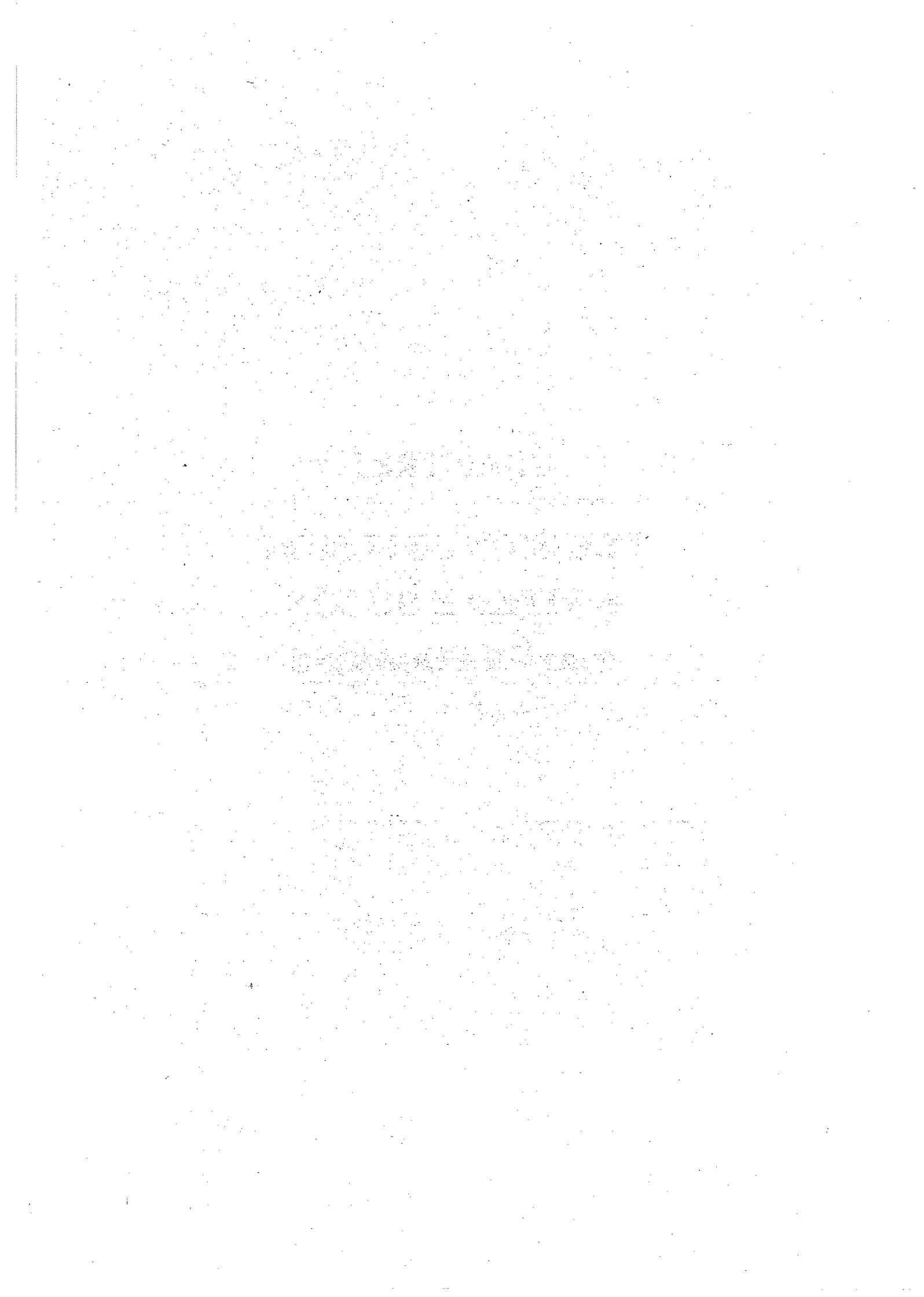


CHAPITRE I

PRESSION DE FUSION

et VITESSE DU SON

dans ^3He POLARISE



I - La pression de fusion comme test du comportement magnétique du ^3He

1) Introduction

L' ^3He liquide est vraisemblablement le plus simple système dense de fermions accessible à l'expérience.

Si ses caractères physiques sont effectivement simples:

- fermions neutres dont l'interaction est bien connue,
- système isotrope dans sa phase normale, en absence de champ magnétique,

les conditions expérimentales de requises pour l'étude de ce système sont très sévères :

- très basses températures ($T < 0,1 \text{ K}$),
- champs magnétiques intenses.

L'étude des propriétés thermodynamiques et de transport de ^3He est aujourd'hui assez complète en bas champs magnétiques y compris pour ce qui est de ses phases superfluides [1 à 6 puis 7 à 12].

Par contre, la compréhension théorique de l'ensemble de ces propriétés ne fait pas à l'heure actuelle l'unanimité, et aucune approche sans un grand nombre de paramètres ajustables n'est capable de décrire à la fois les propriétés thermiques et élastiques du liquide.

Par contre plusieurs d'entre elles conduisent à des prédictions spectaculaires pour certaines propriétés spécifiques: théorie des paramagnons [13-16], modèle de Hubbard et solutions de Gützwiler [17-20]. Récemment une approche variationnelle a, pour la première fois, donné des résultats très proches de la réalité pour l'énergie de liaison du liquide à pression nulle [21]. Ce travail fait apparaître, au plan microscopique, qu'une structure plus proche d'un ordre cristallin à courte distance, que de celle du gaz de fermions, est un bon candidat pour la description de ce liquide quantique.

D'un point de vue aussi bien théorique qu'expérimental il apparaît crucial de tester les propriétés du liquide en présence de polarisation. Par exemple la connaissance des courbes $m(H)$ permettrait de distinguer entre :

- un liquide proche de la localisation, ou l'effet de la polarisation devrait conduire à une transition vers un état fortement polarisé [19],

- un liquide proche du ferromagnétisme, pour lequel la susceptibilité différentielle devrait diminuer notablement pour des polarisation finies, à condition d'avoir une structure de bande raisonnable,

Cependant la faible valeur du moment magnétique nucléaire du ^3He conduit à des champs magnétiques prohibitifs : 100 tesla pour 30 % de polarisation.

Pour contourner cet obstacle expérimental majeur, deux méthodes ont été développées, qui autorisent des polarisations supérieures à 50 % :

- pompage optique en phase vapeur avec un laser polarisé circulairement [22]
- polarisation du solide à très basse température, en utilisant la loi de Curie du solide : $m = 50\%$ à 6 Tesla et 9 mK ; puis fusion rapide du solide polarisé : méthode Castaing Nozières [23].

Dans leur proposition pour obtenir du ^3He polarisé, Castaing et Nozières suggèrent également d'étudier l'équilibre liquide-solide, en présence de polarisation.

De fait, cette proposition s'est avérée très riche, puisqu'elle permet, en faisant certaines hypothèses simples sur le solide, de déduire de la pression de fusion, en présence de polarisation, les courbes $m(H)$.

Cette méthode a été largement mise en oeuvre [24-29], et a, de ce fait conduit à des résultats assez inattendus, certains tendant à montrer que l' ^3He liquide a effectivement une tendance métamagnétique pour une polarisation de l'ordre de 0,2 [26,29,33].

L'enjeu de ces résultats est donc tout à fait important pour notre connaissance de ce système modèle qu'est l' ^3He liquide.

Nos mesures de la pression de fusion du ^3He polarisé ainsi que la vitesse du son dans ce système ont fait la matière de la thèse de G. Bonfait, nous les présenteront rapidement dans ce chapitre pour fixer le cadre de nos travaux ultérieurs présentés aux chapitres suivants.

Dans ce chapitre nous décrivons en détail les hypothèses faites pour interpréter les résultats sur la pression de fusion, ainsi que les faits expérimentaux et théoriques qui soutiennent ces hypothèses.

Nos conclusions sur le comportement magnétique du ^3He , tant du point de vue de la pression de fusion que de celui de la vitesse du son seront alors rappelées, et serviront d'introduction au chapitre suivant..

2) Pourquoi la pression de fusion ?

Expérimentalement, le temps de relaxation de la polarisation nucléaire dans $^3\text{He} \downarrow$ est très long, ($10 - 10^3$ sec), comparé aux temps caractéristiques de thermalisation dans le liquide ($\tau \sim 10^{-12}$ s/T²), d'échange dans le solide (10^{-7} s) ou d'échange d'atomes entre liquide et solide (10^{-10} s). Ce dernier point à l'importante conséquence [23], que, à l'échelle de T₁, les spins \downarrow et \uparrow , pouvant être considérés comme espèces chimiques distinctes. Les potentiels chimiques μ_{σ}^{SL} dans le liquide et le solide, sont alors égaux séparément pour les spins \downarrow et les spins \uparrow . Une manière élégante d'exprimer cette égalité est de faire intervenir le champ effectif $2\mu_N H^* = \mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}$, ou μ_N est le moment nucléaire de ^3He , et le potentiel chimique $\mu = \frac{\mu_{\downarrow} + \mu_{\uparrow}}{2}$.

Les conditions $\mu_{\sigma}^S = \mu_{\sigma}^L$ s'écrivent alors : $\mu^L = \mu^S$ et $H_L^* = H_S^*$ pour avoir un équilibre liquide solide.

Les équations d'état magnétiques du liquide et du solide indiquent alors comment varie la pression de fusion avec le champ effectif :

$$+ v_S dP_f - m_S dH^* = v_L dP_f - m_L dH^*$$

ou v_i et m_i sont les valeurs molaires et les aimantations dans le liquide et le solide. Cette équation peut être écrite sous la forme d'une relation de Clausius-Clapeyron :

$$\frac{\partial P_f}{\partial H^*} = \frac{(m_s - m_L)}{(v_s - v_L)} \quad (I-1)$$

Dans cette équation, m_s et m_L doivent être considéré comme fonction de H^* . En pratique : $m_s(H^*) > m_L(H^*)$ alors que $v_s < v_L$. La pression de fusion est abaissée en présence de polarisation. Pour les petites aimantations (1) se réduit à : $\Delta P = -8 \text{ bars } m_L^2$ si $\chi_L = \frac{\chi_S}{2} = \frac{1}{R \cdot 0.25 \text{ K}} (3 \cdot 10^{-3} \text{ Teslas}^{-1})$ pour $T = 0,12 \text{ K}$.

On peut appliquer la relation (1) pour trouver les courbes $m_L(H^*)$. Pour ce faire, il faut mesurer $|\Delta P|$, abaissement de la pression de fusion par rapport à sa valeur à $m_L = m_S = 0$.

Il faut également connaître :

- ou bien m_S , polarisation du solide à l'interface. Dans ce cas, on peut alors trouver $H^* = \frac{m_S}{\chi_S}$, si on suppose χ_S , donné par la loi de Curie, et de (1), on peut trouver $m_L(H^*)$,

- ou bien m_L , polarisation du liquide à l'interface. L'équation (1) est alors plus difficile à manipuler que dans le cas où m_S est connue, mais on peut quand même remonter à $H^*(m_L)$, en écrivant :

$$\frac{\partial P}{\partial m_L} = \frac{(m_S - m_L)}{(v_s - v_L)} \cdot \frac{\partial H^*}{\partial m_L} \text{ et } m_S = \chi_S H^* \text{ (ou bien } m_S = \text{th } \frac{\mu_N H^*}{k_B T})$$

La situation expérimentale, présente dans le travail présenté ci-dessous est la suivante : On mesure la polarisation moyenne m dans la cellule, où environ 90 % du volume est sous forme solide.

Le problème est alors de relier m à m_L ou m_S . Ce point qui est crucial pour remonter au comportement de $m_L(H^*)$ à partir de (1), a été la source de difficultés, avant que l'hypothèse $m = m_L$ s'impose, aussi bien à cause de considérations expérimentales

[21] que théoriques [32]. Cette hypothèse nous a permis [33] d'interpréter de façon cohérente nos résultats, ainsi que ceux obtenus, par Archie à Stony Brooks [29].

Dans les pages suivantes, j'ai réuni nos trois travaux publiés sur cette question, qui donne une idée fidèle, aussi bien des résultats expérimentaux bruts, que de nos réflexions sur l'interprétation de ces résultats.

3) Vitesse du son

Nos résultats sur la mesure de la vitesse du son, largement décrits dans la thèse de G. Bonfait, sont rappelés à l'annexe III, constituée par la publication de ces résultats (Euro-Phys. Lett., **3**, 489, (1987)). Je reviendrai en détail sur la linéarité de C avec m^2 , au chapitre IV (p. 82).



Strongly Polarized Liquid ^3He : Experimental Access to the Melting Curve

G. Bonfait, L. Puech, A. S. Greenberg, G. Eska,^(a) B. Castaing, and D. Thoulouze
*Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, associé à l'Université Scientifique et Médicale de Grenoble,
 Centre National de la Recherche Scientifique, F-38042 Grenoble Cédex, France*

(Received 4 January 1984)

By rapid decompression of 55% polarized solid ^3He , we have measured a depression of the liquid-solid melting curve as large as 1 bar at 100 mK. It is found that the lowering ΔP depends on the global magnetization m . We explain this by a "dendritic melting" which ensures the homogeneity of the magnetization in each phase. ΔP has the expected m^2 dependence for small m . However, the slope $d\Delta P/dm^2$ is three times the expected value. A possible explanation is a rotation of the magnetization on melting.

PACS numbers: 67.50.-b

Since it has been predicted^{1,2} and experimentally demonstrated³ that one can work with highly polarized liquid ^3He , many important theoretical works have been published.⁴⁻⁶ In spite of considerable improvements, especially in the Monte Carlo studies,⁴ the question remains whether important deviations from the liquid ^3He low-field behavior are to be expected for even moderate polarizations. A direct consequence of the increase in the liquid energy when polarized is the lowering of the melting pressure.

We report here the first measurements of this depressed melting pressure. As in Ref. 3, we obtain the polarized liquid by rapid decompression of the polarized solid. In an equilibrium liquid-solid mixture a measurement of the temperature T , and pressure P_T , determines the static melting curve. At any instant following the decompression, the difference between P_T (deduced from the measurement of T) and the pressure P of the polarized liquid-solid mixture is the lowering ΔP . ΔP is observed to be related reproducibly to the measured magnetization. We have observed ΔP as large as 1 bar at 100 mK, which under static conditions could only be obtained with a magnetic field of the order of 90 T.

The experimental arrangement is shown in Fig. 1. The cell is an epoxy Pomeranchuk cell (PC) of the type used in previous experiments,⁷ and is located in the mixing chamber of a dilution refrigerator which can cool continuously to 3 mK. The ^3He volume of the PC is about 8 cm³. There is a small horizontal NMR coil (diam = 3 mm, $l = 10$ mm) tuned to 215 MHz (6.6 T) in the ^3He space, and it is centered in a superconducting solenoid.

The magnetization is measured by sweeping the NMR line every 1.6 s and integrating the cw signal with a computer. The absolute value of the magnetization is obtained by comparison to the all-liquid signal and checked with the T^{-1} dependence of the all-solid magnetization.

A capacitive pressure gauge⁸ is placed in the

upper part of the PC. In the lower part is located a Matsushita 68- Ω carbon resistor which is our principal thermometer. Both the pressure gauge and the thermometer are measured by a Barras Provence bridge.⁹ There is one heater near the pressure gauge and a second near the carbon thermometer.

To achieve high-field decompression we begin by

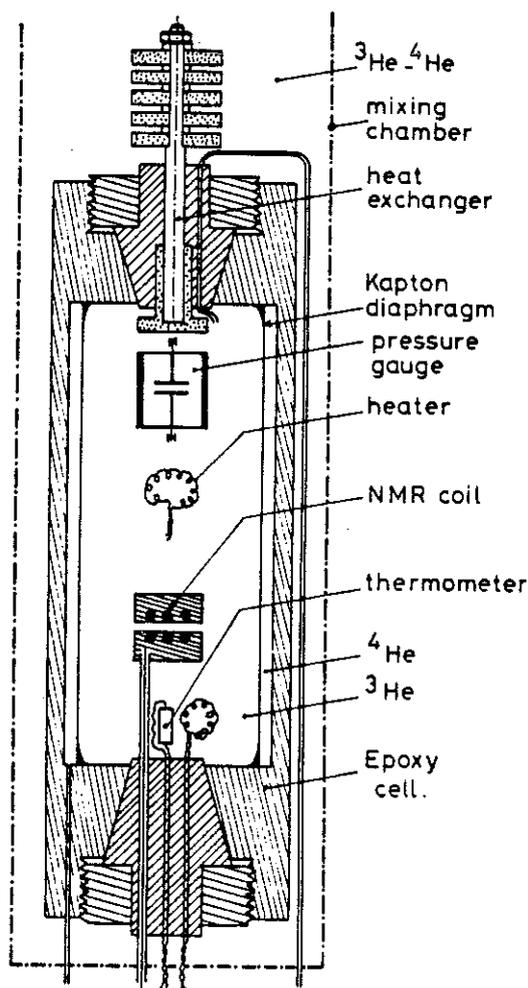


FIG. 1. The Pomeranchuk cell.

filling the cell with 100% solid close to the minimum of the melting curve. Cooling commences with the pressure slightly above melting (30.5 bars), the ^4He pressure at zero, and the capillary blocked. This gives a constant mass of ^3He in the PC. The precooling typically takes 1 d, during which the growth of the magnetization is monitored. At the lowest temperature (6 mK), the ^4He pressure is increased, at a rate of ~ 1 bar/h. Starting with 50% solid at zero ^4He pressure, we end with 100% solid at 6 mK. The solid magnetization in 6.6 T is then 55%.

Rapid decompression of ^4He is accomplished by opening a valve at room temperature. All decompressions gave the same final temperature (105 ± 3 mK). The evolution of the pressure (solid line), the temperature (dashed line), and the magnetization after a decompression are shown in Fig. 2. We have expressed the temperature measured by the resistance in terms of P_T .

From Fig. 2 it is seen that the pressure P is well below P_T . Moreover, the interdependence between $\Delta P = P_T - P$ and the measured magnetization is clearly shown by their parallel evolution, and by the reproducibility of the ΔP vs m^2 curve (see below Fig. 4). We consider this an *experimental proof* of this dependence. The relaxation time of the magnetization is $T_1 \cong 12$ s, to be compared to $\cong 300$ s in the bulk liquid.^{3,10}

After a decompression we applied heat pulses using the top heater. It is found that within less than 2 s, P_T and P reequilibrate with each other.

Not all the ΔP stabilize to a zero value. As discussed below this could be due to a mechanical relaxation of the resistance because of the time (≈ 1 h) between the end of the decompression and the

calibration of P vs T which gives us P_T . In any case all the calibrations lie within 10 mbar or 0.5 mK.

The same experiments have been performed in zero external field. Starting from the same low temperature (6 mK), the ^4He was decompressed to 3 bars (instead of 0) in order to obtain the same final temperature ≈ 100 mK. This is shown in Fig. 3, where $\Delta P(H=0)$ (dashed line) is as before $P_T - P$. We have shifted it up (it is in fact always negative) although only its variation is of importance. This variation could be due to a slow mechanical relaxation of the resistor. Whether or not we subtract it from the high-field case does not significantly change the results. Indeed, the largest $\Delta P(H=0)$ variation occurs for short times where $\Delta P(H)$ is also large. Such a mechanical relaxation could in turn explain why $\Delta P(H)$ does not stabilize at a zero value. We do not consider the zero to be significant, and in Figs. 3 and 4 the origin for $\Delta P(H)$ is arbitrary.

In the discussion that follows, we shall consider that the exchange of atoms between liquid and solid is sufficiently rapid in order to ensure separately the equality of chemical potentials for the up spins $\mu_{+L} = \mu_{+S} = \mu_+$, and down spins $\mu_{-L} = \mu_{-S} = \mu_-$, between the two phases.

The difference $(\mu_+ - \mu_-)$ acts as an effective field H_{eff} which gives rise to ΔP (Ref. 2). The fact that ΔP is related to the global measured magnetization is at first puzzling. *A priori* ΔP depends on the magnetization of both phases at the interface. The explanation is most likely the following.

Before the decompression the solid with 55% polarization is in equilibrium with a liquid which is nearly unpolarized (3%). In the early stage of the decompression a nearly equal number of up and

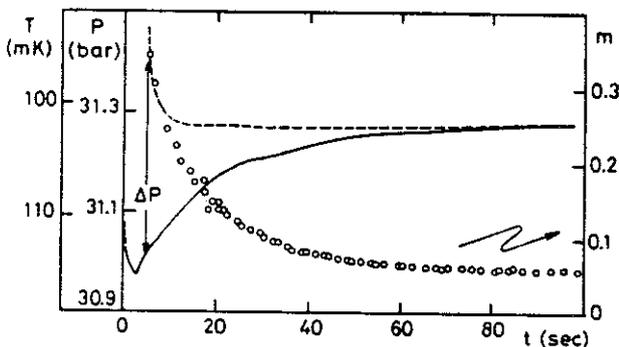


FIG. 2. Time evolution of the various measurements for $H = 6.62$ T after a decompression ($t = 0$). Circles: magnetization; solid line: pressure; dashed line: equilibrium melting pressure as deduced from the carbon resistor. The corresponding temperature scale may be read on the far left-hand axis.

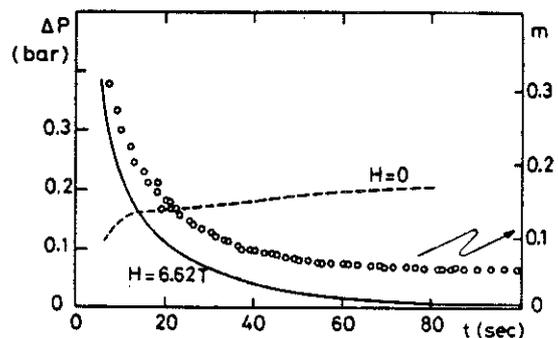


FIG. 3. Comparison of ΔP after a zero-field (dashed line) and high-field (solid line) decompression. Note the parallel evolution of the latter with the magnetization (circles). We have arbitrarily shifted the $\Delta P(H=0)$ curve to the center of the figure, however, it is only its variation with time that is of interest.

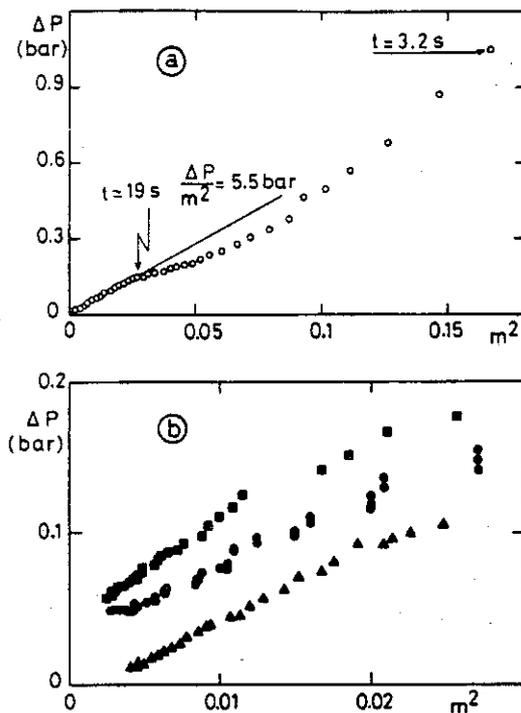


FIG. 4. (a) ΔP vs m^2 during the relaxation process. (b) Relaxations for times longer than 19 s showing both the linear dependence of ΔP vs m^2 , and the reproducibility of the slope. The ΔP curves have been shifted for clarity of presentation.

down spins enter the liquid state. This produces an overpolarization of the solid at the interface, and gives rise to H_{eff} which in turn lowers the equilibrium pressure.² But because of the slow spin diffusion the bulk solid remains moderately polarized and thus is well below its melting pressure.

This situation of melting limited by a diffusion process classically yields an instability of the interface. However, here the situation would be the reverse of the classical case: It would be the liquid which penetrates as "dendrites" into the solid phase. This would break the solid into parts of size d . Such a process stops only when the spin diffusion has homogenized the solid magnetization. However, there is a lower limit to d because the liquid-solid surface tension $\bar{\alpha}$ lowers the melting curve. As an order of magnitude, $d \cong 1 \mu\text{m}$ seems reasonable, giving a diffusion time of 1 s (much smaller than T_1) and a capillary depression of several tens of millibars (taking $\bar{\alpha} = 10^{-4} \text{ J/m}^2$ for the ^4He liquid-solid interface).¹¹ We can thus consider that the whole liquid and solid phases are in equilibrium under some effective magnetic field H_{eff} , which slowly relaxes to the external field.

There is also the question of the susceptibility to be attributed to the solid phase. The detailed bal-

ance principle suggests that the temperature to be used is that of the thermal bath which ensures the exchange of atoms between solid and liquid, i.e., phonons of both phases or quasiparticles of the liquid. These baths equilibrate rapidly and it is the phonon temperature which is measured by the thermometer.

In summary, it is reasonable to compare the evolution of ΔP versus the magnetization with the theoretical prediction. The observed magnetization is a combination of those of the liquid and solid: $m = (1 - x_S)m_L + x_S m_S$, where x_S is the fraction of atoms in the solid phase. $m_i = M_i/M_{0i}$, where M is the molar magnetization and M_0 is the magnetization with complete polarization.

In the linear regime, $M_i = \chi_i H_{\text{eff}}$. Then $m_L = (\chi_L/\chi_S)m_S$ and

$$(m/m_S) = [x_S + (1 - x_S)(\chi_L/\chi_S)] = x_{\text{eff}}$$

x_{eff} can be obtained by comparing the magnetization at the end of the relaxation with the all-solid magnetization at the same temperature. It can also be deduced from the volume change of the PC or from the liquid low-temperature magnetization and the final temperature. All these determinations agree within the experimental uncertainties: $x_{\text{eff}} = 0.95 \pm 0.02$. Equating chemical potentials, $d\mu_i = V_i dP + M_i dH$, for the liquid and solid (constant T), considering the above, gives

$$\Delta P = \frac{1}{\Delta v} \frac{(\chi_S - \chi_L)}{2\chi_S^2} M_S^2 = \frac{RT}{2\Delta v} \left[1 - \frac{\chi_L}{\chi_S} \right] m_S^2,$$

where $\chi_S^{-1} = RT/M_{0S}^2$ and Δv is the difference in molar volume between the two phases.

Figure 4(a) shows the total relaxation as ΔP vs m^2 in one experiment. From the above developments we consider that the first points, 3 s after the decompression, give ΔP to within 10%. We thus have observed depressions of the melting curve as large as 1 bar.

Figure 4(b) shows the end of the relaxation for several decompressions. There is a clear and reproducible linear dependence of ΔP vs m^2 .

The experimental slope is $d\Delta P/dm^2 = (6 \pm 1)$ bar. This disagrees with the above thermodynamical calculation: $d\Delta P/dm_S^2 = 1.9$ bars at $T = 1.05$ mK (using $x_{\text{eff}} = 0.95$ gives $m_S^2 = 1.1 m^2$).

This discrepancy can hardly be reduced, even if we suppose that χ_L or χ_S does not have its usual equilibrium value; varying χ_S at constant χ_L cannot significantly enhance the theoretical slope. On the other hand, even with $\chi_L = 0$ the experimental value cannot be obtained.

One explanation¹² is that the magnetization could

have turned in the earlier stage of the decompression.¹³ The measured m would then be only one component of the total magnetization. This rotation may be due to the demagnetizing fields appearing during the "dendritic" melting. Another possibility is that, on melting, when the atoms pass through the interface, they precess around a strong local exchange field.¹⁴ This would assume that some magnetic order is present in the interface at 6 mK, as predicted by some authors.¹⁵

In conclusion, for the first time the equilibrium between polarized liquid and solid ^3He has been observed 1 bar below the zero-field melting curve. The magnetization m is clearly correlated to ΔP and thus to H_{eff} at the interface. Although the slope $d\Delta P/dm^2$ is greater than expected, the clear linear dependence of ΔP with m^2 shows that m is proportional to H_{eff} at least towards the end of the relaxation.

We would like to thank K. Neumaier, B. Hebral, and particularly H. Godfrin for experimental help as well as for fruitful discussions. This work was supported in part by the Direction des Recherches, Etudes, et Techniques under Contract No. 79-270 and by the European exchange program of the Centre National de la Recherche Scientifique.

(a)Permanent address: Walther Meissner Institut für Tieftemperaturforschung, Garching, West Germany.

¹C. Lhuillier and F. Laloé, *J. Phys. (Paris)* **40**, 239 (1979).

²B. Castaing and P. Nozières, *J. Phys. (Paris)* **40**, 257 (1979).

³G. Schumacher, D. Thoulouze, B. Castaing, Y. Chabre, P. Segransan, and J. Joffrin, *J. Phys. (Paris), Lett.* **40**, L143 (1979); M. Chapellier, G. Frossati, and F. B. Rassmussen, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 904 (1979).

⁴C. Lhuillier and D. Lesvesque, *Phys. Rev. B* **23**, 2203 (1981); E. Manousakos, S. Fantoni, V. R. Pandharipande, and Q. N. Usmani, *Phys. Rev. B* **28**, 3770 (1983).

⁵K. S. Bedell and K. F. Quader, to be published. See a discussion by M. T. Béal-Monod and O. Valls, to be published.

⁶H. R. Glyde and S. I. Hernadi, in *Quantum Fluids and Solids-1983*, edited by E. D. Adams and G. G. Ihas, AIP Conference Proceedings No. 103 (American Institute of Physics, New York, 1983).

⁷H. Godfrin, G. Frossati, A. S. Greenberg, B. Hébral, and D. Thoulouze, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 1695 (1980).

⁸A. S. Greenberg, G. Guerrier, M. Bernier, and G. Frossati, *Cryogenics* **22**, 144 (1982).

⁹J. L. Bret and J. P. Faure. These bridges have been developed in the Centre de Recherches sur les Très Basses Températures-Centre National de la Recherche Scientifique and commercialized by Barras Provence, 12 rue Ampère, 38000 Grenoble.

¹⁰We have also observed $T_1 \cong 300$ s when the whole solid was melted.

¹¹S. Balibar, D. O. Edwards, and C. Laroche, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 782 (1979).

¹²We have considered and rejected the possibility that we do not obtain liquid by decompression but a metastable phase with a smaller Δv . However, the entropy of such a phase would be near the liquid value in order to warm to $T \cong 100$ mK. It would thus be a stable phase at lower temperature, which is not observed.

¹³R. Castaing, private communication.

¹⁴Such an effect has been predicted with dilute gases: C. Lhuillier and F. Laloé, *J. Phys. (Paris)* **43**, 197, 225 (1982).

¹⁵A. E. Meierovich and B. Z. Spirak, *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **34**, 575 (1981) [*JETP Lett.* **34**, 551 (1981)].

5) Dendrites

a) Introduction

Dans les pages suivantes, nous présentons deux publications qui décrivent en détail les hypothèses nécessaires à l'interprétation des mesures de pression de fusion.

Le principe est de relier l'aimantation m_L du liquide à l'interface, à l'aimantation moyenne m , mesurée par RMN.

Dans l'hypothèse d'un interface plan, on se convainc aisément que $m = m_L$ (cf. Castaing-Nozières, [23]). Nous montrons en fait que l'interface plan est instable, et que les dendrites étaient nécessairement présentes. Dans ce cas, il faut comparer le rayon de courbure, des dendrites, à la longueur de diffusion dans le solide, $\frac{D_S}{V}$ ou V est la vitesse de l'interface.

Dans l'article qui suit, nous montrons que $\rho > \frac{D_S}{V}$ pour des vitesses suffisamment élevées. Dans l'article suivant, nous montrons que les vitesses présentes dans notre expérience assurent en fait $\rho > \frac{D_S}{V}$. Nous en déduisons des courbes $m_L(H^*)$, qui donnent la bonne susceptibilité initiale, mais montrent qu'une tendance métamagnétique existe dans le liquide.

b) Présentation qualitative

Le calcul présenté dans l'article suivant est assez sophistiqué, et sans doute difficile à suivre. Une analyse qualitative du mécanisme de déstabilisation de l'interface plan est donc souhaitable. Elle est présentée dans ce paragraphe, en utilisant les notations de l'article suivant. v est la vitesse de l'interface plan, et ξ est une petite déformation transverse de vecteur d'onde \vec{k} , de cet interface. Des références sont faites aux équations de la publication, par leur numéro.

Destabilisation

On peut évaluer quel serait le taux d'accroissement de ξ pour un mode de vecteur d'onde k , si la tension de surface était nulle. Pour ce faire, il faut remarquer que

dans ce cas, la vitesse locale de l'interface ($v + \dot{\xi}$), qui est donnée par (9), est plus grande dans les régions où $\frac{\partial m_S}{\partial z}$ est plus grand.

Lorsque $\tilde{\alpha} = 0$, l'aimantation est uniforme le long de l'interface, aussi bien du côté liquide $m_L = m_\infty$, que du côté solide : $m_S = m_L + \Delta$ où $\Delta = (m_S^\circ - m_S^\circ)$ est le saut d'aimantation à l'interface.

$$\text{On a en fait } v + \dot{\xi} = - \frac{D_S}{\Delta} \left(\frac{\partial m_S}{\partial z} \right) \quad (\text{I})$$

$$\text{Par ailleurs, si } m_S \text{ est uniforme, } \delta m_S = \frac{V \Delta}{D_S} \xi \quad (h = 0 \text{ dans 14})$$

$$\text{et } \left(\frac{\partial m_S}{\partial z} \right) = - \frac{V \Delta}{D_S} + \frac{\Delta V^2 \xi}{D_S^2} - q_s \frac{V \Delta \xi}{D_S} \quad (\text{cf. 12}) \quad (\text{II})$$

(I) et (II) permettent alors d'évaluer le temps de croissance de ξ :

$$\frac{1}{\tau_{\text{acc}}} = \frac{\dot{\xi}}{\xi} = V \left(q_s \frac{V}{D_S} \right).$$

Stabilisation

Le mécanisme qui freine les avancées de l'interface est le suivant : la tension de surface implique un champ non uniforme le long de l'interface donné par (18) ; cette inhomogénéité de h est associée à une valeur non uniforme de m_L : $\delta m_L = \chi_L h$.

Cette inhomogénéité entraîne des courants d'aimantation J_L dans le liquide sur une épaisseur $l/q_L = l$

$$l J_L \approx D_L \delta_L k / q_L$$

Ce courant va relaxer le surplus d'aimantation stocké dans les creux de l'interface :

$$\delta M \approx \frac{\Delta \xi}{k} \text{ par } 1/2 \text{ longueur d'onde}$$

On obtient ainsi le taux de relaxation des gradients de l'aimantation :

$$\frac{1}{\tau_{rel}} = \frac{l_{\alpha}}{\delta M} =$$

$$= D_s l_{\alpha} k^4 / q_L \text{ ou } l_{\alpha} \text{ est donné par (24)}$$

Bilan

$$\text{On en déduit } \gamma = \frac{1}{\tau_{acc}} - \frac{1}{\tau_{rel}} = v \left(q_s - \frac{v}{D_s} \right) - \frac{D_s l_{\alpha} k^4}{q_L}$$

Savoir si un mode est instable, consiste à connaître le signe de γ . C'est à ce stade que la discussion de la condition (A) est utile :

. Les modes $k < \frac{v}{D_L}$, sont à une grande longueur d'onde par rapport à D_s/v , et conduiront à des rayons de courbure très supérieurs à D_s/v , il est donc inutile d'étudier ce cas. On peut prendre $q_L \approx k \gg \frac{v q_L}{D_L}$.

Soit :

$$\frac{1}{\tau_{rel}} = D_s l_{\alpha} k^3$$

. Par contre, on peut vérifier qu'en fait les modes caractéristiques sont à $k < \frac{v}{D_s}$.

Dans notre article, nous supposons cette condition réalisée et vérifions la consistance du résultat si $V \geq \frac{D_s}{l_{\alpha}}$. On peut en fait examiner les deux cas dans (7) :

$$* \text{ si } k < \frac{v}{D_s} : q_s \approx \frac{v}{D_s} \text{ alors que } q_s - \frac{v}{D_s} \approx \frac{k^2}{q_s} = \frac{D_s k^2}{V} \text{ et donc } \frac{1}{\tau_{acc}} \approx D_s k^2$$

$$* \text{ si } k > \frac{v}{D_s} : q_s \approx k \text{ et donc } \frac{1}{\tau_{acc}} \approx V k.$$

Et au total

$$* k < \frac{V}{D_S} : \gamma \approx D_S k^2 (1 - l_\alpha k)$$

$$* k > \frac{V}{D_S} : \gamma \approx V k \left(1 - \left(l_\alpha \frac{D_S}{V} k^2 \right) \right)$$

c) Discussion

* Le premier cas est celui étudié dans notre article, il conduit au mode le plus instable : $k \approx 1/l_\alpha$. Sa longueur d'onde est plus grande que $\frac{D_S}{V}$ si $V > \frac{D_S}{l_\alpha} = V_1$.

* Le deuxième est celui étudié traditionnellement quand $D_L \lesssim D_S$ (voir [44], ref. (6) de l'article). Il conduit au mode le plus instable : $k^2 \approx \frac{V}{l_\alpha D_S}$.

On peut évaluer :

$$\frac{k}{D_S} = \left(\frac{D_S}{l_\alpha V} \right)^{1/2} = \frac{V_1^{1/2}}{V}$$

On trouve ainsi que la première analyse est correcte si $V > V_1$, auquel cas $k < \frac{V}{D_S}$ ($m \approx m_L$), alors que la deuxième est valable pour les petites vitesses $V < V_1$, auquel cas $k > \frac{V}{D_S}$, où l'hypothèse $m \approx m_L$ devient douteuse.

Cette analyse approchée permet de comprendre le calcul présenté dans notre article, et montre bien que la vitesse au-delà de laquelle l'hypothèse $m_\infty \approx m_L$ est valable est bien $V_1 = \frac{D_S}{l_\alpha}$. Au-dessous de cette vitesse, les longueurs caractéristiques de déformations de l'interface deviennent petites devant $\frac{D_S}{V}$.

Comparaison avec les expériences

Toute la difficulté consiste à évaluer la vitesse de dendrites V , pour la comparer à $V_1 = \frac{D_S}{l_\alpha}$.

L'analyse que nous proposons, repose sur le simple fait qu'une fusion à la vitesse $\dot{\Omega}$ est due à un déplacement à la vitesse $\dot{\Omega}/S$ d'une interface plan de surface S . S'il n'y a pas de nucléation homogène, et que la nucléation n'a lieu que sur les bords, S doit être pris égal à la surface de la cellule, et $\frac{\dot{\Omega}}{S} \approx 1 \cdot \dot{X}$ ou l est le rapport V/S de la cellule et \dot{X} le taux de production de liquide ($\approx 10\%/30$ s). Si l'interface ne reste pas plan, cela signifie que les dendrites vont plus vite que $\frac{\dot{\Omega}}{S}$.

Nucléation

La diffusion étant rapide sur les petites longueurs, il est possible de fabriquer des petites gouttes de liquide sous aimantées par rapport à m_∞ , et donc à pression plus élevée que pour $m_L = m_\infty$. Le point important est de savoir si les ΔP existants (~ 1 Bar) sont suffisants pour pouvoir passer la barrière énergétique de nucléation.

L'évaluation des barrières de nucléation dans l'hélium conduit pour des ΔP de l'ordre de 1 bar à des rayons critiques grands :

$$r^* \approx 40 \text{ \AA} \text{ si } \tilde{\alpha} = 2 \cdot 10^{-5} \text{ J/m}^2$$

et surtout des barrières énergétiques élevées :

$$4\pi r^{*2} \tilde{\alpha} = 4 \cdot 10^{-21} \text{ Joules } (4 \cdot 10^2 \text{ K !})$$

Ceci semble interdire absolument la nucléation homogène et soutient l'hypothèse d'une interface connexe, issue des bords de la cellule.

d) Conclusion

Nous proposons un mécanisme précis de fusion pour le solide polarisé, en accord avec la pente initiale de ΔP versus m^2 . Selon toute probabilité, ce mécanisme est correct, même au-delà du régime où $\Delta P \propto m^2$, ce qui nous a conduit à conclure à une réelle tendance métamagnétique du liquide. Il n'en reste pas moins que des doutes subsistent quand à la validité de notre analyse. En particulier, nous avons, à l'issue de notre expérience sur la vitesse du son, tenté de reproduire nos résultats sur la courbe de fusion. Il faut bien admettre que nous n'y sommes pas arrivés puisque nous avons obtenu des pentes de $\frac{\Delta P}{m^2}$ encore plus grandes. Ceci implique en fait $m_L > m_\infty$, qui est inexplicable, sauf si l'aimantation du solide relaxe si vite, que celle du liquide est en retard...

Notre conclusion est donc que la tendance métamagnétique du liquide doit être confirmée par d'autres types d'expériences.

Classification
 Physics Abstracts
 68.70 - 67.50

POLARIZED ^3He : DENDRITIC MELTING

L. PUECH, G. BONFAIT and B. CASTAING

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

(Reçu le 16 décembre 1985, accepté le 17 février 1986)

Résumé

Nous montrons, par une analyse similaire à celle de Mullins et Sekerka, que l'interface de fusion d'un solide ^3He polarisé est en général instable. De notre analyse nous tirons un ordre de grandeur du rayon de courbure à l'extrémité des dendrites de liquide. Nous montrons qu'il existe une gamme de vitesses d'interface pour laquelle ce rayon est supérieur à la longueur de diffusion de l'aimantation dans le solide.

Abstract

We show, by a Mullins and Sekerka like analysis, that melting polarized solid ^3He gives generally an unstable liquid-solid interface. From our analysis we obtain an order of magnitude estimation of the radius of curvature at the tip of the liquid dendrites. We show that, in some range of interface velocities, this radius is larger than the diffusion length in the solid.

1. Introduction

The experiments of Bonfait et al (1) and Dutta et al (2) recently raised the hope of obtaining non trivial knowledge of polarized liquid ^3He . Both groups obtained a polarized liquid-solid in equilibrium by decompression of a low temperature, high field polarized solid (3). The problem is then to determine the effective field H^* corresponding to the measured average magnetization.

Bonfait et al (1) have suggested that melting in such conditions might be dendritic. The hypothesis was then made of a fine division of the solid yielding that the measured magnetization m is also that of the solid at the interface $m = m_S = \chi_S H^*$. This interpretation was hardly in accord with the low magnetization data, obtained at the end of the relaxation (1). But it is even more clearly in disagreement with the results of Stony Brook (2). The remark then has been made (4) that, if one assumes that the interface during melting has a radius of curvature larger than the diffusion length in the solid, it is the liquid magnetization at the interface, m_L , which is equal to the measured magnetization $m = m_L = \chi_L H^*$ ($m = m_L$ hypothesis).

In this paper, by a linear stability analysis similar to the Mullins-Sekerka (5) one, we show that liquid dendrites really occur in these melting conditions. We further obtain an order of magnitude estimate for the radius of curvature at

the tip of the dendrites. Comparing it to the diffusion length in the solid gives the minimum interface velocity for which the $m = m_L$ hypothesis is valid.

2. The Planar Instability

As we consider only times shorter than the spin-lattice relaxation time T_1 , our situation is that of a mixture of plus and minus spins. The problem is thus very similar to the Mullins and Sekerka (5) one which has been deeply investigated (see for instance the review by Langer (6)). There are however two important differences in our case. First we consider melting and not growing of the solid, and second we do not neglect, as is often done, the diffusion in the solid phase.

For the particular system of interest here (liquid-solid ^3He), the temperature and the pressure can be considered as uniform in the sample. Indeed, as remarked in reference (1), it is the phonons of the solid and the quasi particles of the liquid which govern the exchange of atoms (and thus of magnetization) between the two phases. It is thus their common temperature which is important thermodynamically. The phonon diffusion in the solid is very rapid and it results in heat conductivity which is larger in the solid than in the liquid above 30 mK. On the liquid side the heat and spin diffusions are of the same order of magnitude but, as we shall see, the instability length is much shorter than the diffusion length in the liquid, and the above remarks show that

the high conductivity of the solid make the temperature uniform at the interface.

Let us consider a plane interface moving in the solid direction. The steady state situation is then for the magnetization, in the frame of the unperturbed interface :

- in the liquid ($z < 0$)

$$m(z) = m_{oL} = \text{const.} \quad (1)$$

- in the solid ($z > 0$)

$$m(z) = m_{oS} + (m_{oS} - m_{oL}) e^{-\frac{vz}{D_S}} \quad (2)$$

v is the velocity of the interface and D_i the magnetization diffusivity in the phase i ($i = S, L$). We assume here pure diffusive transport of magnetization in the solid, a simplifying assumption which could be wrong for high magnetizations, and/or low temperatures (7).

We shall now consider an harmonic perturbation of the interface position :

$$z = \xi(x, t) = \xi_o \exp(\gamma t) \exp(ikx) \quad (3)$$

and search for the relation between γ and k imposed by the conservation laws. Associated with this deformation is a perturbation of the magnetization on both sides :

$$\delta m_S(z) = \delta_S e^{\gamma t} e^{ikx} e^{-q_S z} \quad (4)$$

$$\delta m_L(z) = \delta_L e^{\gamma t} e^{ikx} e^{q_L z} \quad (5)$$

The magnetization conservation in both media is given by the equation :

$$D_i \Delta m_i + v \frac{\partial m_i}{\partial z} = \frac{\partial m_i}{\partial t} \quad (6)$$

and thus q_S and q_L are the positive solutions of the equations :

$$q_S^2 - k^2 - \frac{v}{D_S} q_S = \frac{\gamma}{D_S} \quad (7)$$

$$q_L^2 - k^2 + \frac{v}{D_L} q_L = \frac{\gamma}{D_L} \quad (8)$$

We have here neglected the difference in densities between liquid and solid, as usual (8). The magnetization conservation across the interface then leads to the equation :

$$D_S \frac{\partial \delta m_S}{\partial z} + v m_S = D_L \frac{\partial \delta m_L}{\partial z} + v m_L \quad (9)$$

where the quantities are taken at $z = \xi$. $v = v + \frac{\partial \xi}{\partial t}$ is the instantaneous velocity of the interface. Up to the first order in ξ :

$$m_S(\xi) = m_{oS} - (m_{oS} - m_{oL}) \frac{v}{D_S} \xi + \delta m_S \quad (10)$$

$$m_L(\xi) = m_{oL} + \delta m_L \quad (11)$$

$$\frac{\partial m_S}{\partial z}(\xi) = -(m_{oS} - m_{oL}) \frac{v}{D_S} + (m_{oS} - m_{oL}) \frac{v^2}{D_S^2} \xi - q_S \delta m_S \quad (12)$$

$$\frac{\partial m_L}{\partial z}(\xi) = q_L \delta m_L \quad (13)$$

The local equilibrium imposes the condition that m_S and m_L at the interface correspond to the same effective field $H^* + h$ where H^* refers to the planar interface and $h = h_o e^{\gamma t} e^{ikx}$:

$$\delta m_S - (m_{oS} - m_{oL}) \frac{v}{D_S} \xi = \chi_S h \quad (14)$$

$$\delta m_L = \chi_L h \quad (15)$$

Note that χ_S and χ_L refer here to the local slopes $\partial m_i / \partial H$.

Finally, compared to the planar situation with the same liquid pressure, the changes in chemical potential per unit volume are :

$$\delta \mu_S = -\bar{\alpha} k^2 \xi - \frac{1}{\phi} m_{oS} h \quad (16)$$

$$\delta \mu_L = -\frac{1}{\phi} m_{oL} h \text{ and thus} \quad (17)$$

$$(m_{oS} - m_{oL}) h = -\bar{\alpha} \phi k^2 \xi \quad (18)$$

where $\bar{\alpha}$ is the liquid-solid surface tension. With a system of units where m is the relative magnetization and H is expressed in Kelvins, ϕ equals the molar volume divided by the perfect gas constant (1).

Taking into account Equations (10) to (15), Eq. (9) becomes, to first order :

$$\frac{v^2}{D_S} (m_{oS} - m_{oL}) \xi - D_S q_S \left[\chi_S h + (m_{oS} - m_{oL}) \frac{v}{D_S} \xi \right] + m_{oS} \gamma \xi + v \chi_S h = D_L q_L \chi_L h + m_{oL} \gamma \xi + v \chi_L h \quad (19)$$

Eq. (18) then gives :

$$\gamma = v \left(q_S - \frac{v}{D_S} \right) - \frac{\bar{\alpha} \phi k^2}{(m_{oS} - m_{oL})^2} \left[D_S q_S \chi_S + D_L q_L \chi_L + v (\chi_L - \chi_S) \right] \quad (20)$$

3. General Discussion

We recall that we are interested in the cases where

$$(A) \frac{v}{D_S} > k > \frac{v}{D_L}$$

For discussing the value of the q_i using Eq. (7) and (8) we distinguish two cases : the quasi stationary case where $\gamma \ll D_S k^2$, close to the instability threshold and the fully unstable case where $\gamma \gg D_S k^2$.

Due to inequalities (A) we can write :

$$q_S = \frac{v}{D_S} + \frac{D_S k^2}{v} + \frac{\gamma}{v} - \frac{D_S^3}{v^3} \left(k^2 + \frac{\gamma}{D_S} \right)^2 \quad (21)$$

$$q_L = k - \frac{v}{2D_L} + \frac{\gamma}{2kD_L} \quad (22)$$

Then if $\gamma \ll D_S k^2$, neglecting again $\frac{D_S k}{v}$:

$$\gamma \left[1 + v^2 \frac{\bar{\alpha} \phi \chi_L \left(1 + \frac{2D_S \chi_S k}{\chi_L v} \right)}{4(m_{oS} - m_{oL})^2 D_S^2 k} \right] = \frac{v^2}{2D_S} - \frac{\bar{\alpha} \phi v^2}{2D_S^2 (m_{oS} - m_{oL})^2} \left[D_L \chi_L k + \frac{v \chi_L}{2} \right] \quad (23a)$$

$$\gamma = \frac{v^2}{2D_S} \frac{\left[1 - \epsilon_\alpha \left(k + \frac{v}{2D_L} \right) \right]}{1 + \left(\epsilon_\alpha v^2 / 4D_S D_L k \right) \left[1 + 2(D_S \chi_S k / \chi_L v) \right]} \quad (23a)$$

where taking into account inequalities (A) and reasonable values of χ_S / χ_L we have neglected $D_S^3 k^2 \chi_S / v$ compared to $D_L \chi_L k$. One can see that it is also negligible compared to $v \chi_L$ in the cases where this last term is important. Here :

$$\epsilon_\alpha = \frac{\bar{\alpha} \phi \chi_L D_L}{D_S (m_{oS} - m_{oL})^2} \quad (24)$$

Approximate values are $D_S = 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$, $D_T = 3.10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ (9), $\phi = 3.10^{-6} \text{ m}^3\text{K}^2/\text{J}$, $\chi_L = 5 \text{ K}^{-1}$ (10), $\bar{\alpha} = 2.10^{-5} \text{ J}/\text{m}^2$ (11). This gives in metres :

$$\lambda_\alpha = \frac{10^{-7}}{(m_{oS} - m_{oL})^2} \quad (25)$$

above 60 mK.

The first consequence of Eq. (23) is that there is no instability for (12) :

$$V > V_o = \frac{2D_T}{\lambda_\alpha} \approx 2.10^{-2} (m_{oS} - m_{oL})^2 \text{ (m/s)} \quad (26)$$

Under this critical velocity, the instability indeed occurs. In order to estimate its growing time we have to take the opposite limit : $\gamma > D_S k^2$. In such a case Eq. (20) becomes :

$$\gamma^2 \approx V^2 k^2 \left[1 - \lambda_\alpha \left(k + \frac{V}{2D_L} \right) \right] \quad (23b)$$

We have neglected $\frac{V^2 \lambda_\alpha k}{2D_L \gamma} \approx \frac{V \lambda_\alpha}{2D_L}$, due to (A).

The most unstable perturbation thus corresponds to :

$$k_m = \frac{2}{3\lambda_\alpha} \left[1 - \frac{V}{V_o} \right] \approx \frac{1}{\lambda_\alpha}$$

Let us end this section by a physical discussion which will be helpful shortly. As is always the case, the growing time of the unstable mode comes from the competition of two characteristic times. One, of order D_S/V^2 , is the growing time in the absence of surface tension, where any mode is unstable. The second comes from the stabilizing effect of the surface tension : due to it, the deformation creates a field undulation which tends to relax by magnetization diffusive currents, mainly in the liquid. This second time, thus proportional to $(\bar{\alpha} D_L)^{-1}$ is of order $D_S/V^2 \lambda_\alpha k$.

4. Conclusion

As a conclusion let us note that with $(m_{oS} - m_{oL}) = 0.3$, $V \approx 10^{-4} \text{ m/s}$ is well under V_o and gives a growing time for the most unstable mode of approximately 50 ms. It is thus almost certain that dendritic melting occurs in current polarized ^3He experiments. We are thus faced with the problem of fully developed dendrites and particularly to the relation between their tip velocity and their radius of curvature. We cannot solve completely this problem which is always open for ordinary dendrites (6).

We shall however remark that this radius ρ cannot be much larger than λ_α : on such a quasi planar interface, instabilities of wavelength λ_α would develop. On the other hand, as the shape of the dendrite is probably close to a paraboloid, the characteristic length for the variation of the curvature is also ρ at the tip.

We have thus, as at the end of the preceding section, a competition between two times. The

time the dendrite needs to progress a diffusion length is D_S/V^2 . On times shorter than this the dendrite is static, which is coherent only if the evolution time of the curvature, due to the surface tension, $(\rho/\lambda_\alpha)(D_S/V^2)$, is also large.

Thus ρ must be of order λ_α and we can write the condition (A) as :

$$(B) V > V_f = \frac{D_S}{\lambda_\alpha} = V_{o1} (m_{oS} - m_{oL})^2$$

with $V_{o1} \approx 10^{-4} \text{ m/s}$, which is the condition for having the radius of curvature of the interface larger than the diffusion length in the solid.

In another paper we examine whether condition (B) can be considered as fulfilled in the actual experiments (ref. (1) and (2)). This would demonstrate the applicability of the $m = m_L$ hypothesis. While we have strongly focused on melting of polarized ^3He , we think that the situation we have discussed in the present paper can be found in classical systems. It could correspond to ordinary solid dendrites in a case where the heat diffusivity in the liquid is several orders of magnitude smaller than in the solid. We think that liquid dendrites could even be observed at slow enough melting with high enough impurities concentration in the solid.

REFERENCES

- (1) G. Bonfait, L. Puech, A.S. Greenberg, G. Eska, B. Castaing, D. Thoulouze, Phys. Rev. Lett. 53 (1984) 1092.
- (2) A. Dutta, C.N. Archie, Phys. Rev. Lett. 55 (1985) 2949.
- (3) B. Castaing, P. Nozières, J. Physique-Lettres 40 (1979) 275.
- (4) G. Bonfait, B. Castaing, A. Schuhl, M. Chapelier, J. Physique-Lettres 46 (1985) 1073.
- (5) W.W. Mullins, R.F. Sekerka, J. Appl. Phys. 35 (1964) 444.
- (6) J.S. Langer, Rev. Mod. Phys. 52 (1980) 1.
- (7) B. Castaing, Proceeding of L.T. 17, Physica 126B (1984) 212.
- (8) Some recent papers take it into account. See for instance B. Caroli, C. Caroli, C. Misbah, B. Roulet, J. Physique-Lettres 46 (1985) 1657.
- (9) M.G. Richards, Adv. Magn. Resonance 5 (1971) 305 ; A. Landesman, J. Physique C3 31 (1970) C3-55.
- (10) J. Wilks, The Properties of Liquid and Solid Helium. (Clarendon, Oxford 1967).
- (11) This is estimated from the temperature of the roughening transition (E. Rolley, S. Balibar private communication). See also : S. Balibar, B. Castaing, Surface Science Reports 5 (1985) 87.
- (12) In fact $V > V_o$ corresponds to the breaking of inequality (A). But taking the opposite limit, namely $q_L \approx D_L k^2/V$, one can see that the stability at large V remains.

Europhys. Lett., 1 (10), pp. 521-527 (1986)

Polarized ^3He : a New Phase?

G. BONFAIT, L. PUECH, B. CASTAING and D. THOULOZE

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

(received 16 December 1985; accepted in final form 7 March 1986)

PACS. 75.40. - Critical-point effects, specific heats, short-range order.

PACS. 67.50. - Fermi fluids; liquid helium-3.

Abstract. - Using the results of a previous analysis, we demonstrate a recently advanced hypothesis. Under some conditions which we state explicitly, during melting of polarized ^3He , the mean measured magnetization is also that of the liquid at the interface. It allows us to use the data of a previous experiment to obtain the susceptibility of the liquid dm/dH vs. the field. The results suggest the existence of a metamagnetic transition, at round 40 Tesla.

1. Introduction.

During melting of polarized solid ^3He , the magnetizations m_S and m_L (where the subscripts S and L stand for the solid and the liquid phases) at the interface are in equilibrium with an effective field H^* . As discussed previously [1, 2] the value of this field depends on the curvature of the interface. If the radius of curvature is larger than the diffusion length in the solid, the liquid is formed at the interface with the bulk solid magnetization m ($m = m_L$ case). H^* is thus the field which gives this magnetization to the liquid. In the opposite limit it is the solid magnetization at the interface which is close to its bulk value.

In another article [1], referred to as I, we have shown that the melting of polarized ^3He is dendritic. The condition for being in the first case, where $m = m_L$ is that the interface velocity V must be larger than a critical velocity V_1 , proportional to $(m_S - m_L)^2$:

$$V > V_1 = D_S/l_\alpha = V_{01}(m_S - m_L)^2, \quad (\text{A})$$

with $V_{01} \approx 10^{-4}$ m/s. D_S is the magnetization diffusivity in the solid and l_α a characteristic length, proportional to the surface tension $\bar{\alpha}$:

$$l_\alpha = \frac{\bar{\alpha}\phi\chi_L D_L}{D_S(m_S - m_L)^2} \approx \frac{0.1\mu}{(m_S - m_L)^2}.$$

We use here and in the whole article a system of units where m is the relative magnetization. H^* is expressed in Kelvin. In such a system ϕ , which represents an average

molar volume between the solid and liquid ones, is equal to its value in ordinary units divided by the perfect-gas constant. $\chi_L = dm_L/dH^*$, the liquid susceptibility is expressed in K^{-1} . As pointed out in I, l_α gives the order of magnitude of the radius of curvature at the tip of the dendrites.

In this letter we shall first examine whether the eq. (A) condition was satisfied in the recent Grenoble [3] and Stony Brook [4] experiments. Second, we shall obtain from the result of the Grenoble experiment, the susceptibility χ_L of the liquid, assuming that the solid obeys the Curie law and that the difference in molar volume between the two phases is constant.

In fact, the behaviour of this susceptibility and (maybe even more clearly) the Stony Brook results suggest the occurrence of a phase transition in the liquid. We thus discuss this possibility.

2. The Grenoble and Stony Brook experiments.

The first difficulty encountered for using condition eq. (A) is that we have no direct access to the velocity V of the interface. The only accessible quantity in the experiments is the rate of growing of the liquid volume: $\dot{\Omega}$. In the following we show that the velocity of a smooth interface is a lower bound for the velocity V of the tips of the dendrites.

Let us call S_0 the area of such a smooth interface, and U_0 the corresponding interface velocity $U_0 = \dot{\Omega}/S_0$. When a few dendrites are formed, their tip velocity is much larger than U_0 as their total cross-section is smaller than S_0 . Then, by side branching the number of tips grows, reducing their velocity V .

However, at any place in the cell, we shall end with bulk liquid by overcrowding of the dendrites. There is thus a limit for the number of tips which are finally distributed in some region, between the most advanced into the solid, and the bulk liquid. This region obviously progresses at a velocity U_0 . Most of the tips having the same velocity than the more advanced, will finally progress at the velocity U_0 which is thus their minimum velocity.

Let us now first consider the Stony Brook experiment. The smallest dimension of their cell is 1 mm, and the melting time is 2 minutes. Thus U_0 is of order 10^{-5} m/s. The strict application of the eq. (A) condition gives

$$(m_S - m_L) < 0.3.$$

On the one hand, this is nearly always satisfied and the numbers could even be more favourable, depending on how the interface propagates in the cell. On the other hand, we have made several approximations in establishing the condition eq. (A). A little doubt thus remains for the interpretation of the higher-magnetization results.

In the Grenoble experiment the volume is constant after a rapid decompression. Then the progression of the interface is due to the relaxation itself which raises the pressure. If x is the liquid fraction

$$\frac{dx}{dt} \frac{(\rho_S - \rho_L)}{\bar{\rho}} = \bar{\beta} \frac{dP}{dt},$$

where $\bar{\rho}$ and $\bar{\beta}$ are the average density and compressibility. At low magnetization [2],

$$\frac{dP}{dt} = \frac{1}{\varphi_L - \varphi_S} \frac{(\chi_S - \chi_L)}{\chi_L^2} \frac{m_L^2}{T_1},$$

where φ_L and φ_S represent the liquid and solid molar volumes in our units and T_1 is the spin-lattice relaxation time. Here the smallest dimension of the cell is $L \approx 1$ cm, and

$$U_0 \approx L \frac{dx}{dt} = L\bar{\beta} \frac{\rho(\chi_S - \chi_L)}{(\rho_S - \rho_L)(\varphi_L - \varphi_S)\chi_L^2} \frac{m_L^2}{T_1}.$$

On the other hand

$$V_1 = V_{01}(m_S - m_L)^2 \approx V_{01} \frac{(\chi_S - \chi_L)^2}{\chi_L^2} m_L^2.$$

The ratio U_0/V_1 is thus independent of m_L at low magnetization:

$$\frac{U_0}{V_1} = \frac{L}{T_1 V_{01}} \frac{\bar{\beta}}{(\chi_S - \chi_L)(\varphi_L - \varphi_S)} \frac{\bar{\rho}}{(\rho_S - \rho_L)} \approx 12.$$

Thus the condition eq. (A) is here widely verified, and would continue to be valid at higher magnetization, as the «pressure drop» of the melting curve always varies rapidly in time.

We want to come back to the Stony Brook experiment now, in order to compare more closely the two cases. Indeed it seems surprising that the Stony Brook experiment where the volume is expanding gives a worse result than the Grenoble one where it is fixed. In fact the main difference comes from the smallest dimension of the cell which is ten times larger in the Grenoble case. However, it is clear that, neglecting the relaxation, we have underestimated the interface velocity in the Stony Brook experiment, at least for the 100 mK data (at lower temperatures, this relaxation seems negligible).

3. The high-field susceptibility.

We have thus now demonstrated the validity of the $m = m_L$ interpretation. We can use all the data of the Grenoble experiment to extract the properties of the polarized liquid. In this section we shall neglect the influence of the magnetostriction on the difference in molar volume between the liquid and the solid.

We start from the Gibbs-Duhem relation

$$d\mu = -S dT + \varphi dp - m dH$$

from which we obtain the following relation, valid as long as there is liquid-solid coexistence

$$(\varphi_L - \varphi_S) dP = -(S_S - S_L) dT - (m_S - m_L) dH.$$

In ref. [3] the drop pressure ΔP is defined as

$$\Delta P = P(0, T) - P(H, T).$$

We have thus

$$(m_S - m_L) \frac{dH}{dm} = (\varphi_L - \varphi_S) \frac{d\Delta P}{dm} - \{(S_S(H) - S_S(0)) - (S_L(H) - S_L(0))\} \frac{dT}{dm}. \quad (1)$$

We shall neglect in the following the term $S_L(H) - S_L(0)$: it can be important only for the highest m , where no reasonable estimate is possible.

Putting $m_L = m$ and $m_S = \tanh(H/T)$, we obtain a self-consistent equation of evolution for H vs. m , which can be solved numerically, using smoothed values for ΔP and T vs. m (fig. 1).

The result for $\chi_L = dm/dH$ is shown in fig. 2 vs. H and in fig. 3 vs. m . Several remarks can be made.

i) At low magnetization ($m < 18\%$) the susceptibility remains constant close (within the uncertainty) to the known low-field susceptibility. This is consistent with the linearity of ΔP vs. m^2 reported in ref. [3], and the agreement with the slope $\Delta P/m^2$ calculated in ref. [2].

ii) There is a strong peak in the neighbourhood of $m = 20\%$, where χ becomes two times larger. This peak occurs in the same region as the point of inflexion in the ΔP vs. m curve.

iii) We show as a dotted line in fig. 2 the result without any temperature correction, that is putting $T = 104$ mK and $dT/dm = 0$. It corresponds to the assumption that the temperature remains constant from the start at its final value and that the observed evolution is due to the thermometer response time. It gives a large upper bound to the errors which can be made in this calculation.

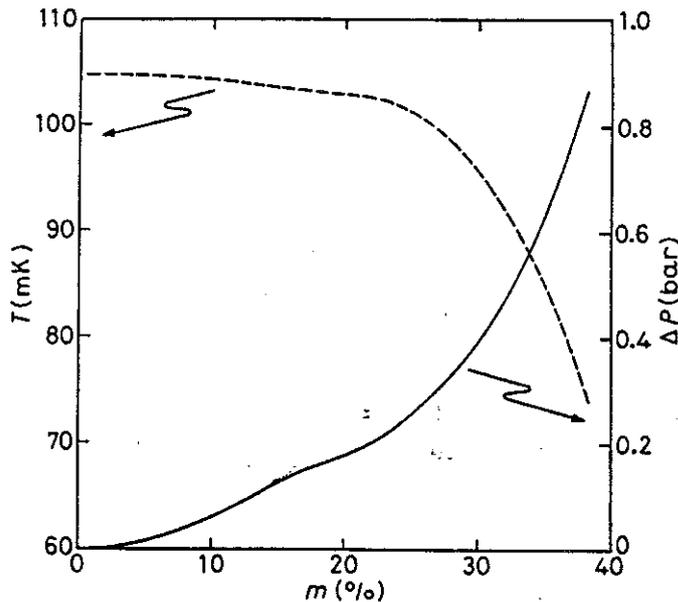


Fig. 1.

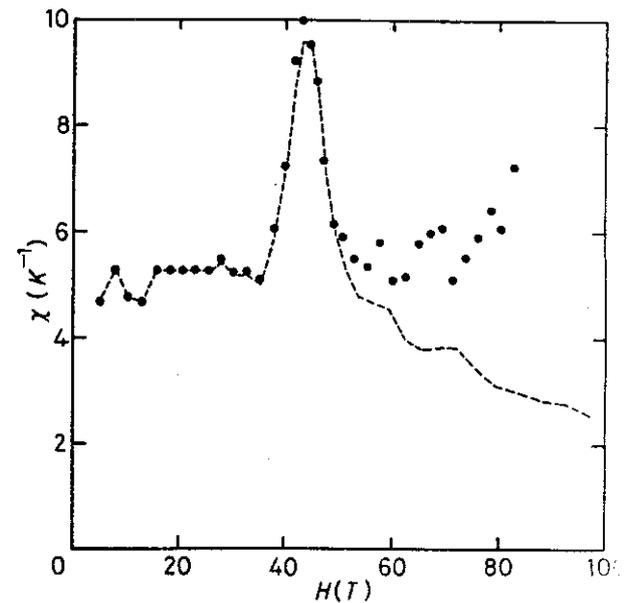


Fig. 2.

Fig. 1. - Smoothed data used for the calculation of dm/dH (ref. [3]). Full line: difference between the low-field melting pressure and the observed one, vs. the magnetization. Dotted line: the measured temperature vs. the magnetization.

Fig. 2. - The calculated dm/dH vs. the calculated field, using the data shown in fig. 1 and eq. (1). The dotted line corresponds to the same calculation with $dT/dm = 0$.

4. Discussion.

We can now compare the «measured» χ_L to the theoretical predictions. These are of three kinds: the paramagnon calculations of Béal-Monod *et al.* [5], the Gutzwiller-type approach of Vollhardt [6] and the very recent semi-phenomenological estimations by BEDELL *et al.* [7].

The paramagnon result is an expansion of χ_L in powers of m^2 . It predicts an initial decrease of the susceptibility. This is in contradiction with Vollhard and Bedell *et al.* who predict an increase of χ_L .

In spite of this clear contradiction, paramagnon and Gutzwiller approaches could be reconciled by the fact that something could occur at relatively small m . Indeed, the coefficient of m^2 in the paramagnon development of χ_L is proportional to the Stoner enhancement factor. Thus the range of validity of this development is limited to small m . Due to the large ($\sim 10\%$) uncertainty our results cannot distinguish between the two small- m behaviours.

For larger m (fig. 3), VOLLHARDT predicts a transition toward a fully polarized state while BEDELL *et al.* claim that ^3He indeed avoids this transition and is only «nearly metamagnetic». The «fully polarized» state of Vollhardt must be taken with caution as his model neglects the interactions between parallel spins and thus cannot apprehend the physics of real ^3He in this extreme situation. Again we would point out that the opposition between the Bedell *et al.* result and the Vollhardt one is not so clear, BEDELL *et al.* obtain the susceptibility as a RPA formula

$$\chi^{-1} = \chi_0^{-1} + f(m)$$

and expand the pseudopotential to order m^2 :

$$f(m) = f_0 + f_2 m^2.$$

Extrapolating this behaviour up to $m = 1$ gives no transition. But a very reasonable m^4 term would make the susceptibility diverge.

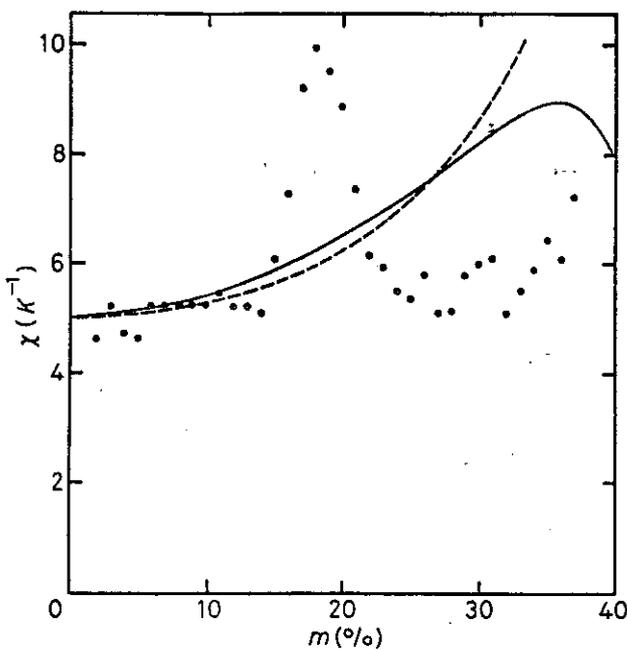


Fig. 3.

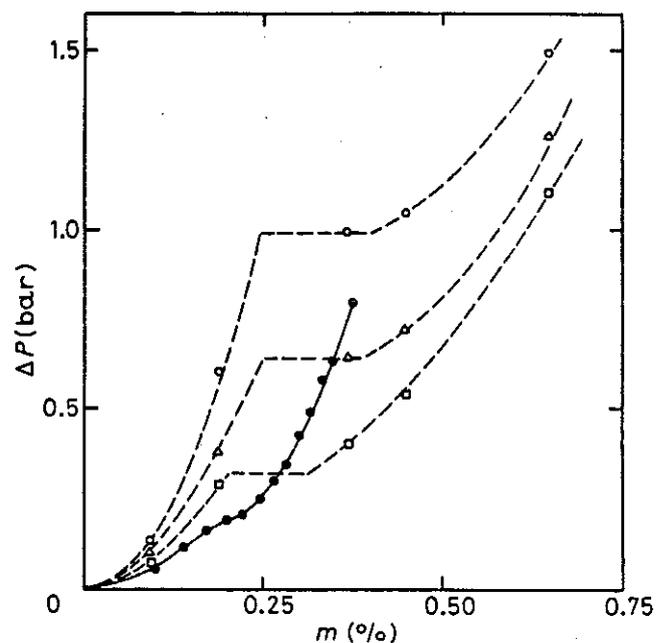


Fig. 4.

Fig. 3. – Comparison of the obtained dm/dH with the predictions of Vollhardt (dotted line) and Bedell *et al.* (full line).

Fig. 4. – A summary of the Grenoble (full line) and Stony Brook results; \square : 100 mK; \triangle : 75 mK; \circ : 50 mK. The dotted lines are only guides for the eye.

While in qualitative agreement with these predictions⁽¹⁾, our result shows a much more abrupt change in χ_L , occurring at much lower magnetization. We think that these results are consistent with a phase change to an intermediate state between liquid and solid.

This interpretation is, within the restrictions quoted above, reinforced by the Stony Brook results [4]. Figure 4 shows an interpretation of their data where m is their starting magnetization assuming that the initial temperature is always the same [2]. Here the slowing down of ΔP vs. m is even clearer. Much more data would be necessary to obtain a reliable estimate of χ_L , but it seems obvious that this figure is consistent with a Maxwell plateau for ΔP vs. m .

Let us also recall that MITCHELL *et al.* [8] have claimed to have observed at low temperature a transition between the liquid and a new phase of ^3He in Vycor. If such an intermediate phase exists with its free enthalpy slightly larger than the liquid and solid ones in an open, zero field situation, it could reveal itself in two different ways:

i) The smallness of the Vycor pores strongly discourages a crystalline state, and thus raises the solid free enthalpy compared with the liquid and this new phase (if it is not crystalline).

ii) A high field raises the free enthalpy of the liquid compared to the more polarizable phases.

For the characteristics of this new phase, additional measurements are needed. Even our calculation of χ_L becomes wrong at high m , as we have used the molar volume of the ordinary liquid.

5. Conclusion.

We have shown that our understanding of the melting of polarized solid ^3He is sufficient to extract from the data information on the properties of polarized liquid.

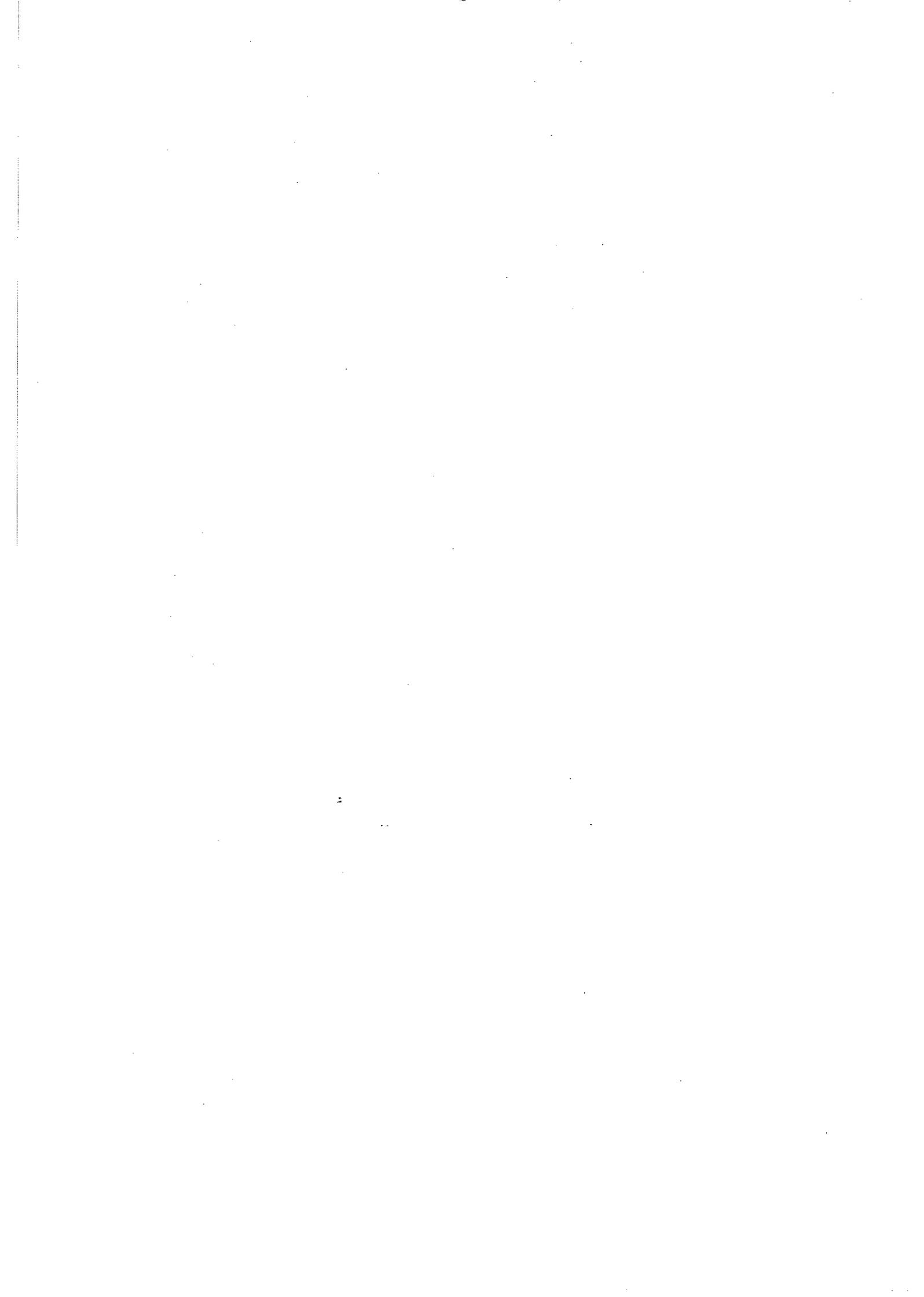
The result reveals what is at least a strong anomaly in the magnetization curve, and more probably the signature of the existence of a new phase. It is worth noting here what has been pointed out a long time ago by some authors [9] and recently again by BEDELL: the close resemblance between ^3He and the heavy-fermion systems like UPt_3 [10] or CeRu_2Si_2 [11]. It seems clearly to indicate that the underlying physics is the same, in spite of the obvious differences.

⁽¹⁾ Note that the predictions are for zero temperature, while the present results are for the neighbourhood of 100 mK.

REFERENCES

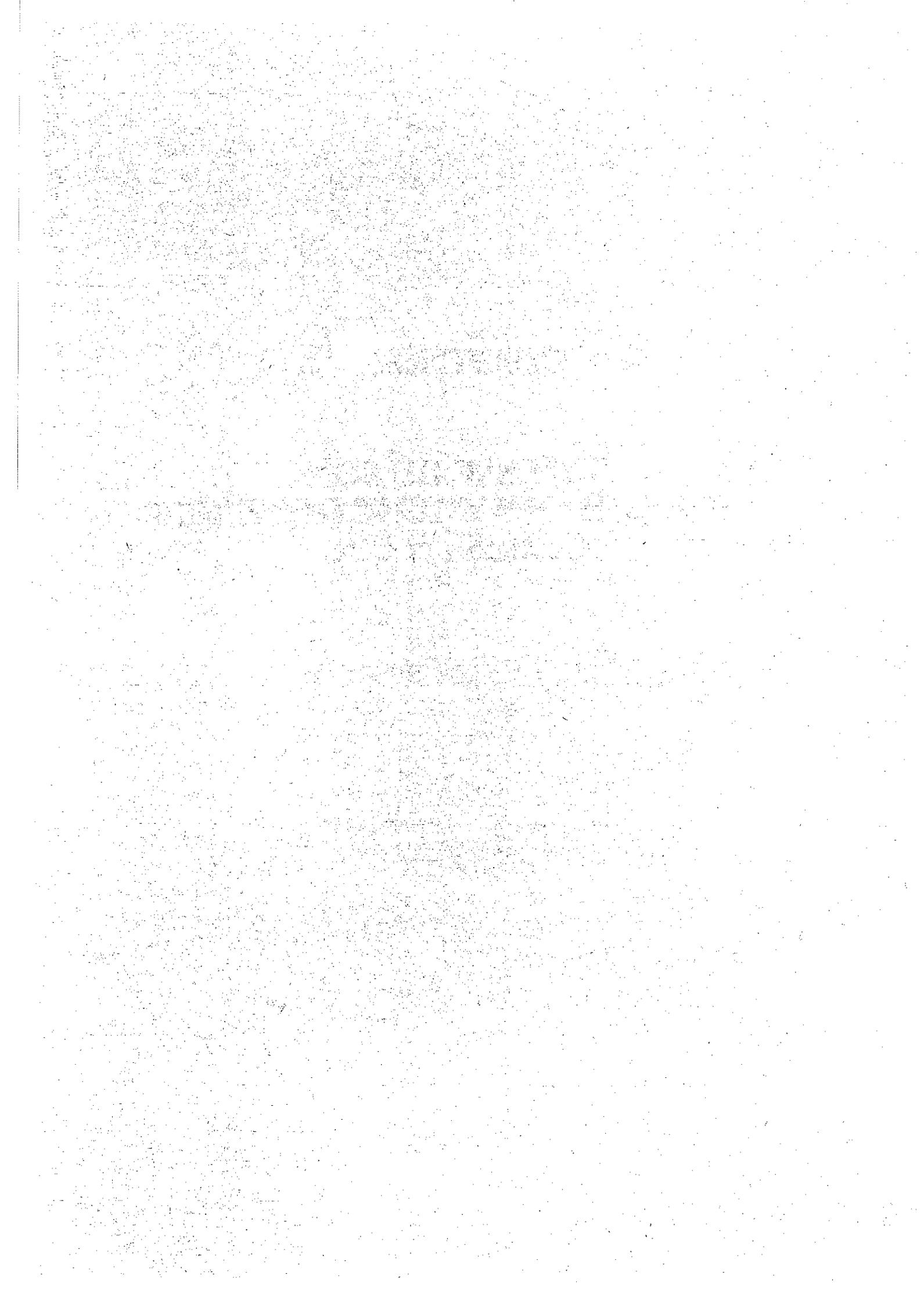
- [1] L. PUECH, G. BONFAIT and B. CASTAING: accepted for publication in *J. Phys. (Paris)*, Brèves Communications.
- [2] G. BONFAIT, B. CASTAING, A. SCHUHL and M. CHAPPELLIER: *J. Phys. (Paris) Lett.*, **46**, 1073 (1985).
- [3] G. BONFAIT, L. PUECH, A. S. GREENBERG, G. ESKA, B. CASTAING and D. THOULOZE: *Phys. Rev. Lett.*, **53**, 1092 (1984).

- [4] A. DUTTA and C. N. ARCHIE: *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 2949 (1985).
- [5] M. T. BÉAL-MONOD and E. DANIEL: *Phys. Rev. B*, **27**, 4467 (1983).
- [6] D. VOLLHARDT: *Rev. Mod. Phys.*, **56**, 99 (1984).
- [7] K. S. BEDELL and C. SANCHEZ-CASTRO: to be published.
- [8] H. B. MITCHELL, D. F. BREWER, S. J. SWITHENBY, W. S. TRUSCOTT and J. LOW: *Temp. Phys.*, **38**, 475 (1980). See also CAO LIE-ZHAO, D. F. BREWER, C. GIRIT, E. N. SMITH and J. D. REPPY: *Phys. Rev. B*, **33**, 106 (1986).
- [9] M. T. BÉAL-MONOD and J. M. LAWRENCE: *Phys. Rev. B*, **21**, 5400 (1980); J. FLOUQUET, J. C. LASJAUNIAS, J. PEYRARD and M. RIBAUT: *J. Appl. Phys.*, **53**, 2127 (1982).
- [10] P. H. FRINGS and J. J. M. FRANSE: *Phys. Rev. B*, **31**, 4355 (1985).
- [11] J. FLOUQUET, P. HAEN, C. MARCENAT, P. LEJAY, A. AMATO, D. JACCARD and E. WALKER: *J. Magn. Magn. Mater.*, **52**, 85 (1985).



CHAPITRE II

VITESSE DU SON SOUS CHAMP MAGNETIQUE DE CeRu₂Si₂ et UPt₃



I - Introduction

Alors que nous avons beaucoup progressé dans l'interprétation des mesures d'abaissement de la pression de fusion dans l' ^3He polarisé [32,33], et qu'une tendance métamagnétique du liquide est apparue probable dans deux expériences [26,29], une comparaison avec d'autres systèmes de fermions présentant certaines propriétés similaires s'imposait tout naturellement.

C'est dans cet esprit, sous l'impulsion de B. Castaing et J. Flouquet, que mon travail s'est orienté vers l'étude du composé à "Fermions Lourds", CeRu_2Si_2 puis ensuite UPt_3 .

Dans ce chapitre, je ne souhaite pas aborder l'ensemble des propriétés de ce composé, ni discuter les caractères spécifiques des fermions lourds (une introduction sur ce sujet, ainsi qu'une bibliographie assez complète peut être trouvée dans [44 à 47]). Je vais m'intéresser plus spécifiquement aux propriétés de CeRu_2Si_2 et UPt_3 qui peuvent faire l'objet de comparaisons avec celles de l' ^3He liquide.

Dans le paragraphe suivant, je présenterai les résultats que nous avons obtenu à Frankfort, avec D. Weber, Pr. Lüthi et I. Kouroudis, sur la vitesse du son de ces composés, sous champ magnétique. Sur le point particulier de la vitesse du son transverse, un certain désaccord subsistant dans l'analyse de ces résultats, je présenterai mon point de vue assez en détail.

Dans le prochain chapitre, je présenterai les mesures de la magnétostriction de ces composés avec J.M. Mignot, L. Voiron, P. Haen et J. Flouquet pour CeRu_2Si_2 et A. Devisser et al. pour UPt_3 . Conjointement, je décrirai en détail l'analyse phénoménologique que nous avons faite, qui permet de prédire, à la fois la magnétostriction, et la vitesse du son sous champ.

II - Caractères communs à CeRu_2Si_2 et ^3He et autres fermions lourds

Les composés dits à "Fermions lourds" sont des composés métalliques, présentant des caractères de liquide Fermi avec des fortes masses effectives, aussi bien pour ce qui est du terme $\frac{C_p}{T} = \gamma$ de chaleur spécifique, que pour leurs susceptibilités initiales $\chi_0 = \frac{m}{H}$. Ces composés présentent en effet des γ allant jusqu'à

1500 mJ/K²/mole pour CeAl₃ [48] à comparer à 0,1 mJ/K²/mole pour les métaux nobles ou 10 mJ pour le δ -palladium. Pour CeRu₂Si₂ $\gamma = 350$ mJ/mole K² [49,50].

De façon générale, ces composés présentent également des susceptibilités de Pauli élevées, associées à la forte masse effective, qui peuvent même être renforcées par rapport à la masse effective : le rapport de Wilson $\frac{\gamma}{\chi} \cdot \frac{3\mu^2}{\pi k_B^2}$ peut atteindre environ 0,2 [46].

Aussi bien ces caractéristiques expérimentales que la représentation que l'on a de ces électrons lourds rendent naturelle la comparaison avec l'³He liquide. Dans un cas comme dans l'autre, une forte répulsion à courte distance dans le système dense de fermions, conduit assez naturellement à l'idée de l'individualisation de ces fermions, c'est-à-dire à leur localisation partielle.

Pour ce qui est des électrons des fermions lourds, cette représentation est bien sûr insuffisante puisqu'elle ignore les processus d'hybridation avec les électrons de conduction, et la dégénérescence éventuellement élevée des niveaux à un électron.

Cette représentation simplifiée commune à l'³He et aux fermions lourds se traduit par l'utilisation des mêmes modèles de référence pour leur description : [51,52] modèle de Hubbard [17] et solution de Gützviller, [18,19,20,53], fluctuations de spin [13-16]. Un autre caractère commun à certains fermions lourds (pas CeRu₂Si₂) et ³He est la possibilité de supraconductivité de paires "triplet", qui est bien connue pour ³He et dont des indications récentes existent pour UPt₃ et UBe₁₃ [54 à 57]. Le caractère particulier de ces phases superfluides est dû à la répulsion à courte distance, qui défavorise le "pairing" plus classique en ondes "S".

Le trait marquant, qui a attiré notre attention sur CeRu₂Si₂ et UPt₃, est leur tendance métamagnétique très significative : à 8 Tesla pour CeRu₂Si₂ et 20 Tesla pour UPt₃, une augmentation de la susceptibilité différentielle d'environ un facteur 5 à 10, est présente, à des températures inférieures à 50 K [58,59,60]. Sans réellement s'interroger beaucoup sur l'origine de cette tendance métamagnétique, la comparaison avec ³He était tentante, d'autant plus que CeRu₂Si₂ était à l'époque étudié amplement pour ses propriétés magnétoélastiques, au laboratoire [61].

1) Propriétés magnéto-élastiques

Par magnéto-élastique, on entend les propriétés mécaniques qui dépendent d'un champ magnétique appliqué ou bien des propriétés magnétiques qui dépendent des déformations (essentiellement la pression).

Bien évidemment ces deux types de manifestations sont reliées et nécessitent, pour exister d'un couplage magnétoélastique.

La relation entre ces effets "croisés" est déterminée par la relation de Maxwell :

$$\left(\frac{\partial V}{\partial H}\right)_{P,T} = -\left(\frac{\partial M}{\partial P}\right)_{B,T}$$

ce qui signifie que, si l'aimantation d'un système diminue quand on augmente la pression (diminution du volume), alors si on augmente le champ à pression fixe, le système va se dilater pour pouvoir augmenter plus facilement son aimantation.

Dans le cas de CeRu_2Si_2 , une remarque très importante avait été faite au C.R.T.B.T., selon laquelle, au maximum de susceptibilité à 8 Teslas, existe également un fort maximum de magnétorésistance. Ce fait a alors autorisé Mignot-Ponchet et al. à suivre le comportement magnétique de CeRu_2Si_2 sous pression. Ainsi, ils ont montré que le champ "critique" dépendait fortement de la pression : $\left(\frac{\partial H_c}{H_c \partial P}\right) = + 0,150/\text{Kbar}$ [61],

ce qui conduit à un coefficient de Grüneisen $\Omega_H = \frac{v \partial H_c}{H_c \partial V} \sim 160$. Corrélativement, la susceptibilité initiale $\chi_0(P)$ a été mesurée par Voiron, Mignot et al. qui montre un comportement similaire : $\frac{v \partial \chi_0}{\chi_0 \partial V} \sim -0,171/\text{Kbar}$. Ne serait-ce que dans le régime bas champ, ceci implique des propriétés magnéto-élastique spectaculaires.¹

¹Les valeurs importantes pour cette étude sont : le volume molaire $V_0 = 51 \text{ cm}^3/\text{mole Ce}$, la compressibilité $K_0 \sim 1,3/\text{Mbar}$, la susceptibilité à $P = 0$ en unité de Magnéton de Bohr par ion et par Tesla $\chi_0 = 6.15.10^{-2} \mu\text{B}/\text{Ce}/\text{Tesla}$ que l'on peut écrire $\frac{N\mu_B\chi_0}{2V_0} = 0,034 \text{ bar}/\text{Tesla}^2$, et ses dérivées

$\frac{\partial \chi_0}{\chi_0 \partial p} \sim -0,170/\text{Kbar}$, $\left(\frac{\partial^2 \chi_0}{\chi_0 \partial p^2}\right) = 0,03/\text{Kbar}^2$ Une grandeur également utile est $\frac{N\mu_B}{V_0} = 1,105 \text{ Bar}/\text{Tesla}$.

Magnétostriction :

$$\frac{\delta V}{V} = - \frac{N\mu_B \chi_0 H^2}{2 V_0} \left(\frac{\partial \chi_0}{\chi_0 \partial P} \right) \approx 1.3 \cdot 10^{-4} \text{ à } 5 \text{ Tesla}$$

et vitesse du son :

$$\frac{\delta C}{C} = - \frac{N\mu_B \chi_0 H^2}{2 V_0} \frac{1}{2K_0} \left(\frac{\partial^2 \chi_0}{\chi_0 \partial P^2} \right) \approx 2 \times 10^{-2} \text{ à } 5 \text{ Tesla}$$

Ces chiffres précisent avec éloquence l'importance du couplage magnétoélastique dans CeRu_2Si_2 , qui laissait présager des résultats étonnants au champ métamagnétique.

De mon point de vue, l'origine de ce couplage n'est pas à l'heure actuelle bien élucidée. Pour comprendre en quoi la vitesse du son, c'est-à-dire la compressibilité, constitue un moyen intéressant d'investigation des propriétés ces électrons lourds, il faut imaginer l'équivalent d'une approximation adiabatique pour des électrons : ils sont contraints d'évoluer avec un Hamiltonien qui dépend du volume : interaction electron f - electron f, hybridation avec les électrons de conduction, déplacement du niveau des Fermi des électrons de conduction, etc...

Lors de variations du volume, il contribuent alors aux variations d'énergie, et ce de façon d'autant plus singulière que le paramètre en question peut varier beaucoup en valeur relative, s'il est petit (température Kondo, par exemple).

2) Mesure de la vitesse du son

J'ai participé, à Frankfort, Université Fédérale, à la mesure de vitesse du son dans CeRu_2Si_2 . Nous avons mesuré en fonction de la température la vitesse longitudinale suivant C (C_{33}) et la vitesse transverse suivant C (C_{44}). Ces résultats ont été largement exploités dans la thèse de Diplom-Arbeit de D. Weber, avec qui j'ai travaillé, ainsi d'ailleurs qu'avec I. Kouroudis et le pr. Lüthi.

Si le mode transverse n'apporte pas beaucoup d'informations, le mode longitudinal, lui, permet de définir des splittings de multiplets du cérium, qui sont en bon accord avec des mesures de chaleur spécifique à haute température. Dans la région $T \leq 10 \text{ K}$, il apparaît un ralentissement du son que Thalmeier interprète en terme d'établissement des corrélations magnétiques entre cériums (réseau Kondo).

N'ayant pas participé à l'analyse de ces résultats, je préfère ne pas m'étendre longuement sur ce sujet. Je me contenterai de souligner, que, ainsi que la vitesse du son, la connaissance de la dilatation thermique dans ces zones de température me semble souhaitable. Pour ce qui est de CeRu_2Si_2 , nous ne disposons en effet ni de C_p sous pression, ni de la dilatation à pression nulle, V ou $v(T)$.

Il serait tout à fait souhaitable de confirmer l'hypothèse selon laquelle γ et χ varient de façon similaire avec la pression. Un début de réponse à ce point est apportée par la chaleur spécifique d'échantillons dilués au lanthane $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$, pour lesquels γ et χ augmentent notablement avec le taux de lanthane [62].

a) Technique de mesure de vitesse du son

La technique utilisée est largement décrite dans []. Elle consiste à travailler à fréquence variable de façon à avoir un décalage de phase fixe [et nul modulo 2π] entre un pulse émis et l'écho reçu. Ce déphasage vaut $\frac{\Delta\phi}{2\pi} = \frac{lv}{C}$, où l est la longueur parcourue par le pulse, v la fréquence et C la vitesse du son. Si la longueur l ne varie pas trop, on a donc, si $\frac{\Delta\phi}{2\pi} = P$ entier fixe, $\frac{\delta v}{v} = \frac{\delta C}{C}$. La valeur absolue C_0 à champ nul est obtenue par évaluation, à l'oscilloscope, du temps de vol. Nous avons trouvé pour le mode longitudinal suivant C : $C_0 \approx 4 \text{ km/s} \pm 5 \%$.

b) Résultats sous champ

Ces résultats sont reproduits dans la publication présentée au paragraphe suivant [63], avec d'ailleurs d'autres mesures, sur UPt_3 auxquelles je n'ai pas participées, ainsi que des mesures de son transverse suivant la direction c , polarisation dans (a,b).

Les points qui me semblent essentiels sont les suivants :

- Pour les bas champs, on trouve bien une variation en H^2 , du bon ordre de grandeur (figure 1),

- autour de $H = 8 \text{ Tesla} \approx H_c$, se développe un énorme pic de compressibilité, qui atteint 40 % à 1,4 K (!) pour CeRu_2Si_2

- la hauteur de ce pic est encore sensible à la température dans cette région, puisqu'il est ramené à 18 % à 4,2 K,

- l'allure générale de ce pic semble refléter assez bien le comportement de la susceptibilité différentielle.

C'est cette dernière remarque qui m'a conduit à développer l'analyse phénoménologique que je présenterai plus loin au chapitre III.

Novel Magnetoacoustic Effects in Heavy-Fermion Systems in High Magnetic Fields

I. Kouroudis, D. Weber, M. Yoshizawa, and B. Lüthi

Physikalisches Institut, Universität Frankfurt, D-6000 Frankfurt, West Germany

L. Puech, P. Haen, and J. Flouquet

Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, F-38042 Grenoble, France

G. Bruls and U. Welp

Max Planck Institut für Festkörperforschung, F-38042 Grenoble, France

J. J. M. Franse and A. Menovsky

Natuurkundig Laboratorium der Universiteit van Amsterdam, NL-1081 XE Amsterdam, The Netherlands

and

E. Bucher and J. Hufnagl

Universität Konstanz, D-7750 Konstanz, West Germany

(Received 1 October 1986)

We observed a strong softening of longitudinal acoustic modes in UPt_3 and CeRu_2Si_2 in high magnetic fields where the magnetic susceptibility exhibits an anomaly. The two phenomena can be correlated with a large electronic Grüneisen parameter. Some shear modes exhibit oscillations in the same high-field and low-temperature range.

PACS numbers: 75.80.+q, 63.20.Kr, 75.20.Hr

The anomalous electronic properties and the superconductivity of heavy-fermion metals are not yet understood and still of great current interest.¹ Probing of the heavy-fermion state in a different way than with conventional experiments is therefore of considerable value. In this Letter we present a high-magnetic-field (up to 23 T) investigation of sound velocity and ultrasonic attenuation for two heavy-fermion materials: UPt_3 and CeRu_2Si_2 . These compounds show a positive curvature in the magnetization curves M versus B up to an inflection point leading to maxima of $\chi_m = \partial M / \partial B$ at $B_c \sim 20$ and 8 T, respectively. This maximum occurs for B applied in the hexagonal plane for UPt_3 and along the tetragonal c axis for CeRu_2Si_2 ^{2,3} (see Table I). Since large variations of the characteristic parameters occur with applied field and pressure (Franse and co-workers^{2,4} for UPt_3 and Flouquet and co-workers^{3,5} for CeRu_2Si_2) a huge field dependence can also be expected for the sound velocity.

In agreement with these considerations, we will show here the existence of a soft longitudinal-acoustic mode which is intimately related to the magnetic susceptibility. The coupling constant appears to be the electronic Grüneisen parameter which is also responsible for different electron-phonon effects.^{6,7} The other striking phenomenon is the discovery of oscillatory behavior of sound velocity and attenuation in some shear modes. This may suggest field-induced instabilities.

The experiments were performed with the field along the easy axis giving rise to the maxima of χ_m . Table I summarizes some physical parameters of the two com-

pounds. The similarity in the magnitudes of the linear temperature coefficient γ of the specific heat and consequently in the characteristic fluctuation temperature T^* ($T^* \sim \gamma^{-1}$) should be noticed. The difference in B_c may reflect that one in the effective moment μ so that $\mu(B_c)B_c \sim kT^*$.

The magnetic field dependence of the longitudinal modes (c_{11} for UPt_3 and c_{33} for CeRu_2Si_2) is shown in Figs. 1(a) and 1(b) at various temperatures. The common feature is a very strong softening of the two longitudinal modes: 9% for c_{11} in UPt_3 at 20.35 T and 28% for c_{33} in CeRu_2Si_2 at 8.07 T for the lowest temperatures (two UPt_3 samples from different sources gave a similar size of the anomaly). In the case of CeRu_2Si_2 where extensive magnetization curves $M(T, B)$ exist,⁵ the temperature dependence of $\Delta c_{33}(T, B_c)$ is proportional to $\chi_m(T, B_c)$.

TABLE I. Physical properties of the materials.

Material	UPt_3	CeRu_2Si_2
Crystal structure	Hexagonal	Tetragonal
Specific-heat γ values (mJ/mol K ²)	420	380
Fluctuation temperature T^*	25 K	24 K
Magnetic easy direction	a, b plane	c axis
Critical field B_c	20.35 T	8.07 T
for χ_m anomaly		
Soft longitudinal-acoustic mode	c_{11}	c_{33}
Oscillatory shear mode	c_{66}	c_{44}

One can relate the softening of these longitudinal modes and the change in magnetic susceptibility by using scaling and thermodynamic arguments at low temperatures:

$$\Delta c_L = -\Omega_B^2 B^2 \chi_m. \quad (1)$$

Here $\Omega_B = -\partial \ln B_c / \partial \epsilon_v$, a magnetic Grüneisen parameter, describes the coupling of the lattice to the electronic system. B_c is the critical field (Table I) and ϵ_v the volume strain. For Eq. (1) one takes the scaled magnetization $M(B/B_c)$ and neglects terms of $\partial^2 B_c / \partial \epsilon_v^2$ and the small difference between adiabatic and isothermal elastic constants in magnetic fields.⁷ This approach is valid for $T \ll T^*$.⁸

In UPt₃ at $T=4.2$ K experimentally $\Delta c_{11}/c_{11} = -3\%$ [Fig. 1(a)], and with χ_m from Ref. 2 at B_c we get $\Omega_B = 60$ which is exactly the same value as obtained for the thermal Grüneisen parameter $\Omega_T = -\partial \ln T^* / \partial \epsilon_v$ determined from thermal expansion and elastic constants.^{6,7} We made the estimate at 4 K because high-field susceptibility data are not available yet for lower temperatures. Another relation between c_L and the volume magnetostriction coefficient⁸ κ can be tested for

UPt₃ up to 8 T at 4 K where measurements for κ exist.⁹ Again $\Omega_B = 60$ is obtained.

The same analysis for CeRu₂Si₂ for $T=1.3$ K gives, with $\Delta c_{33}/c_{33} = -0.27$ and with χ_m from Refs. 3 and 5, $\Omega_B = 129$. This value compares favorably with $\Omega_T = 120$ from an analysis of the temperature dependence of the elastic constant c_{33} at low temperatures.¹⁰ A more detailed analysis using $\chi_m(B)$ from Ref. 5 and $\Omega_B = 129$ gives a very good fit for $\Delta c_{33}(B)$ or $\Delta v/v$ at $T=1.3$ K of Fig. 1(b). In addition, the pressure dependence of the electrical resistivity and magnetic susceptibility give again Ω_T of the order of 130.^{5,11} A more detailed analysis of the link between $c_L(B, T)$, $\chi_m(B, T)$, and $B_c(P)$ will be published later.¹⁰

The observed equality between Ω_B and Ω_T emphasizes that the ratio B_c/T^* is pressure independent. This was proved experimentally in the case of CeRu₂Si₂.⁵ Theories of the almost-localized Fermi liquid do not give the equality of Ω_B and Ω_T .¹² Nevertheless they can describe a "metamagneticlike transition" as observed for polarized He³.¹³ Strong antiferromagnetic correlations have been observed in neutron-scattering experiments for UPt₃,¹⁴ CeCu₆,¹⁵ and CeRu₂Si₂.¹⁶ The fluctuation temperature T^* and the critical field B_c of the metamagneticlike transition play the equivalent roles of the ordering temperature and of the critical field, respectively, in magnetically ordered systems,⁵ although no phase transition occurs in heavy-fermion systems. We then suggest that the soft longitudinal-acoustic mode observed and discussed here is coupled to the soft order-parameter mode of the heavy-fermion system.

Another interesting feature related to the soft-mode behavior is the oscillatory phenomenon observed for some shear modes: c_{66} in UPt₃ and c_{44} in CeRu₂Si₂. Note that c_{66} is a shear mode with propagation and polarization in the hexagonal plane, where the susceptibility anomaly also occurs. Figure 2 gives typical examples for this effect in the two cases. We observed these oscillations both as sound velocity changes, as shown in the figure, and in sound attenuation (not shown here). The oscillations disappear for higher temperatures [Fig. 2(a)], they show a weak frequency dependence if any [Fig. 2(b)], and they depend on previous history (they can disappear and reappear after heating up the sample). The c_{44} mode in UPt₃ does not exhibit any such oscillations.

Mode interferences can be excluded as an explanation since the oscillations appear not only for UPt₃, c_{66} (where possible interferences with the c_{44} mode due to misalignment can be excluded because this effect would be too small), but also for c_{44} in CeRu₂Si₂ where the c_{44} mode is isotropic in the a - b plane. Mode interferences with spurious longitudinal modes can also be excluded from the frequency dependence, the delay times, and the absence of oscillations in the c_{44} mode in UPt₃. For UPt₃ the oscillations appear to be symmetric with

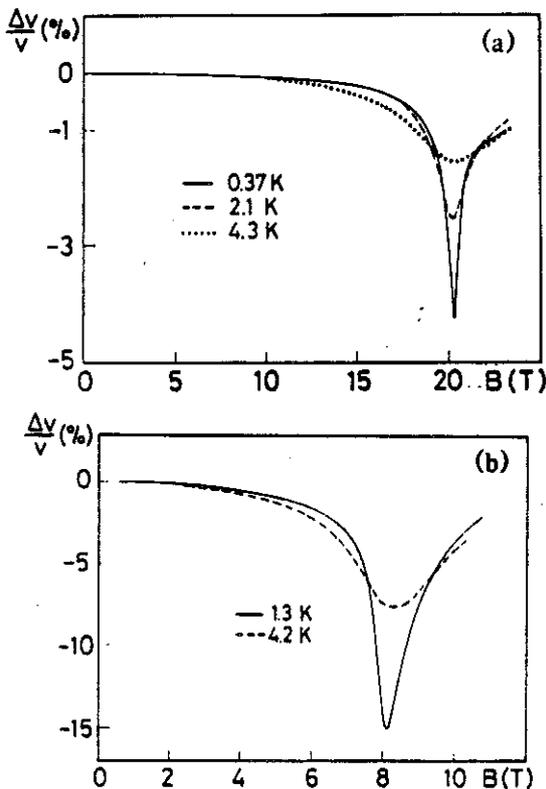


FIG. 1. (a) Relative velocity change in percent for c_{11} mode in UPt₃ at 0.37 K (full line), 2.1 K (dashed line), and 4.3 K (dotted line) as a function of magnetic field applied along b axis. (b) Relative velocity change in percent for c_{33} mode in CeRu₂Si₂ at 1.3 K (full line) and 4.2 K (dashed line) as a function of magnetic field applied along c axis.

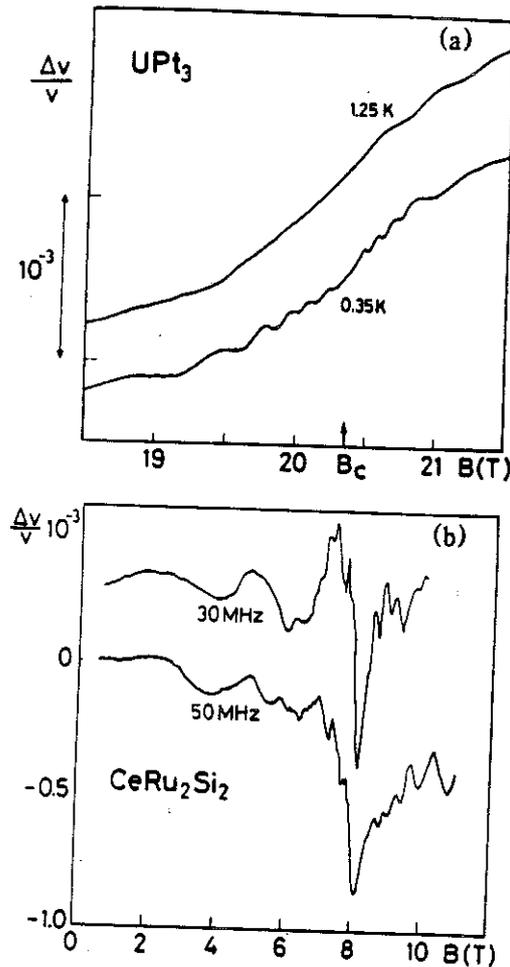


FIG. 2 (a) Field dependence of c_{66} mode at 30 MHz for two different temperatures. Plotted is the relative velocity change in units of 10^{-3} . B and q applied along b axis. (b) Field dependence of c_{44} mode at 1.2 K for two different frequencies (30 MHz, 50 MHz). Plotted is the relative velocity change in units of 10^{-3} . B and q applied along c axis.

respect to B_c , in contrast to CeRu_2Si_2 [Figs. 2(a) and 2(b)].

We tried to analyze the oscillations in different ways, e.g., different power laws in $|B - B_c|$. But the most appealing approach was to plot the extrema as de Haas-van Alphen oscillations, i.e., to plot n vs $1/B_n$, B_n being the field at which the n th extremum occurs. We find piecewise approximate linear dependence between n and $1/B_n$ with different slopes in different field regions, for $B > B_c$. No reasonable field dependence is evident for $B < B_c$. The slopes for $B > B_c$ would correspond to de Haas-van Alphen frequencies (α cross-sectional area) of the order of 1 kT in UPt_3 and 0.2 kT in CeRu_2Si_2 .

Recently de Haas-van Alphen oscillations in UPt_3 were observed at very low temperatures (< 100 mK) in fields up to 12 T.¹⁷ High effective masses for large cross-sectional areas were determined. Note the difference in temperature and field region between our experiment and the one of Ref. 17. While the de

Haas-van Alphen results indicate a stable Fermi surface, our oscillations above 18 T might indicate more complicated behavior as mentioned above.

We conjecture that these oscillations may be related to the vicinity of magnetic instabilities. These oscillations have not been found yet in other physical quantities (for CeRu_2Si_2) such as magnetization,⁵ specific heat,¹⁸ and magnetoresistance.⁵ Note that the oscillations shown in Fig. 2 have small amplitudes of $\Delta v/v \sim 10^{-4}$ and would correspond to rather small cross-sectional areas of the Fermi surface. The oscillations as discussed above might suggest the existence of field-induced spin-density waves (SDW). The complex oscillations point to a Fermi surface successively altered by different regions of stable SDW.

So far field-induced SDW have been discussed only for quasi one-dimensional organic conductors.¹⁹ The calculated phase diagram exhibits stable SDW regions separated by first-order transitions. In addition the appearance of SDW has been observed at zero magnetic field by alloying of UPt_3 with Au, Th,²⁰ or Pd.²¹

Other elastic modes exhibit somewhat less spectacular features.¹⁰ For example, c_{33} in UPt_3 and CeCu_6 and $(c_{11} - c_{12})/2$ in CePb_3 show slow oscillations (one to two periods up to 20 T) in the temperature region 0.4–4 K. Correspondingly magnetization oscillations for M_z with the same period have also been observed for UPt_3 at 4 K.²²

In summary, we have observed strong softening of longitudinal-acoustic modes for these substances in high magnetic fields and we have given a useful phenomenological description of these results in terms of Grüneisen parameter coupling. A microscopic theoretical description is still lacking. In addition, we found velocity and amplitude oscillations for some shear modes where symmetry allows a coupling to magnetic fluctuation in these systems. We conjecture that they probe field-induced electronic instabilities. Further experiments have to probe this conjecture.

This work was supported in part by Sonderforschungsbereiche No. 65 and No. 252.

¹P. A. Lee, T. M. Rice, L. J. Sham, and J. W. Wilkins, *Comments Condens. Mater. Phys.* **12**, 99 (1986).

²J. J. Franse, P. H. Frings, A. de Visser, A. Menovsky, T. T. M. Palstra, P. H. Kes, and J. A. Mydosh, *Physica (Amsterdam)* **126B**, 116 (1984).

³J. Flouquet, P. Haen, F. Lapierre, D. Jaccard, and G. Renyeni, *J. Magn. Magn. Mater.* **54–57**, 322 (1986).

⁴See A. de Visser, A. Menovsky, and J. J. M. Franse, in *Proceedings of the International Conference on Anomalous Rare Earths and Actinides*, Grenoble, France, 1986, *J. Magn. Magn. Mater.* (to be published).

⁵P. Haen, J. Flouquet, F. Lapierre, P. Lejay, J. M. Mignot, A. Ponchet, and J. Voiron, in Ref. 4, and to be published.

- ⁶B. Lüthi, *J. Magn. Magn. Mater.* **52**, 70 (1985).
- ⁷M. Yoshizawa, B. Lüthi, and K. D. Schotte, *Z. Phys. B* **64**, 169 (1986); B. Lüthi and M. Yoshizawa, in Ref. 4.
- ⁸P. Thalmeier and P. Fulde, *Europhys. Lett.* **1**, 367 (1986).
- ⁹A. de Visser, E. Louis, J. J. M. Franse, and A. Menovsky, *J. Magn. Magn. Mater.* **54-57**, 387 (1986).
- ¹⁰I. Kouroudis *et al.*, to be published.
- ¹¹J. D. Thompson, J. O. Willis, C. Godart, D. E. Mac Laughlin, and L. C. Gupta, *J. Magn. Magn. Mater.* **47-48**, 281 (1985).
- ¹²D. Vollhardt, *Rev. Mod. Phys.* **56**, 99 (1984).
- ¹³B. Bonfait, L. Puech, B. Castaing, and D. Thoulouze, *Europhys. Lett.* **1**, 521 (1986).
- ¹⁴G. Aeppli, A. Goldman, G. Shirane, E. Bucher, and Mch. Lux Steiner, in Ref. 4.
- ¹⁵G. Aeppli, H. Yoshizawa, Y. Endoh, E. Bucher, J. Hufnagl, Y. Onuki, and T. Kanatsubara, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 122 (1986).
- ¹⁶L. P. Regnault, W. A. C. Erkelens, J. Rossat Mignot, J. Flouquet, and P. Lejay, to be published.
- ¹⁷L. Taillefer, R. Newburg, G. G. Lonzarich, Z. Fisk, and J. L. Smith, in Ref. 4.
- ¹⁸N. Phillips, private communication.
- ¹⁹See, e.g., M. Heritier, G. Montambaux, and P. Lederer, *J. Magn. Magn. Mater.* **54-57**, 641 (1986); L. P. Gor'kov and A. G. Lebed', *J. Phys. (Paris), Lett.* **45**, L433 (1984); G. Creuzet, J. R. Cooper, F. Creuzet, D. Jérôme, and A. Moradpour, *J. Phys. (Paris), Lett.* **46**, L1133 (1985).
- ²⁰A. P. Ramirez, B. Batlogg, E. Bucher, and A. S. Cooper, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1072 (1986).
- ²¹A. de Visser, J. C. P. Klaasse, M. van Sprang, J. J. M. Franse, A. Menovsky, T. T. M. Palstra, and A. J. Dirkmaat, *Phys. Lett.* **113A**, 489 (1986).
- ²²A. de Visser and J. J. M. Franse, private communication.

3) Commentaires sur le son transverse

Un certain désaccord subsiste avec Pr. Lùthi sur l'interprétation des oscillations de la vitesse des modes transverses observées aussi bien dans CeRu_2Si_2 que dans UPt_3 . Pour ma part, je reste persuadé qu'il s'agit en fait d'une interférence avec le mode longitudinal dans la direction de propagation. Je présente çï dessous un argument en faveur de mon interprétation.

Soient deux transducteurs, émetteur et récepteur, légèrement inclinés par rapport avec l'axe idéal de propagation, ou de polarisation (de vitesse C_i), l'onde émise à une projection sur un mode parasite de vitesse C_p . Le signal détecté par le récepteur a alors par rapport au pulse émis un retard de phase de:

$$\Delta\varphi \simeq \frac{\omega l}{C_i} + \theta^2 \cos \omega l \left(\frac{1}{C_i} - \frac{1}{C_p} \right) \quad (1)$$

où θ est l'angle caractéristique de non alignement (sa valeur dépend si c'est un couplage transverse-longitudinal ou transverse-transverse). En cas d'alignement parfait $\frac{\omega}{\omega_0} = \frac{C}{C_0}$. Dans le cas contraire, on a une contamination par le mode parasite qui peut donner des oscillations de ω_{mes} lorsque C_i varie (ou C_p) de l'ordre de :

$\frac{\delta\omega}{\omega} = \frac{C_i \theta^2}{l\omega} \simeq 10^{-2} \theta^2$ dans une expérience typique. Un mauvais alignement d'environ $3 \cdot 10^{-2}$ radians (2 degrés) peut donc conduire à des oscillations de ω d'environ 10^{-5} .

Pour qu'un terme du type $\cos \omega l \left(\frac{1}{C_i} - \frac{1}{C_p} \right)$ puisse bouger et faire même plusieurs périodes, il faut que :

- ω varie (parce que $\frac{1}{C_i}$ varie et que $\frac{\omega l}{C_i}$ est gardé sensiblement constant),
- ou bien $\frac{1}{C_p}$ varie alors que ω reste sensiblement constant.

Pour faire une période, il faudrait que ω varie d'au moins 1 %, ce qui n'est pas le cas pour les modes transverses ou $\frac{\delta\omega}{\omega} \lesssim 10^{-3}$. Par contre, un couplage avec un mode longitudinal peu permettre à $\omega l \left(\frac{1}{C_i} - \frac{1}{C_p} \right)$ de varier notablement.

Fig.II-1: Chronogramme des échos pour l'échantillon de UPT₃
On note le recouvrement probable entre l'écho transverse et l'écho longitudinal

Transverse

Recepteur

Longitudinal

Emetteur

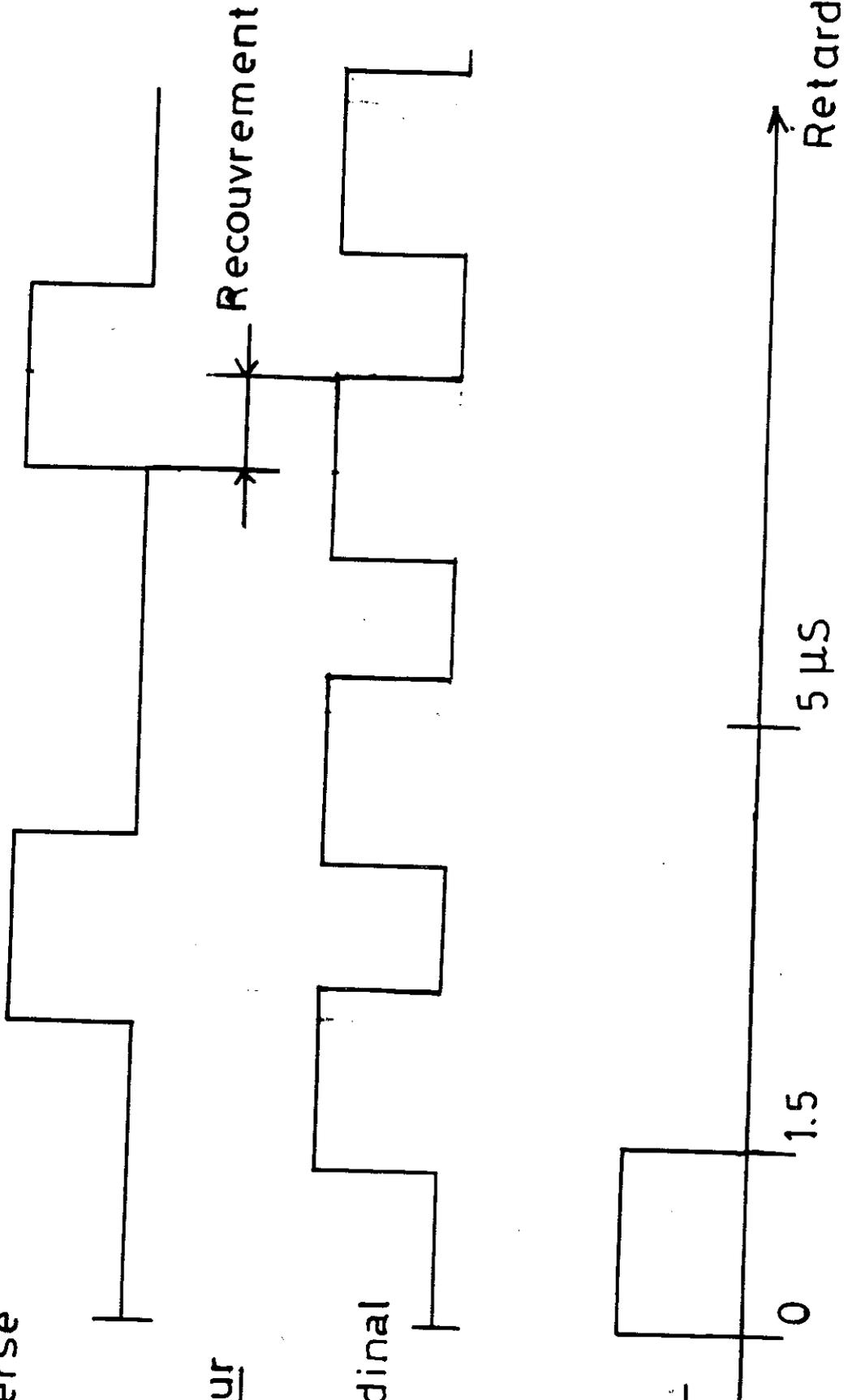
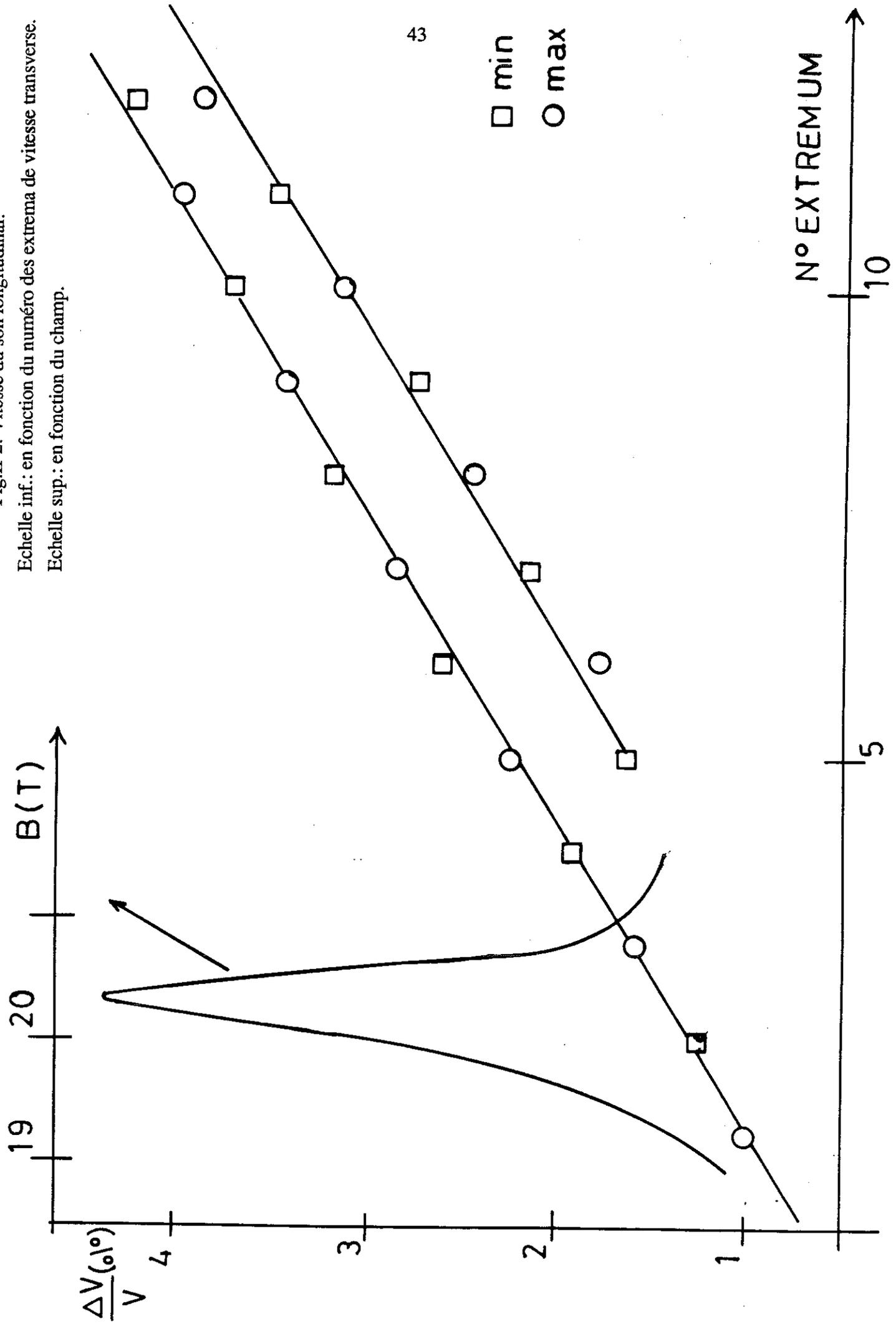


Fig.II-2: Vitesse du son longitudinal:

Echelle inf.: en fonction du numéro des extrema de vitesse transverse.

Echelle sup.: en fonction du champ.



□ min
○ max

$N^{\circ} \text{ EXTREMUM}$
10

On peut conclure que si ces oscillations sont dues à des interférences entre modes, c'est certainement, avec le mode longitudinal qu'elles ont lieu, ce qui d'ailleurs semble tout à fait confirmé par l'accélération de ces oscillations autour du champ critique, leur grande augmentation de période lorsque la température augmente et même leur point d'arrêt au champ critique.

Pour illustrer ce point de vue, j'ai numéroté les extrêmes de la vitesse du son transverse reportée pour U_{Pt_3} à 0,35 K : $i = 1$ à 12 jusqu'à 20,3 Tesla, puis de 12 à 5 au-delà. A ces extrêmes, j'ai relevé les champs magnétiques correspondant, pour lesquels, grâce à la fig. 1, on peut évaluer $\left(\frac{\Delta C_{11}}{C_{11}}\right)_i$. Sur la fig. 2, j'ai porté $\left(\frac{\Delta C_{11}}{C_{11}}\right)_i$ en fonction de i . La formule (1) indique alors, que si les oscillations sont dues à une interférence entre C_{11} et C_{66} , le diagramme correspondant doit être une droite de pente $\left(\frac{\Delta C_{11}}{C_{11}}\right)_{i+1} - \left(\frac{\Delta C_{11}}{C_{11}}\right)_i = \frac{\pi C_1}{\omega l}$.

Sur cette figure, il apparaît très clairement que les extrêmes de C_{66} sont à des écarts constants en $\frac{\delta C_1}{C_1}$, égaux à $3 \cdot 10^{-3}$ aussi bien au dessus que au dessous de 20,3 Tesla.

Pour établir définitivement que ces oscillations sont dues à l'interférence entre C_{11} et C_{66} , il faut encore comparer $\frac{\pi C_1}{\omega l}$ à la valeur trouvée par la procédure ci-dessus : $3 \cdot 10^{-3}$.

Pour ce faire, j'ai schématisé sur la fig. 3 le chronogramme des échos successifs pour chacun des modes transverse et longitudinal, pour un échantillon de 5 mm, en utilisant les valeurs connues : $C_T = 2080$ m/s et $C_L = 4000$ m/s [Thèse Devisser]. Si l'écho détecté pour C_T est le second pour le mode transverse, il s'agira du troisième pour le mode longitudinal (3 allers, 2 retours). On constate aussi que pour des durées de pulse supérieures à $0,9 \mu$ sec, l'interférence aura effectivement lieu.

La longueur parcourue par le pulse longitudinal est alors de 5×5 mm, ce qui donne à 30 MHz $\frac{\pi C_1}{\omega l} = 2,7 \cdot 10^{-3}$ (à comparer à $3 \cdot 10^{-3}$ déduit de la figure).

Comme nous l'avons mentionné plus haut, on peut noter que ces oscillations disparaissent rapidement lorsque la température s'élève, leur période augmentant beaucoup. Ceci est bien sûr à corrélérer aux variations beaucoup moins substantielles de C_{11} lorsque la température s'élève. Si on prend le résultat obtenu plus haut à $3 \cdot 10^{-3}$ de variation de C_1 par 1/2 période sur C_{66} , on constate que moins d'une période doit exister à 2,1 K, ce qui est visiblement le cas.

4) Conclusions

Les résultats obtenus sur la vitesse du son longitudinal dans CeRu_2Si_2 et UPt_3 , sous champ magnétique sont tout à fait spectaculaires, et nous les analysons en grand détail au prochain chapitre.

Par contre, j'ai montré que des doutes très sérieux doivent peser sur la réalité des oscillations de vitesse transverse, qui sont dues à une interférence avec le mode longitudinal, dans le cas de UPt_3 . Pour ce qui est des mêmes "oscillations", dans CeRu_2Si_2 , une telle analyse n'est pas possible, car le résultat de la mesure se présente plutôt comme un bruit, que comme des oscillations réelles.

Plutôt que de considérer ces oscillations comme un phénomène important, je préfère m'arrêter sur le fait que les variations de vitesse du son transverse sous champ sont très petites, et en fait nulles, à l'échelle de celles du son longitudinal. Ceci semble d'ailleurs naturel, puisqu'il est noté que, aussi bien pour CeRu_2Si_2 , que pour UPt_3 , aucun effet n'existe sur le son transverse lorsque la température varie dans la région $T \leq 10$ K. Ceci indique assez clairement qu'il n'y a pas de couplage entre les cisaillements du cristal, et les électrons f du Ce ou de l'Uranium.

CHAPITRE III

MAGNETOSTRICTION SIMPLE LOI D'ECHELLE

A l'époque où ce travail a été publié, j'avais commencé à élaborer une simple hypothèse de loi d'échelle pour l'aimantation sous pression de CeRu_2Si_2 qui avait l'avantage de prédire avec une bonne précision les résultats de vitesse du son. Cette analyse apparaît en filigrane dans la publication de Kouroudis et al., mais, hélas n'était pas entièrement originale puisqu'il est apparu une hypothèse semblable à la même époque (Thalmeier et Fulde) [64]. Cependant, mon approche est différente, en ce sens qu'elle conduit à des résultats distincts pour la vitesse du son.

Puisque les résultats que j'avais obtenus pour la vitesse du son étaient très encourageants, j'ai voulu faire un test croisé, en mesurant, avec P. Haen, la dilatation sous champ. Ces résultats, ainsi que l'hypothèse en question sont présentés assez en détail dans un travail publié en collaboration avec J.M. Mignot et Voiron, du laboratoire Louis Néel. Ils ont mesuré la dilatation dans les plans de base par une technique, très pratique, lorsqu'il s'agit d'effets aussi importants que $\frac{\delta l}{l} \sim 10^{-3}$.

HIGH-FIELD MAGNETOSTRICTION
IN THE PSEUDO-METAMAGNETIC HEAVY-FERMION SYSTEM
 CeRu_2Si_2

L. PUECH, J.-M. MIGNOT, J. VOIRON⁺, P. LEJAY, P. HAEN

and J. FLOUQUET

CRTBT*, CNRS, BP 166 X, 38042 GRENOBLE Cédex, FRANCE

⁺ Laboratoire Louis Néel*, CNRS, BP 166 X, 38042 GRENOBLE Cédex,
FRANCE

Low-temperature magnetostriction experiments have been performed on CeRu_2Si_2 single crystals in magnetic fields up to 15 T. When H is applied parallel to the tetragonal c-axis, a very large expansion is observed in all lattice directions. A pronounced anomaly occurs at a field close to the "metamagnetic" threshold. The results are discussed with use of thermodynamic relations and support a very simple scaling behavior for the pressure dependence of the magnetization.

PACS : 75.20.Hr, 75.80.+q, 75.30.Kz

* Laboratoire associé à l'Université Scientifique, Technologique et Médicale de Grenoble.

1. INTRODUCTION

The heavy-fermion compound CeRu_2Si_2 was recently reported [1,2] to exhibit quite intriguing properties when subjected to high magnetic fields at liquid-helium temperature. In zero field, no long range magnetic order could be detected, and below ~ 10 K the system behaves as a Fermi liquid with a linear specific-heat coefficient γ of $\sim 350 \text{ mJ.mole}^{-1}.\text{K}^{-2}$ [1,3,4], implying fairly large effective masses for the quasiparticles. Furthermore, the magnetization exhibits a very steep increase near $H_M(1.4 \text{ K}) = 8 \text{ T}$, which is reminiscent of metamagnetic transitions in classical antiferromagnets. Magnetotransport coefficients also strongly respond to the change of magnetic polarization in the material [5], especially the electrical resistivity which goes through a pronounced positive maximum for $H \sim H_M$ [2,5]. These features bear strong similarities to those reported for UPt_3 [6], but no "heavy-fermion superconductivity" occurs in the present compound down to 20 mK [5]. Another fundamental difference lies in the fact that, although both systems exhibit marked anisotropic effects in their magnetic properties, CeRu_2Si_2 has an easy axis (the c -axis of the tetragonal structure) [2] whereas in UPt_3 , the easy directions are contained in the hexagonal (a,b) -planes [6]. A clue to the understanding of these systems may be the recent observation of antiferromagnetic (AF) correlations in both of them by neutron experiments [7,8], which corroborates the appearance of long range antiferromagnetic structures in $(\text{CeLa})\text{Ru}_2\text{Si}_2$ [1,9] or $(\text{UTh})\text{Pt}_3$ [10] at moderate concentrations of substituents. Essential pieces of information have also been extracted from the magnetic and transport properties of CeRu_2Si_2 at high pressures [11]. The effects induced are among the largest reported for heavy-fermion systems : the enhanced Pauli susceptibility $\chi(T=4.2\text{K}) \simeq \chi_0 \equiv \chi(T \rightarrow 0)$, measured along the c -axis, is depressed by a factor of 3 at 6 kbar. Correspondingly, H_M increases by a factor of ~ 2.5 so that the product $\chi_0 H_M$ decreases only weakly in comparison to the changes in the other quantities. From this observation, it was inferred in a previous paper [12] that the magnetic transition in high fields might occur for a given amount of magnetic polarization at every pressure. However, because the high-pressure magnetization measurements were limited to $H < H_M$, this speculation still had to be confirmed by experiments in larger fields. It is the purpose of this paper to demonstrate that a simple scaling relation does exist for $M(H,P)$ which is consistent with the preceding results, and can be checked directly by forced-magnetostriction experiments and by comparison to the sound-velocity measurements of ref. [13].

2. EXPERIMENTS

The single crystals used for this study were grown by a Czochralski technique in a triarc furnace, under purified argon atmosphere. The constituents were high-purity elements (Ce : 99.99 %, Ru : 99.999 %, Si : > 99.999 %). Typical dimensions of the specimens were 1 x 0.5 x 0.2 cm. One of the crystals (hereafter sample A) was oriented by x-ray diffraction, and for the other one (sample B), the c-direction was determined unambiguously by cleaving the material (the cleavage-planes are known to be the (a,b)-planes of the structure).

For the strain-gauge experiments, the two opposite faces of sample A normal to the c-axis were carefully polished and cleaned, then two Denfoil, type AP 1801 E, Pt-8 % W gauges were bonded on them, with their grids lying parallel to one of the quadratic axes. In this configuration, the strain was measured only along the a (or b) direction, whereas the magnetic field could be applied either parallel or normal to the c-axis. In measuring magnetostrictive deformations with strain gauges, care must be taken to minimize magnetoresistance effects and to correct for any residual contribution of this type. This was achieved here in three different ways :

i) Pt-W gauges were selected for their smaller, and more reproducible magnetoresistance, as compared to Karma elements [14].

ii) A full-bridge configuration was used, with two extra gauges bonded on a Cu dummy placed in the same magnetic field as the sample.

iii) A "double-weighing" procedure was applied to correct the results for possible dissymmetries in the bridge circuit : for that purpose, a second Cu specimen was measured under the same conditions as the sample and using the same connecting leads.

It should be noted here that the latter correction amounted to less than 9 % of the signal when H was applied along the easy axis. One further advantage of Pt-W gauges is their large gauge factor ($G \sim 4.5$ at room temperature), reflecting strong piezoresistive effects in this alloy. On the other hand, the temperature dependence of G is substantial

and cannot be ignored. Fortunately, this phenomenon has been studied quite thoroughly by two different groups [14,15] on gauges of the same series as those used in the present work but from different batches. Both sets of data consistently yielded a 6 % increase of G down to liquid helium temperature. Whereas small variations between different batches cannot be definitely ruled out, it seemed reasonable to assume a similar behavior for our gauges and G (4.2 K) was therefore taken equal to $4.64 \times 1.06 = 4.91$ in the following. The unbalance of the bridge was measured as a function of field by a conventional low-frequency ac technique. In order to avoid spurious contributions from the presumably large thermal expansion of the material, the temperature was kept constant by directly immersing the sample in liquid helium and by restricting the power dissipation in each strain gauge to less than $1 \mu\text{W}$. The magnetic field was generated by a superconducting solenoid up to 8 T, or by a Bitter coil at the Service National des Champs Intenses in Grenoble up to 15 T.

The capacitance measurements were performed in a simple brass cell consisting of a circular diaphragm with thickness 0.2 mm and diameter 5 mm facing a fixed electrode and surrounded by a guard ring. The sample is pushed against the diaphragm and any variation in its total length is reflected into a change of the measured capacitance \mathcal{C} . The cell contribution was shown to be less than 10^{-5} by preliminary measurements on a brass specimen. In the present experiment, the total relative variation in $\delta\mathcal{C}/\mathcal{C}_0$ did not exceed 5% and was therefore assumed to be proportional to $\delta l/l$. No quantitative calibration of the device was attempted and we thus used a provisional value of $\delta l (\mu\text{m}) = 2.4 \cdot 10^{-2} \delta\mathcal{C}/\mathcal{C}_0$, obtained by applying the usual expression for a parallel-plate capacitor to the actual geometry of the cell. However, this crude estimate might be off by a substantial amount, in case of a slightly defective parallelism of the plates. It should therefore be considered only an order of magnitude of the device sensitivity. The measurements were performed at 1 kHz by a 3-terminal method, using a sensitive home-designed ac bridge. Magnetic fields up to 12 T were produced by a superconducting magnet at the HML-MPI Grenoble.

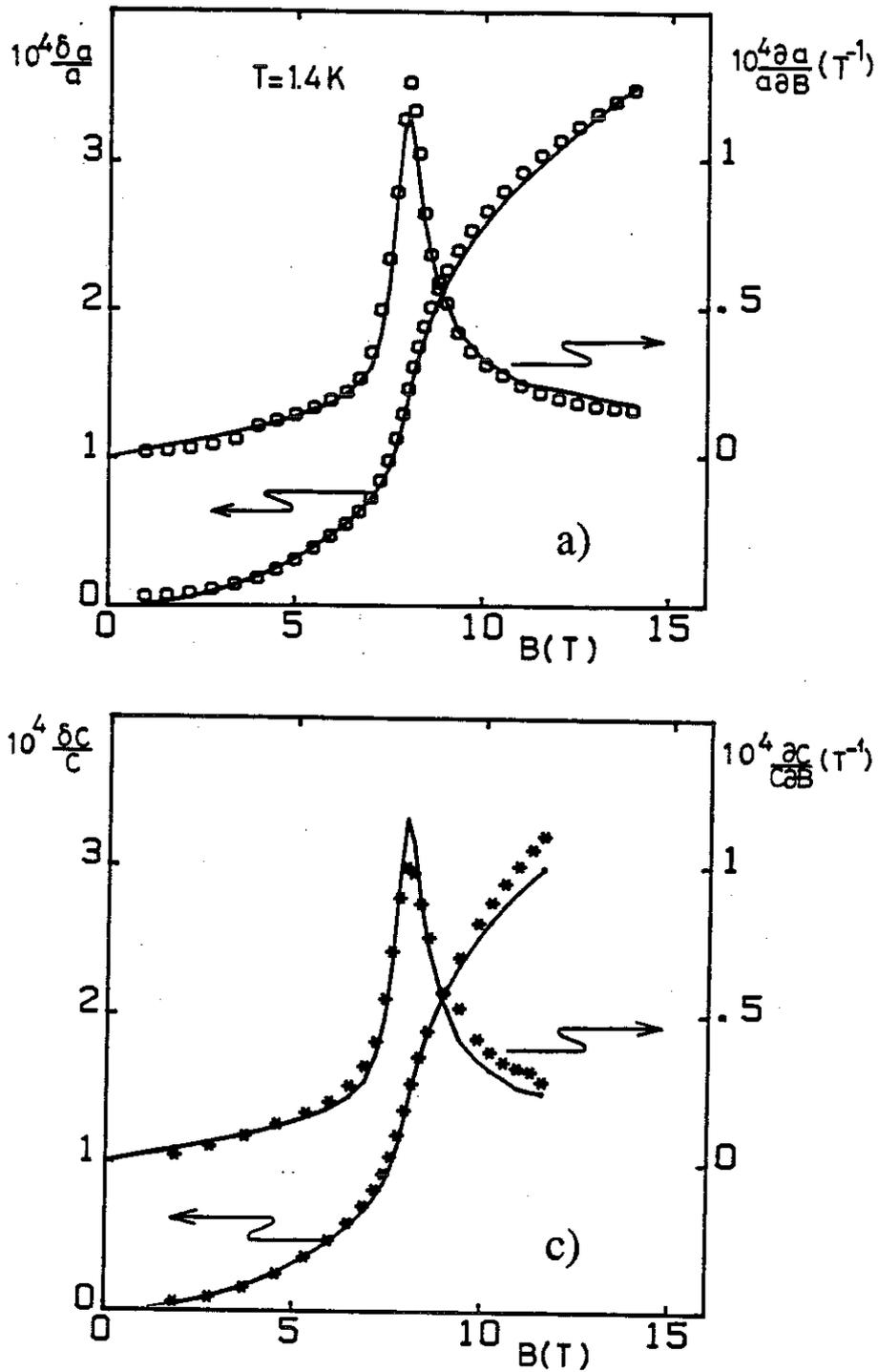


Fig 1: Magnetostriction of CeRu₂Si₂

a) and c) for T=1.4 K strain in the a and c directions respectively

Left scale: total relative length change. Right scale: differential magnetostriction.

(-) Variations calculated with Eqs.(4) and (6). The vertical scales refer to the calculated curves, the experimental data have been normalized (see text)

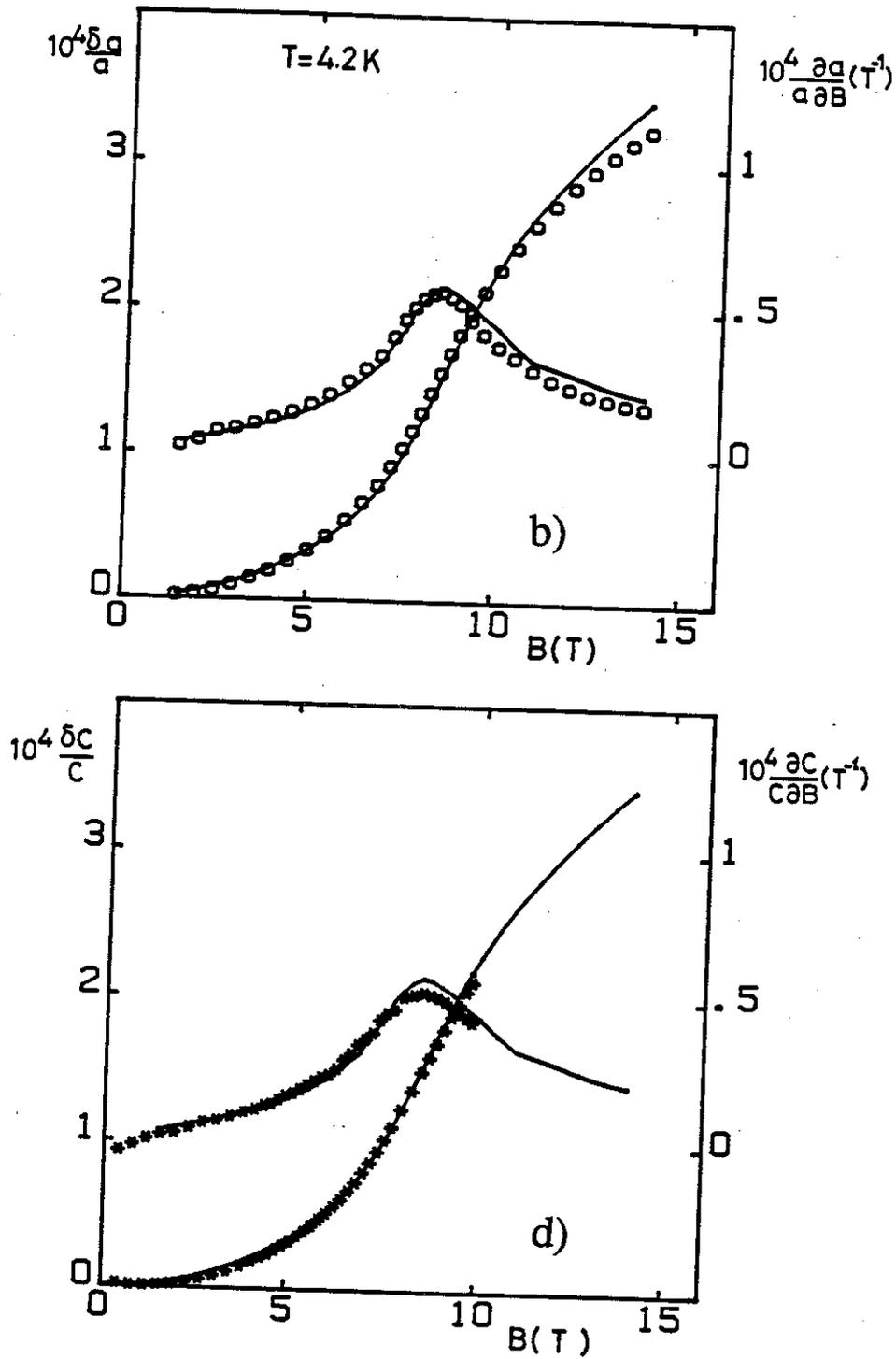


Fig 1:Continued

b) and d) for $T=4.2$ K strain in the a and c directions respectively

Left scale: total relative length change. Right scale: differential magnetostriction.

(-) Variations calculated with Eqs.(4) and (6). The vertical scales refer to the calculated curves, the experimental data have been normalized (see text)

3. RESULTS AND DISCUSSION

3.1. Thermodynamic Maxwell's equations

Figure 1 shows the magnetostriction of CeRu_2Si_2 at 4.2 and 1.4 K when H is applied along the tetragonal axis. The strains both normal ($\delta a/a_0$, sample A) and parallel ($\delta c/c_0$, sample B) to this direction were measured using strain-gauge and capacitive techniques respectively. One immediately notices the exceptional amplitude of the lattice expansion : in 5 T, $\delta V/V_0$ reaches 0.85×10^{-4} at 4.2 K, whereas it is only 0.38×10^{-4} in CeCu_6 , another exotic case [16], and $\sim 10^{-6}$ in the archetype intermediate-valence compound CeBe_{13} [17]. The results exhibit a quadratic regime at low fields ($H \leq 5.5$ T), as expected from Maxwell's relation :

$$\left. \frac{\partial V}{\partial H} \right|_{P,T} = - \left. \frac{\partial M}{\partial P} \right|_{H,T} \quad (1a)$$

which writes, in the linear-magnetization regime ($M = \chi H$) :

$$\frac{1}{V} \left. \frac{\partial V}{\partial H} \right|_{P,T} = - \frac{H}{V} \left. \frac{\partial \chi}{\partial P} \right|_{H,T} \quad (1b)$$

or:

$$\left. \frac{\delta V}{V_0} \right|_{P,T} = - \left. \frac{\partial \chi}{\partial P} \right|_T H^2/2 \quad (1c)$$

In higher fields, the variation becomes steeper, then an inflexion point is reached very close to the metamagnetic transition, after which the slope decreases gradually up to the largest fields accessible. These most unusual characteristics are best illustrated by plotting the field-derivative of the magnetostriction $(1/l_0) \cdot (\partial l / \partial H)_P$: one obtains a very pronounced peak near 8 T at 1.4 K, which rapidly broadens as T increases. It should be mentioned that the effects observed in the two perpendicular directions are essentially proportional up to 9 T. In higher fields, the lattice expansion is faster along the c-axis than in the (a,b)-plane.

We also investigated the effect of a field parallel to one of the lattice directions in the basal plane, the strain being measured along the other one. The results indicated only a very weak expansion of the latter axis, as compared to that observed for $H // c$: since the raw data did not substantially differ from those obtained with the Cu dummy (see § 2), we could determine only an upper limit for $\delta a/a_0 |_{H // b}$ ($\leq 2.5 \cdot 10^{-6}$ in 5 T). Such a small effect could be expected from the strong anisotropy exhibited by the magnetic properties [2]. In the following, we will focus on the results obtained for $H // c$.

Using the previous high-pressure magnetization data [12,18], we can compare the coefficients of the H^2 term to the predictions of thermodynamics (eq. 1c). It appeared on the raw data that $\delta a/a_0$ differed from $(1/3) \delta V/V_0|_{calc}$ by - 38%, which is far beyond the uncertainty in the strain-gauge calibration. This observation suggests that the lattice expansion should be more pronounced along the c-axis than in the basal plane. On the other hand, the experimental values for $\delta c/c_0$ are again smaller than the volume-averaged expectation (now by 55 %) but considering the crudeness of the calibration (see § 2), we do not consider this discrepancy too worrying. It should be mentioned in this connection that substantial —and insofar unexplained— inconsistencies have been previously encountered in comparing volume-magnetostriction and pressure-dependent magnetization experiments [17]. Since $\delta a/a_0$ and $\delta c/c_0$ are found here to be very closely proportional, *relative* volume changes obtained from the experiments will not be affected by changing

one or both calibration factors. However in order to better visualize the small differences between (a,b) and c, and to avoid questionable averaging, $1/3 \delta V/V_0 |_{\text{calc}}$ was fitted separately to the data for each direction using the appropriate multiplicative coefficient.

3.2. One-parameter scaling for $T \rightarrow 0$

The analysis given for the quadratic terms could in principle be carried over to the metamagnetic region and above. Unfortunately, the pressure dependence of $M(H)$ was measured so far only up to 7 T [12,18]. Remembering the relative pressure invariance of $\chi_0 H_M$ (see § 1), we will explore the consequences of assuming that at low enough temperatures, $M(H,P)$ obeys a simple scaling relation over the entire range of magnetic fields, namely :

$$M(H,P)/\mu_B = \psi(H/H_s(P)) \quad (2),$$

where ψ is an odd, pressure-independent function of $H/H_s(P)$. Note that the choice of $H_s(P)$ is arbitrary for one particular pressure (eg $P = 0$). Once $H_s(0)$ has been fixed, the function ψ directly follows from the ambient-pressure magnetization curve (figure 2), and $H_s(P)$ from the pressure dependence of χ_0 :

$$H_s(P) = H_s(0) \frac{\chi_0(0)}{\chi_0(P)} \quad (3)$$

By use of Maxwell's relation (1), we get :

$$\left. \frac{\partial V}{\partial H} \right|_{P,T} = - \left. \frac{\partial M}{\partial P} \right|_{H,T} = \Gamma_H H \left. \frac{\partial M}{\partial H} \right|_{P,T} \quad (4)$$

with :

$$\Gamma_H = \frac{d \ln H_S}{dP} \quad (5)$$

hence, by partial integration :

$$\frac{\delta V}{V_0} = \frac{\Gamma_H}{V_0} \int_0^{M(H)} H(m) dm \quad (6)$$

These relations show that the magnetostriction coefficient is proportional to the differential susceptibility times the magnetic field, and that the total volume change in a field H is proportional to the area delimited by the magnetization curve and the M-axis (figure 2).

In figure 1, the preceding expressions (4) and (6) (solid lines) are compared to the experimental data using $\Gamma_H = 171 \text{ Mbar}^{-1}$ from the $M(H,P)$ measurements and the experimental magnetization curve at $P = 0$. At 1.4 K (1a and 1c), the agreement is quite remarkable if one considers the simplicity of the model. This is especially true in the region of the transition where the sharp structure of the magnetostriction coefficient makes the form assumed for $M(P)$ most critical. We emphasize that no adjustable parameter remained after normalizing the data in the quadratic region. The scaling behavior represented by (2) is therefore confirmed at 1.4 K in the limit $P \rightarrow 0$.

3.3. Finite temperature corrections

At 4.2 K (fig. 1b and 1d) the agreement is still excellent up to the transition but at higher fields substantial deviations appear in the basal plane. It should be realized here that the effect of varying the temperature was included so far only by using a different magnetic isotherm in the calculation of $\partial M/\partial H$ and $\int H dm$ for $T = 1.4$ and 4.2 K. In other words, (2) was implicitly understood as :

$$M(H,P,T)/\mu_B = \psi(H/H_S(P),T) \quad (7)$$

However, we know from reference 18 that the initial susceptibility scales as :

$$\chi(T,P) = \chi(0,P) \phi (T/T_S(P)) \quad (8)$$

which is clearly not consistent with (7).

This discrepancy can be removed by assuming that the magnetization depends on pressure via two scaling parameters for magnetic field and temperature :

$$M(H,P,T)/\mu_B = \psi(H/H_S(P), T/T_S(P)) \quad (9)$$

Here $T_S(P)$ is determined experimentally from the pressure dependence of $\chi(T)$, for instance as :

$$T_S(P) = T_S(0) (T_{\max}(P)/T_{\max}(0)) \quad (10)$$

where T_{\max} is the temperature of the susceptibility maximum [18]. The point here is that,

although pressure is applied at constant temperature, the reduced quantity $T/T_S(P)$ does vary, so that the temperature Grüneisen parameter must enter the final expressions.

A double-scaling ansatz similar to (9) was previously worked out by Thalmeier and Fulde [19] for explaining the thermodynamics of intermediate-valence systems. In CeRu_2Si_2 a major advantage is that there exists enough experimental data to allow a quantitative check. The calculation proceeds as above and yields :

$$\left. \frac{\partial V}{\partial H} \right|_{P,T} = H \Gamma_H \left. \frac{\partial M}{\partial H} \right|_{P,T} + T \Gamma_T \left. \frac{\partial M}{\partial T} \right|_{P,H} \quad (11)$$

and :

$$\delta V/V_o = 1/V_o \left[\Gamma_H \int_0^{M(H)} H(m) dm + T \Gamma_T \int_0^H \frac{\partial M(h)}{\partial T} dh \right] \quad (12)$$

with

$$\Gamma_T = \frac{d \ln T_S}{dP} \quad (13)$$

In comparison with equations (4) and (6), one sees that (11) and (12) contain an additional term. From reference 18, Γ_T is found to be very close to Γ_H (i.e. $\sim 170 \text{ Mbar}^{-1}$). In the linear magnetization regime $(T/\chi) \partial \chi / \partial T|_P$ is about 0.04 at 4.2 K, so that the correction introduced by (11) is marginal. It would of course be even smaller at

1.4 K. For higher fields, no direct estimate of $\partial M/\partial T$ is possible from existing magnetization data, but (12) can be transformed using Maxwell's equation :

$$\left. \frac{\partial M}{\partial T} \right|_{P,H} = \left. \frac{\partial S}{\partial H} \right|_{P,T} \quad (14)$$

yielding :

$$\delta V/V_0 = \frac{1}{V_0} \left[\Gamma_H \int_0^{M(H)} H(m) dm + T \Gamma_T (S(H,T) - S(0,T)) \right] \quad (15)$$

The entropy term can be calculated from specific heat results in high fields [20]. A representative set of values is collected in table I, together with the corresponding ones for $\int_0^{M(H)} H(m) dm$. Since the calorimetric data for CeRu₂Si₂ are limited to 7.5 T, we tentatively extrapolated them to larger fields (12 T) by reference to the alloy (Ce_{0.95}La_{0.05})Ru₂Si₂ in which H_M is depressed to ~ 5 T by La substitution. From this comparison, we conclude i) that the agreement found with equations (4) and (6) at 1.4 K simply reflects the disproportion of the two terms in (12) at least up to 12 T, and ii) that the sign and order of magnitude of the correcting term at 4.2 K are consistent with the deviation observed in fig. 1 above H_M .

3.4. Longitudinal sound velocity

Considering the success of scaling equations in relating the magnetostriction to other thermodynamic quantities, we will try to apply the same scheme to recent longitudinal sound velocity data in high fields for the same compound, which exhibited a

pronounced minimum near H_M [13]. In order to simplify the algebra, the comparison will be limited to 1.4 K and (2) will be assumed. We first derive the compressibility :

$$V_K = \frac{\partial V}{\partial P}|_{T,H} = \frac{\partial V_0}{\partial P} - \Gamma_H^2 \left[H^2 \frac{\partial M}{\partial H} - H_s \frac{d^2 H_s / dP^2}{(dH_s / dP)^2} \int_0^{M(H)} H(m) dm \right] \quad (16)$$

Assuming isotropic elastic constants, we can calculate the relative change in the sound velocity C_L :

$$\frac{1}{m_0 C_L^2} = - \frac{1}{V^2} \frac{\partial V}{\partial P}|_{T,H} \frac{(1 + \sigma)}{3(1 - \sigma)}, \quad (18)$$

where $\sigma \sim 0.3$ is the Poisson ratio and m_0 the molar mass. Hence :

$$\frac{C_L^2(0)}{C_L^2} - 1 = \frac{m_0 c_0^2}{3V_0^2} \frac{1 + \sigma}{1 - \sigma} \left(\frac{\chi'_0}{\chi_0} \right)^2 \left[H^2 \frac{\partial M}{\partial H} - z \int_0^{M(H)} H(m) dm \right] \quad (19)$$

which explicitly relates the field dependence of $C_L(H)$ to the experimental magnetization.

In deriving this expression, we neglected the magnetostriction contribution in the V^2 term because its effect is insignificant ($\leq 10^{-3}$). And we used :

$$z = H_s \frac{d^2 H_s / dP^2}{(dH_s / dP)^2} = 2 - \frac{\chi_0 \chi''_0}{\chi_0'^2} \quad (17)$$

We emphasize that Z is a dimensionless parameter (χ'_0 and χ''_0 denote respectively the

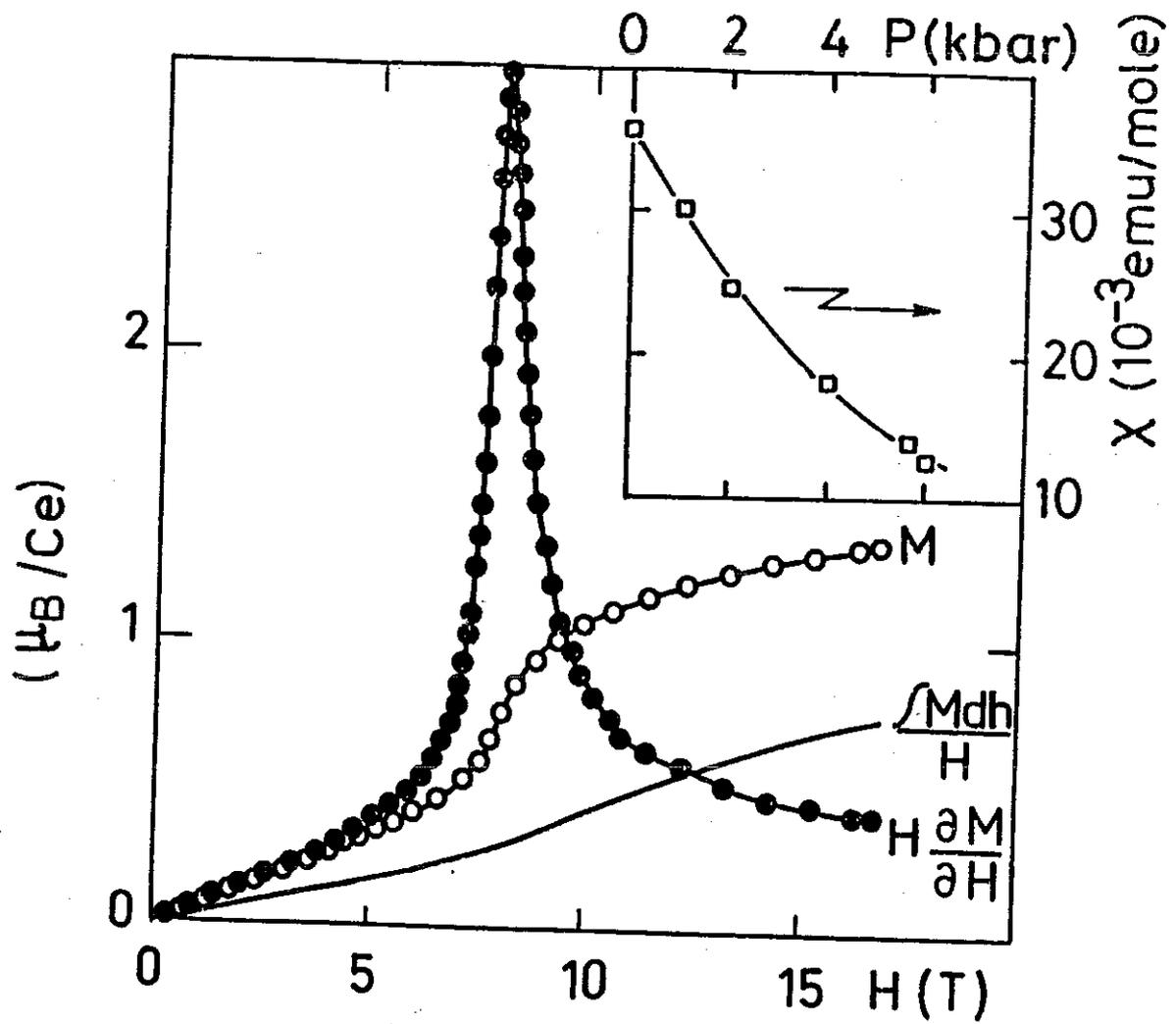


Fig.2: High field magnetization of CeRu₂Si₂ (sample B) at 4.2K for H//c.
 Inset : pressure dependance of χ (4.2K) from Ref.18

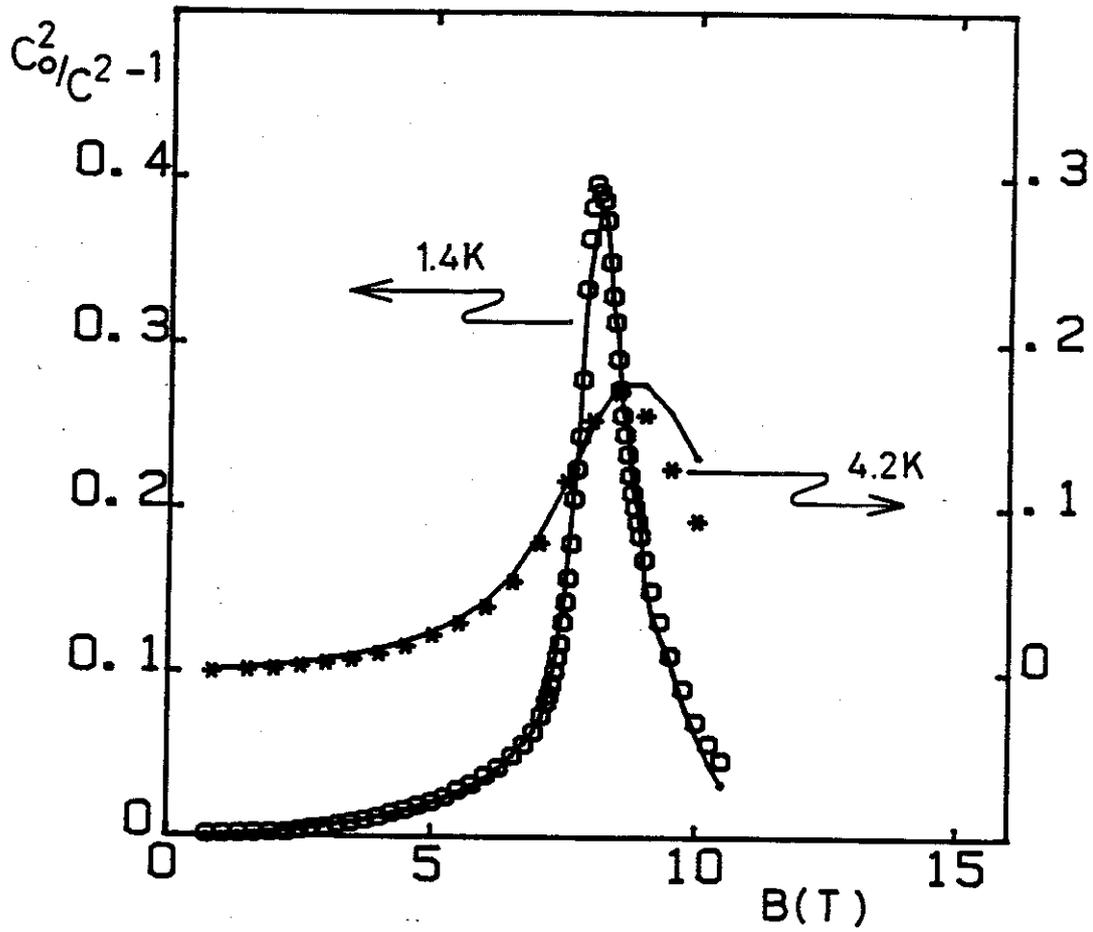


Fig3: Variation of the longitudinal sound velocity of CeRu_2Si_2 (from Ref 13) and fit using Equ (19) (solid lines)

first and second pressure derivatives of the initial susceptibility) whose value for CeRu_2Si_2 is close to unity according to reference 18.

In figure 3, the results of the preceding calculation are compared to the experimental data from [13]. Here we took $C_L(0) = 4 \text{ km/s}$, $\chi'_0/\chi_0 = -171 \text{ Mbar}^{-1}$ and $z = 1$, corresponding to $\chi(P) = \chi_0 \exp(-P \chi'_0/\chi_0)$, yielding $\chi_0 \chi''_0 / \chi'_0{}^2 = 1$ according to ref (18). One sees that an excellent fit to the experimental data points is obtained without any adjustable parameter.

As a matter of fact, the value of z coming out of the magnetization experiments under pressure is affected by a relatively large uncertainty : values significantly smaller than 1 seem rather unlikely but on the other hand, using for instance a polynomial rather than exponential form for $\chi_0(P)$, z can rise up to ~ 1.25 . In the latter case, the quality of the fit would improve at 4.2 K but get poorer at 1.4 K. We believe that the original choice is more plausible : discrepancies at higher temperature are to be expected from the same arguments as in the preceding section, and also because the calculation for C_L yields the velocity of a hypothetical *isothermal* sound, whereas for the range of frequencies used in the experiments of ref. 13, the propagation is certainly *adiabatic*. The latter difference must clearly vanish for $T \rightarrow 0$.

3.5. Uniqueness of the scaling relation

Equation (2) is of course not the only possible choice consistent with the experimental pressure dependence of $\chi_0(P)$. In particular, the pressure increase of H_M , as deduced from magnetotransport measurements [11,12] is not exactly as rapid as that of $1/\chi_0(P)$, whereas (2) predicts them to be identical. In order to check how sensitive the preceding fits are to the form of $M(H,P)$, we have allowed for a larger variational space for $M(H,P)$ by letting the saturation magnetization M_{sat} become pressure-dependent : $M(H,P)/\mu_B = M_{\text{sat}}(P) \psi(H/H_S(P))$. The calculation is similar to that outlined above and the resulting expression for the magnetostriction can again be fitted to the data. Denoting Δ the average relative error :

$$\Delta = [\Sigma (Y_{\text{calc}} - Y_{\text{exp}})^2 / \Sigma Y_{\text{exp}}^2]^{1/2} \quad (20)$$

where Y represents the fitted quantity, the best sets of parameters and corresponding errors are displayed in table II. The lines in which $\Gamma_M = (1/M_{\text{sat}}) \partial M_{\text{sat}} / \partial P \equiv 0$ correspond to the analysis developed in the preceding section ($M_{\text{sat}} = \text{const.}$). One sees that i) the improvement achieved by adding a second adjustable parameter is marginal in all cases, and ii) that $\Gamma_M = 0$ lies within the error bar of the fit. We mention for completeness that the "orthogonal" assumption : $H_S(P) = \text{const.}$ would lead to results completely inconsistent with the experiments. It is interesting to note that La substitution, which can be regarded to some extent as the equivalent of a negative chemical pressure, also leaves the saturation magnetization unchanged [21].

3.5. Microscopic aspects

To summarize, we have demonstrated that, at least in the low-T limit, the initial pressure variation of $M(H)$ for CeRu_2Si_2 can be represented by a very simple scaling equation involving only one pressure-dependent field parameter $H_S(P)$. This has the important consequence that the metamagnetic transition always occurs for the same rate of polarization of the magnetic carriers. This phenomenon had been anticipated from previous magnetic and transport data but the present results confirm it unambiguously. Surprisingly enough, such a simple behavior represents a rather stringent constraint for models addressing the field-induced transition at H_M .

If one thinks in terms of extended spin fluctuations, as is often done in the case of UPt_3 [6], existing calculations indicate that positive curvatures in $M(H)$ are indeed possible, but the leading quadratic correction scales as $(\chi_0(P))^{-3}$ [22], just as in the mean-field, Stoner-Wohlfarth model [23] and therefore $\chi H_S \propto \chi^{-1/2}$. This result is

clearly in contradiction with the experiments which show only a weak decrease of this product under pressure.

Metamagnetic-like features have also been predicted to occur in a system of strongly correlated fermions such as ^3He atoms in the liquid phase. This effect basically reflects a greater localization of the quasiparticles in the presence of a magnetic field. However, in Vollhardt's calculation [24] for a single band situation, the pressure-dependence of the scaling field parameter ($H_S \propto \chi_0^{-2}$) does not correspond to what is observed experimentally.

Very recently, the ground-state Fermi-liquid properties of a Kondo lattice have been revisited using the $1/N$ expansion formalism [25] leading to the remarkable - although not entirely unexpected - result that at sufficiently low temperatures, the problem contains only one relevant energy scale T_K . This prediction was shown to apply reasonably well to CeRu_2Si_2 as far as the P-variations of ρ and χ are concerned [11,12]. Whereas high-field effects were not explicitly considered in the latter theories, there is little doubt that a phenomenological approach based on effective - eg lorentzian - densities of states with widths of the order of $k_B T_K$ and split by the external field [26] could provide the proper scaling behavior. However, the difficulty is to understand how a rather sharp "metamagnetic" effect can result rather than merely a positive curvature in $M(H)$. Level-crossing effects such as those described in ref. 27 seem unlikely here in view of the large crystal-field splittings deduced from the specific heat [1], unless some local enhancement of the applied field takes place as a result of intersite magnetic couplings.

The major role played by short-range AF correlations was emphasized by magnetotransport measurements [5] and, more recently by their direct observation in neutron scattering experiments [8]. An important point is that those effects persist up to ~ 60 K, i.e. far above the characteristic Kondo temperature ($T_K \sim 20$ K) deduced from the low-temperature properties. In this sense, the situation is reminiscent of the long-known problem of "competition between Kondo effect and magnetic interactions" [28], but applied here to a system in which no long-range magnetic structure can develop.

The existence of a single energy parameter may be related to the limited extension of the correlations (nearest and next-nearest neighbors) leading to the occurrence of small magnetic entities (pairs, triplets) experiencing Kondo-like coupling to the conduction electrons. These phenomena were extensively studied some years ago in the context of dilute alloys and their relevance to the Kondo-lattice problem was considered more recently in several theoretical approaches [29].

Acknowledgements

The authors are grateful to M. CAUSSIGNAC, M. FERRARI and S. PELOSI for skillful assistance in preparing the experiments, and to J.-K. MAAN for providing access to the high-field equipment at the HML-MPI Grenoble. Stimulating discussions with D. WEBER and B. LÜTHI are gratefully acknowledged.

REFERENCES

1. M.-J. BESNUS, J.-P. KAPPLER, P. LEHMAN AND A. MEYER, *Solid State Commun.* 55, 779 (1985).
2. J. FLOUQUET, P. HAEN, C. MARCENAT, P. LEJAY, A. AMATO, D. JACCARD and E. WALKER, *J. Magn. Magn. Mat.* 52, 85 (1985).
3. J.D. THOMPSON, J.O. WILLIS, C. GODARD, D.E. Mac LAUGHLIN and L.C. GUPTA, *Solid State Commun.* 56, 169 (1985).
4. F. STEGLICH, U. RAUCHSCHWALBE, U. GOTTWICK, H.M. MAYER, G. SPARN, N. GREWE, U. POPPE and J.J.M. FRANSE, *J. Appl. Phys.* 57, 3054 (1985).
5. P. HAEN, J. FLOUQUET, F. LAPIERRE, P. LEJAY and G. REMENYI, *J. Low Temp. Phys.* 67, 391 (1987).
6. For a review, see for instance : J.J.M. FRANSE, A. de VISSER, A. MENOVSKY and P.H. FRINGS, *J. Magn. Magn. Mat.* 52, 61 (1985).
7. G. AEPPLI, E. BUCHER and G. SHIRANE, *Phys. Rev.* B32, 7579 (1985).
8. L.P. REGNAULT, W.A.C. ERKELENS, J. ROSSAT-MIGNOD, P. LEJAY and J. FLOUQUET (to be published).
9. P. BURLET et J. ROSSAT-MIGNOD (private communication).
10. A.P. RAMIREZ, B. BATLOGG, A.S. COOPER and E. BUCHER, *Phys. Rev. Lett.* 57, 1072 (1986).
11. A. PONCHET, thèse, Université de Grenoble (1987).
12. P. HAEN, J. FLOUQUET, F. LAPIERRE, P. LEJAY, J.-M. MIGNOT, A. PONCHET and J. VOIRON, *J. Magn. Magn. Mat.* 63 & 64, 320 (1987).
13. I. KOUROUDIS, D. WEBER, M. YOSHIZAWA, B. LÜTHI, L. PUECH, P. HAEN, J. FLOUQUET, G. BRÜLS, U. WELP, J.J.M. FRANSE, A. MENOVSKY, E. BUCHER and J. HUFNAGL, *Phys. Rev. Lett.* 58, 820 (1987).
14. R.D. GREENOUGH and C. UNDERHILL, *J. Phys. E : Scientific Instruments* 9, 451 (1976).
15. D.I. BOWER, *J. Phys. E : Scientific Instruments* 5, 846 (1972).
16. J. ZIEGLOWSKI, H.U. HÄFNER and D. WOHLLEBEN, *Phys. Rev. Lett.* 56, 193 (1986).
17. H.U. HÄFNER, *J. Magn. Magn. Mat.* 47 & 48, 299 (1985).
18. J. VOIRON, J. FLOUQUET, P. HAEN, P. LEJAY and J.-M. MIGNOT (to be published).
19. P. THALMEIER and P. FULDE., *Europhys. Lett.* 1, 367 (1986).
20. C. MARCENAT, B. FISHER and N. PHILLIPS, Private communication.
21. P. HAEN and J.-P. KAPPLER, Private communication.
22. M.T. BEAL-MONOD, *Physica* 109 & 110B, 1837 (1982).
23. E.P. WOHLFARTH and P. RHODES, *Phil. Mag.* 7, 1817 (1962).
24. D. VOLLHARDT, *Rev. Mod. Phys.* 56, 99 (1984).
25. A. AUERBACH and K. LEVIN, *Phys. Rev. Lett.* 57, 877 (1986).
26. J. FLOUQUET, P. HAEN, C. MARCENAT, P. LEJAY, A. AMATO, D. JACCARD and E. WALKER, *J. Magn. Magn. Mat.* 52, 85 (1985).
27. K. HANZAWA, K. YAMADA and K. YOSIDA, *J. Magn. Magn. Mat.* 47, 357 (1985).
28. A. OKIJI and N. KAWAKAMI, *J. Magn. Magn. Mat.* 54-57, 327 (1986).
29. S. DONIACH, *Physica* 91B, 231 (1977).
30. J. SCHILLING, *Adv. Phys.* 28, 657 (1979).
31. C. JAYAPRAKASH, H.R. KRISHNA-MURTHY and J.W. WILKINS, *Phys. Rev. Lett.* 47, 737 (1981).
32. M. LAVAGNA, *J. Magn. Magn. Mat.* 47 & 48, 360 (1985).

TABLE I

Comparison of the magnitudes of the field ($\int H dm$) and temperature ($T\Delta S$) contributions in equation 15 for pure $CeRu_2Si_2$ and the alloy $La_{0.05}Ce_{0.95}Ru_2Si_2$.

The energies are expressed in J/mole.

	CeRu ₂ Si ₂			La _{0.05} Ce _{0.95} Ru ₂ Si ₂					
	5T	6T	7.5T	4T	5T	6T	6.5T	7.5T	
T=1.25 K	TΔS	0.014	0.051	0.13	0.06	0.14	0.05	-0.11	-0.31
	$\int H dm$	4.6	6.9	13.3	5.0	9.5	19.1	23.5	9.0
T=4.2 K	TΔS	0.21	0.50	0.67	0.21	0.28	-0.23	-0.64	1.79
	$\int H dm$	4.9	7.6	14.0	5.3	9.2	14.9	18.3	24.8

TABLE II

Fitted values of Γ_H and Γ_M and average relative errors Δ depending on the scaling relation assumed for $M(P)$ (Γ_M adjustable or $\equiv 0$).

Quantity fitted ↓	Γ_H (kbar ⁻¹)	Γ_M (kbar ⁻¹)	Δ (%)
$\Delta V/V$	0.107 ± 0.002	$\equiv 0$	2
	0.114 ± 0.013	0.009 ± 0.013	1.5
$\partial V/V \partial H$	0.112 ± 0.007	$\equiv 0$	6
	0.117 ± 0.014	0.012 ± 0.014	4.7

Pour des mesures plus sophistiquées, par exemple de dilatation thermique, je pense que ce dispositif est insuffisant, du moins tant que des essais avec des échantillons de référence (cuivre) n'auront pas été faits.

Conclusions

Au-delà de l'intérêt scientifique certain que représentent les mesures de magnétostriction sur des échantillons type fermions lourds, dont les propriétés magnétiques dépendent fortement de la pression ; la rapidité de mise en oeuvre et la taille énorme des effets que l'on peut voir de cette façon m'ont séduit. Voilà qui m'a un peu diverti des longues (!) expériences sur ^3He polarisé.

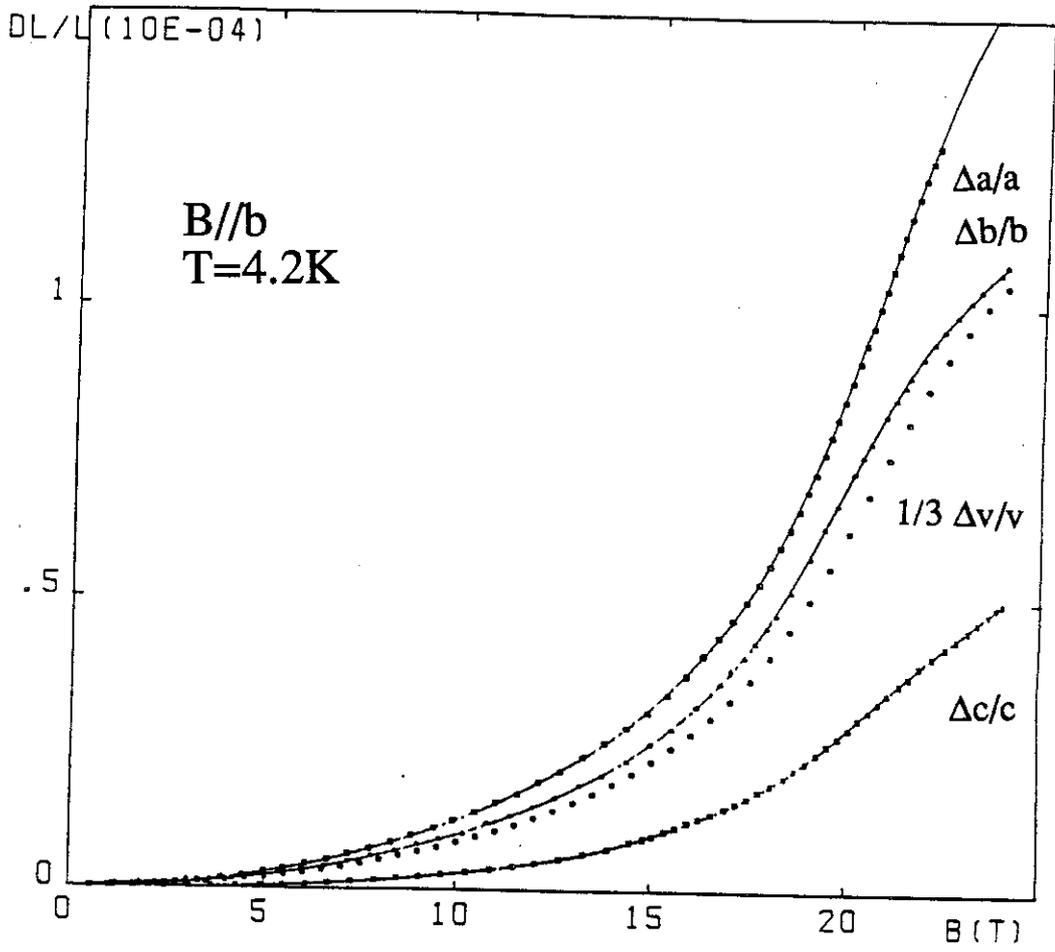
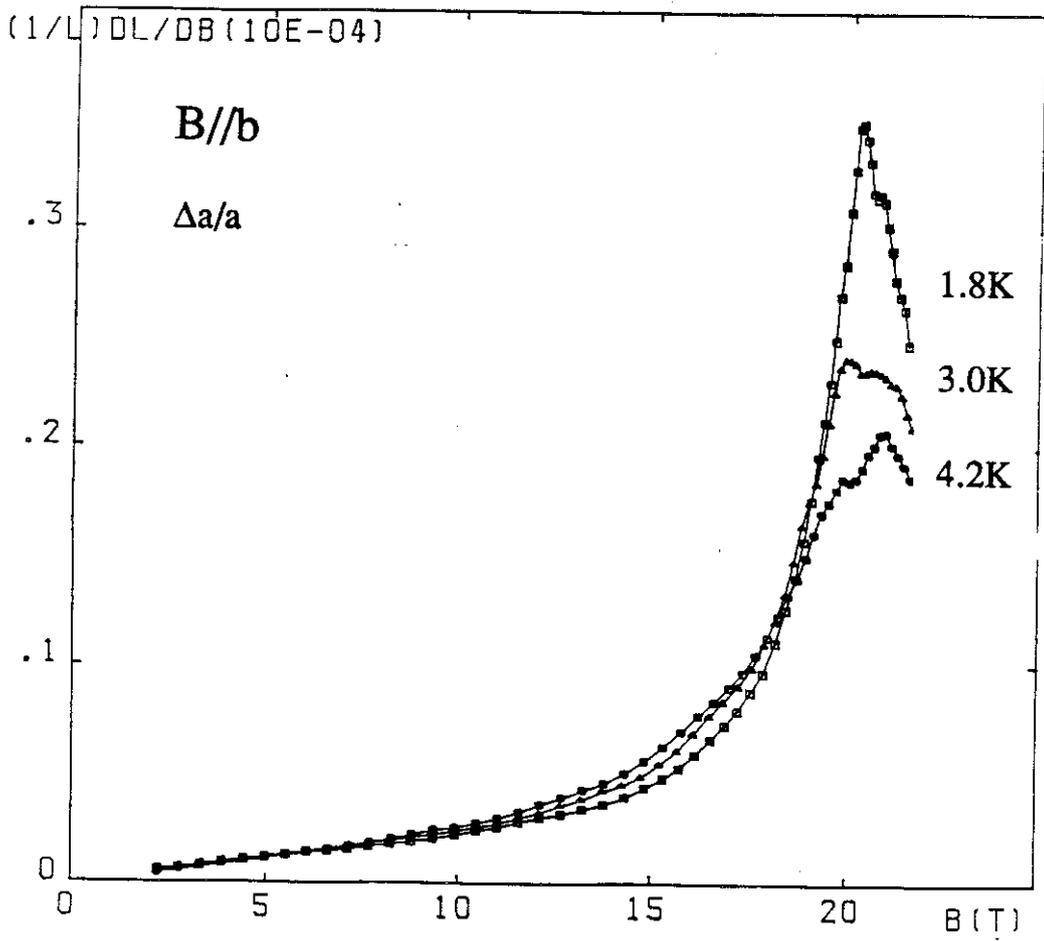


Fig III-2: Magnétostriction le long de a, b et c, et sa dérivée (direction a) dans UPT₃ d'après la Ref (65)



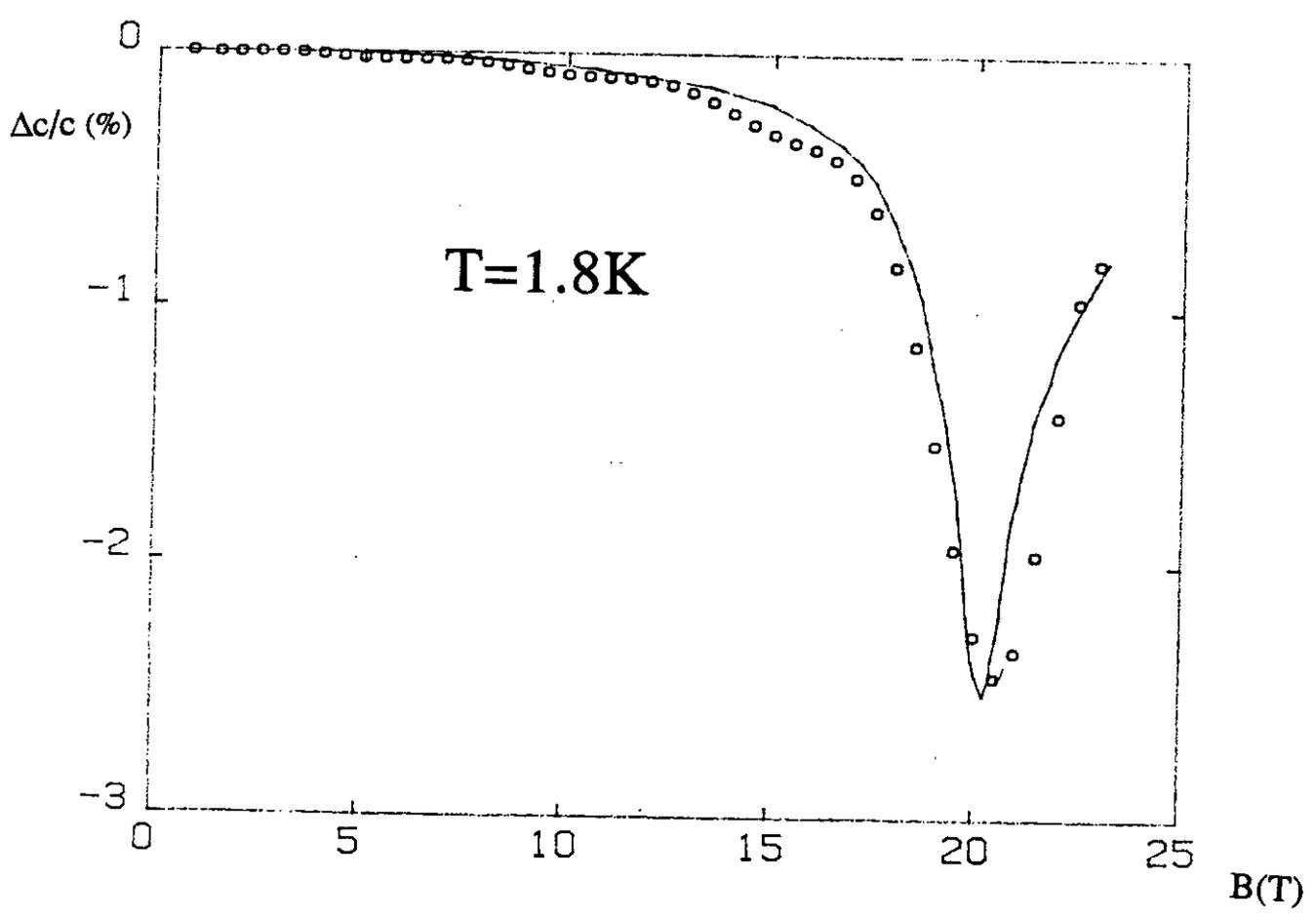
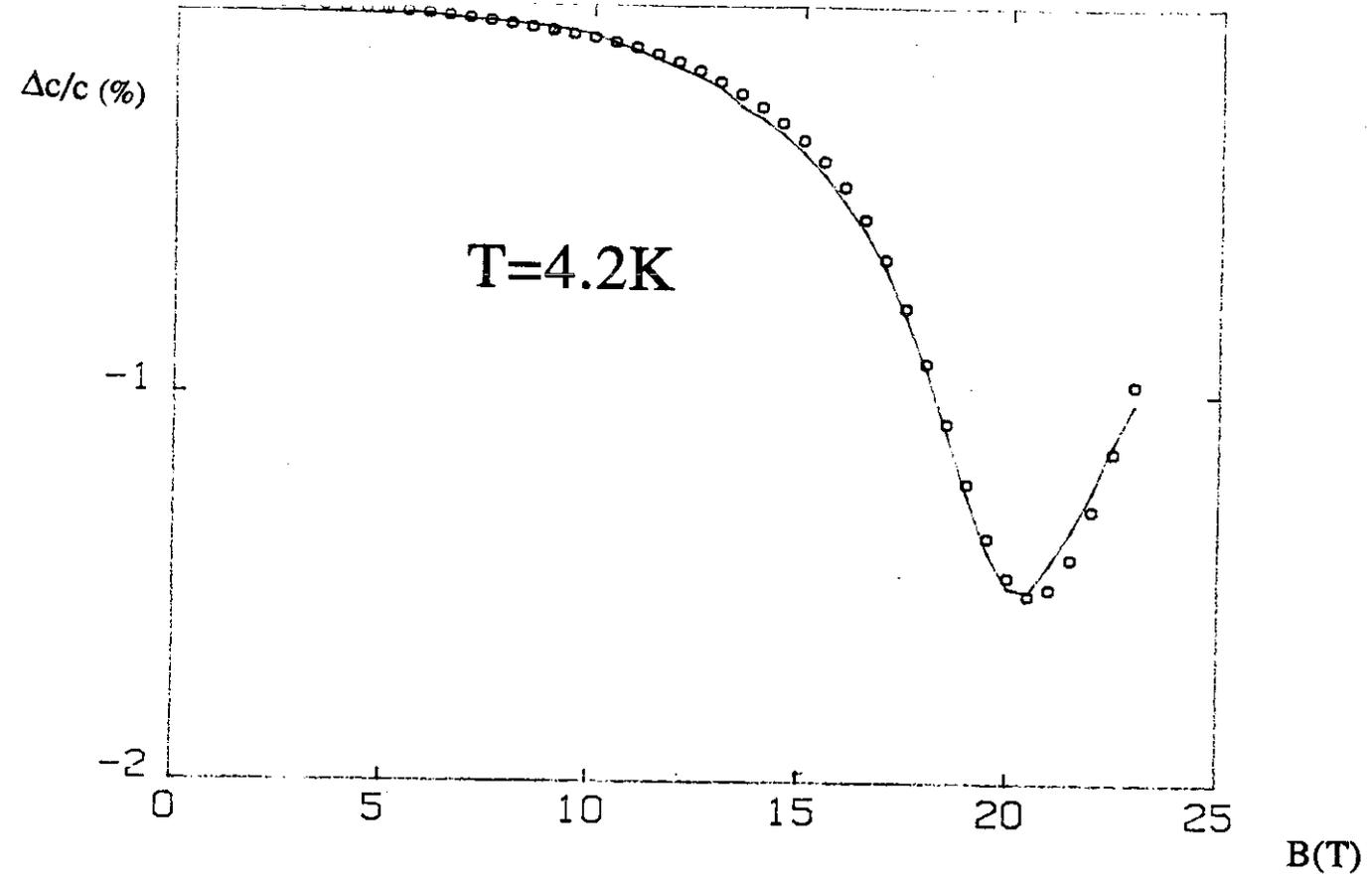


Fig III-3: Vitesse du son dans la direction b à 4.2K et 1.8K
 (—) Mesurée et (o) Calculée d'après la magnétostriction (voir texte)

III - Cas de UPt₃

Ce composé, qui présente du point de vue magnétique beaucoup de ressemblances avec CeRu₂Si₂, est également étudié du point de vue magnéto-acoustique dans le travail de Kouroudis et al., et fait l'objet de plusieurs études à l'intérieur même du laboratoire [Piquemal F., thèse 1988].

Il est également le sujet d'étude de la thèse de A. Devisser [59], en post doctorat actuellement au laboratoire. A. Devisser a effectué au Max-Planck, S.N.C.I. des mesures de magnétostriction jusqu'à 23 Tesla à 1,8 K et 4,2 K (voir fig. III-2). Nous avons tenté d'appliquer la même analyse que sur CeRu₂Si₂ à des propriétés magnétoélastiques. Etant donné la grande résolution des mesures de magnétostriction qu'il a faites, comparée à celle des mesures d'aimantation existantes, j'ai préféré utiliser ces données pour comparer les prédictions de l'hypothèse de loi d'échelle aux mesures d'aimantation en champ pulsé [58] à la mesure de son longitudinal C₁₁ [63].

On peut en effet obtenir des relations tout à fait comparables à celles exposées précédemment, si on se donne la magnétostriction. L'observation directe des résultats obtenus révèle une tendance tout à fait similaire à celle de CeRu₂Si₂, c'est-à-dire un très net point d'inflexion au champ "critique" $H_c \approx 18$ Tesla, dans la magnétostriction et laisse augurer que des résultats corrects peuvent être obtenus à partir de la simple loi d'échelle (7 de l'article précédent).

Un fait important apparaît également dès le premier abord, qui est l'anisotropie de la dilatation dans le plan hexagonal aux forts champs. Une telle anisotropie implique en fait que, à champ fixe, l'aimantation dépend différemment de contraintes uniaxiales // ou \perp au champ, et invalide en partie l'hypothèse (7), qui devrait être substituée par une expression plus sophistiquée des contraintes et de l'orientation du champ.

Cependant les déformations dans les trois directions a,b,c sont sensiblement proportionnelles entre elles, ce qui suggère que l'on peut tenir compte, au premier abord de cette anisotropie en supposant que des paramètres de Grüneisen distincts doivent être introduits pour chaque direction. Dans ce cas l'algèbre est la même que dans le cas isotrope. Il ne fait guère de doute qu'une analyse plus poussée serait possible. Nous ne l'avons pas tentée.

Par ailleurs, la bonne connaissance de toutes les constantes élastiques de UPt_3 à champ nul nous autorise à faire une analyse plus sophistiquée que celle faite sur $CeRu_2Si_2$ où nous avons supposé un tenseur de constantes élastiques isotrope.

En particulier, la variation de vitesse du mode C_{11} , sous champ peut être réécrite :

$$\frac{\Delta C}{C} = - \frac{1}{2KC_{11}^0} \left(\frac{v\partial H_c}{H_c K \partial p} \right) \left[\left(\frac{H\partial v}{v\partial H} \right) - Z \left(\frac{\delta v}{v} \right) \right]$$

$$\text{avec } Z = \frac{H_c H_c''}{H_c'^2}$$

Nous avons, à 4,2 K, cherché les meilleurs coefficients de $\frac{H\partial v}{v\partial H}$ et $\frac{\delta v}{v}$ pour relier $\frac{\Delta C}{C}$ aux mesures de striction. Nous obtenons :

$$Z = 0,75 \pm 0,15 ; \Omega = \frac{1}{2C_{11}K} \times \left[\frac{\partial H_c}{KH_c \partial P} \right] = 24 (1 \pm 4 \%)$$

Cette valeur de Ω doit être considérée comme un coefficient de Grüneisen dans la direction b. Ce "fit" est reporté fig III-3. Les mesures de susceptibilité sous pression conduisent à $\Omega = 20$ [59] avec $\frac{\partial \ln \chi}{\partial P} = -28/\text{Mbar}$. Avec les mêmes paramètres, nous obtenons à 1,8 K un accord excellent (fig. III-3).

IV - Commentaires sur la loi d'échelle

Telle qu'elle est annoncée dans ce travail, la loi d'échelle pour l'aimantation peut se réécrire :

$$B = B_s(P) \phi (m) \quad (1)$$

Elle constitue un résultat surprenant en ce sens qu'il apparaît dans les propriétés de ces fermions lourds, une seule grandeur caractéristique, qui est $B_c(P)$, qui est certainement une combinaison de plusieurs grandeurs.

Les enseignements que l'on pourrait tirer de (1) seraient clairs si on pouvait transformer (1) en une forme équivalente pour des aimantations à volume constant :

$$B = B_c(v) \phi(m) \quad (2)$$

Ce résultat serait d'une grande simplicité, puisque conformément à notre assertion du paragraphe II-II-1, il est admis implicitement que le système d'électrons lourds est décrit par un Hamiltonien qui dépend de certains paramètres ne dépendant que du volume. En fait, nous allons voir que ce n'est pas le cas, et que la forme simple (1) ne nous conduit pas à une relation du type de (2).

1) Cas des composés étudiés

En effet, si on suppose que la relation (2) est vérifiée, à une pression P, on peut trouver un $B_s(P) = B_c(v(P, H=0))$. Lorsque l'on applique le champ à pression constante, le volume change et donc $B_c(v)$ change.

$$\text{On peut estimer : } \delta v \text{ par } \frac{\delta v}{v_0} = - \left(\frac{\partial B_c}{\partial v} \right) K \int B(v, m) dm \quad (3)$$

$$\text{et donc : } B_s(P, H) \approx B_s(P, 0) \left[1 - \left(\frac{v_0 \partial B_c}{\partial v} \right)^2 \frac{K}{v_0} \int B dm \right].$$

On peut évaluer l'importance de ce terme par : $\int \frac{B dm}{v_0} \approx 10 \text{ Bars à } 10 \text{ T}$ et $\left(\frac{v_0 \partial B_c}{\partial v} \right)^2 \approx 10^4$, $K \approx 10^{-6} \text{ Bar}^{-1}$. Le terme "correctif" est de l'ordre de 0,1, ce qui signifie que des variations substantielles de $B_c(v)$ sont obtenues lors de mesures à pression constante.

La situation est similaire pour la quantité plus importante du point de vue magnétoélastique :

$$\left(\frac{\partial B_c}{\partial v} \right) (P, B) \approx \left(\frac{\partial B_c}{\partial v} \right)_{B=0} \left[1 - \left(\frac{v_0^2 \partial^2 B_c}{\partial v^2} \right) K \int \frac{B dm}{v_0} \right]$$

Le terme correctif est ici essentiellement le même que précédemment, et implique en fait, une variation relativement importante de $\left(\frac{\partial B_c}{B_c \partial v}\right)$ à pression constante lorsque l'on varie le champ.

Pour finir, j'ajouterai qu'un calcul exact, où on néglige les variations de $\frac{\partial^2 B_c}{B_c \partial v^2}$, sous champ conduit à :

$$\left(\frac{\partial M}{\partial P}\right)_B = \left(\frac{\partial M}{\partial B}\right)_P \cdot \frac{K v_0 \frac{\partial B_c}{B_c \partial v}}{1 + \left(\frac{v_0^2 \partial^2 B_c}{B_c \partial v^2}\right) K \int \frac{B \, d m}{v_0}}$$

Cette relation implique (1), à condition que le terme de droite varie peu en fonction du champ.

En utilisant l'Ansatz précédent (3), on constate que loin de s'éliminer, les contributions au numérateur et dénominateur s'ajoutent :

$$\left(\frac{\partial M}{\partial P}\right)_B = B \left(\frac{\partial M}{\partial B}\right)_P \cdot \left(\frac{\partial B_s}{B_s \partial P}\right) \frac{\left[1 - \left(\frac{v_0^2 \partial^2 B_c}{B_c \partial v^2}\right) K \int \frac{B \, d m}{v_0}\right]}{\left[1 + \left(\frac{v_0^2 \partial^2 B_c}{B_c \partial v^2}\right) K \int \frac{B \, d m}{v_0}\right]}$$

c'est-à-dire que dans le cas présent, si on suppose (2) valable, la relation :

$$\left(\frac{\partial V}{\partial B}\right)_P = - \left(\frac{\partial M}{\partial P}\right)_B = + \left(\frac{\partial M}{\partial B}\right)_P \frac{\partial B_s}{B_s \partial P}$$

ne serait valable qu'à 20 ou 30 % près, ce qui est, à mon avis exclu.

2) Cas général

On doit se demander à ce stade, s'il est possible que, dans certains cas, les relations (1) et (2) soient équivalentes.

Le cas que j'ai examiné est celui où $B_c(v)$, est un paramètre qui serait nul pour une valeur de volume proche du volume à pression nulle. C'est l'idée la plus simple que l'on peut se faire d'un système presque instable.

$$\text{Soit } B_c(v) = B_0 \left(\frac{v_1 - V}{v_1} \right)^v.$$

En posant : $P_1 = \frac{V_0 - V_1}{K V_1} (< 0)$, la pression fictive où $B_c = 0$;

$$P = P - P_1 ; \delta V = V_1 - V, \bar{B} = B_0 \phi (m)$$

On a :

$$\begin{cases} PK = \frac{\delta V}{V_1} + \frac{vK}{V_1} K \left(\frac{\delta V}{V_1} \right)^{v-1} \int B \bar{d}m & (3) \\ B = \left(\frac{\delta V}{V_1} \right)^v \bar{B} & (4) \end{cases}$$

en éliminant $\left(\frac{\delta V}{V_1} \right)$ entre ces deux équations, on obtient en principe les courbes d'aimantation (p fixé). Si $v > 2$ le deuxième terme dans (3) est négligeable pour tout m par rapport à $\left(\frac{\delta V}{V_1} \right)$ si $\frac{\delta V}{V_1}$ est petit. Fixer P , revient alors à fixer $B_s(P) = B_0 \left(\frac{\delta V}{V_1} \right)^v$ et donc on se ramène à (1). Dans ce cas on peut d'ailleurs calculer la magnétostriction :

$$\frac{\Delta \delta V}{V_1} \approx \left(\frac{\partial B_s}{\partial P} \right) \int B_p dm.$$

On voit donc que (1) et (2) ne s'excluent pas mutuellement. La signification de l'inégalité $v > 2$ est claire : si elle est violée, lorsque le volume varie (augmente), l'énergie magnétique de polarisation $\int B dm$ sera abaissée puisque l'énergie élastique ne

peut augmenter et donc on aura une forte dilatation sous champ : $\frac{\Delta B_c}{B_c} \lesssim 1$. D'ailleurs, si $\nu \leq 2$, on a, à pression constante une transition du premier ordre entre une phase dense et peu polarisée, et une phase dilatée, fortement polarisée.

Pour conclure, j'ajouterai encore que si $B_c \sim \epsilon^\nu$ alors le nombre magique $Z = \frac{\partial^2 B_c}{B_c \partial P^2} / \left(\frac{\partial B_c}{B_c \partial P} \right)^2 = \left(\frac{\nu-1}{\nu} \right)$ est compris entre 1 et 1/2 pour $\nu \geq 2$, ce qui est relativement en accord avec la détermination que nous avons utilisée : $Z = 1$.

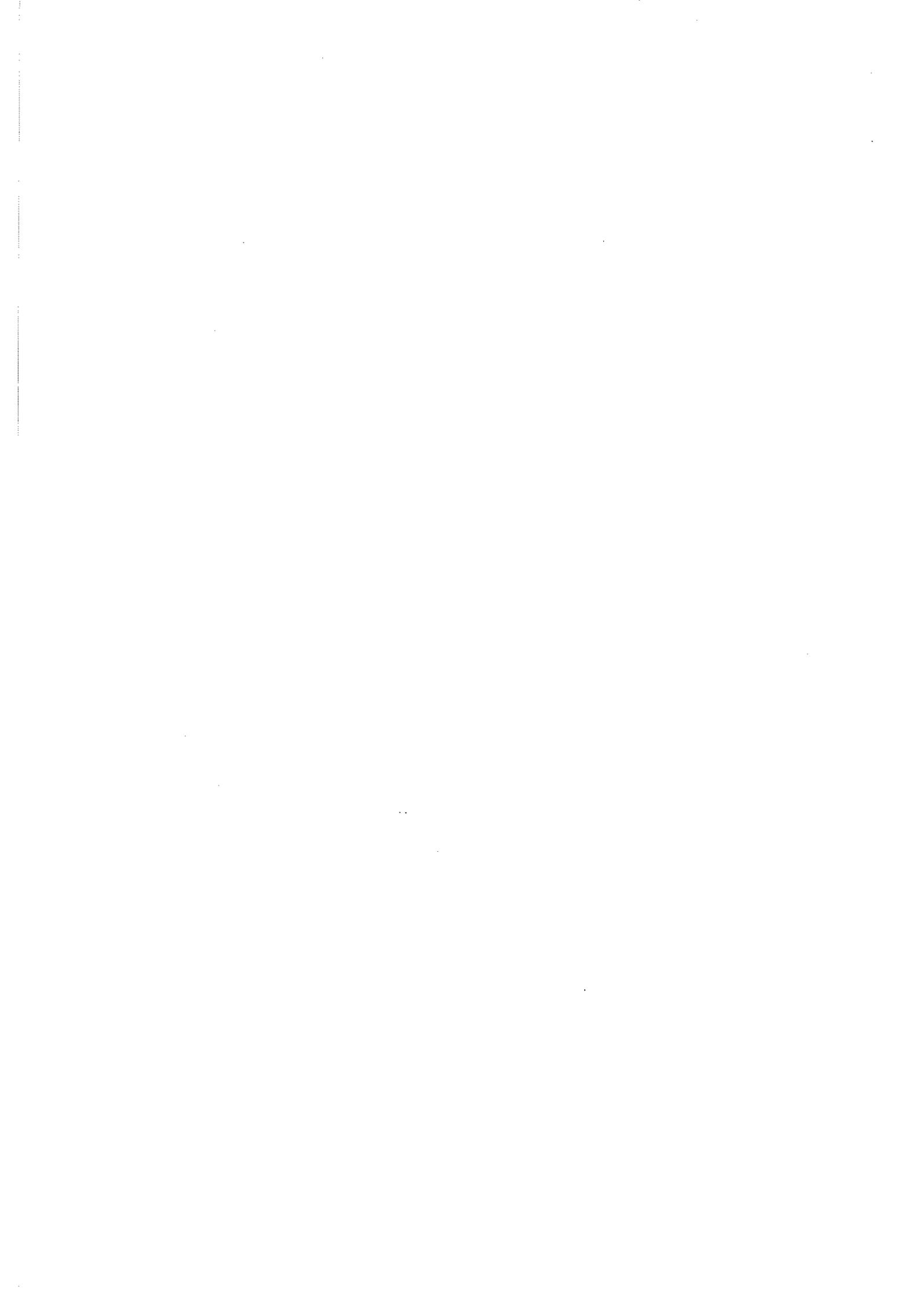
3) Conclusions

Il me paraît un peu hasardeux d'appliquer telle quelle l'analyse précédent à la situation réelle de CeRu_2Si_2 . Cependant, elle mérite de souligner trois points qui me paraissent importants :

- La signification de la loi d'échelle à pression constante doit être examinée avec plus de sérieux que cela n'a été publié effectivement,

- Il est troublant de constater que pour les deux composés dont il s'agit, le critère d'équivalence entre (1) et (2) n'est sans doute pas vérifié, mais que, le nombre z est dans les deux cas très proche de 1 (égal à la précision du fait des expériences près), alors que ce nombre est clairement relié à ce critère d'équivalence.

Dans le modèle de Thalmeier et Fulde, ce terme est absent ; notre approche a donc cette supériorité de faire apparaître un important paramètre sans dimension.

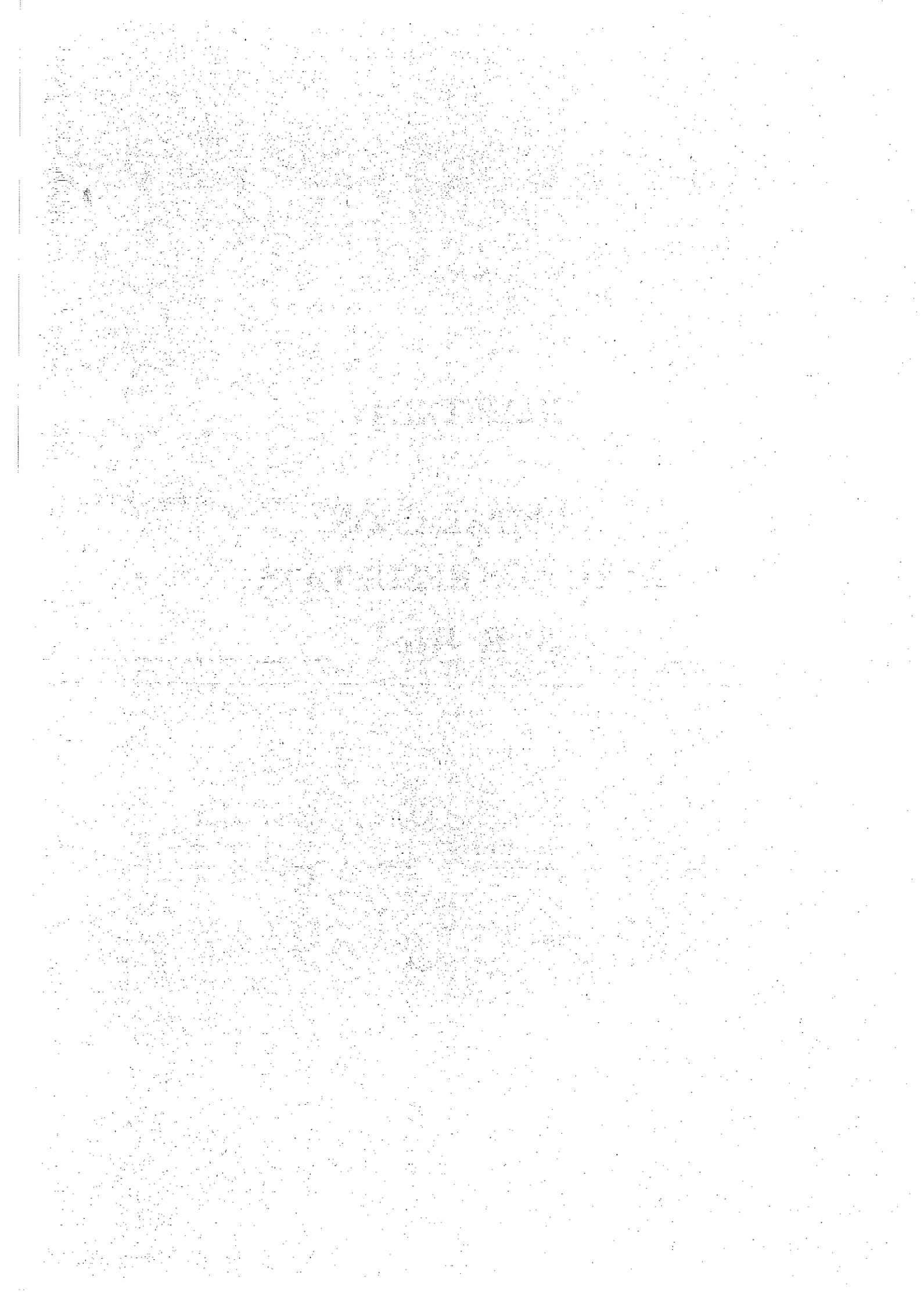


CHAPITRE IV

COMPARAISON

AVEC NOS RESULTATS

SUR $^3\text{He}\downarrow$



I - Introduction

L'importance énorme des effets sur la compressibilité de CeRu_2Si_2 au voisinage du champ "pseudo-métamagnétique", est un point qui finalement m'a beaucoup étonné, ainsi que, je l'espère, d'autres groupes travaillant sur les fermions lourds. Ce point était d'autant plus troublant pour moi, que dans ^3He , l'absence d'effets sur la vitesse du son était évidente.

L'ensemble de ces résultats montraient clairement que :

a) la vitesse du son peut être une quantité sensible au comportement magnétique de l'échantillon. Dans le cas des fermions lourds, elle n'est pas une fonction monotone, même si on la porte en fonction de l'aimantation.

b) Pourtant dans $^3\text{He} \downarrow$, nous n'avons observé qu'un comportement monotone de la vitesse du son avec l'aimantation. Pouvait-on en conclure qu'il n'y avait dans $^3\text{He} \downarrow$ pas d'effets métamagnétiques, contrairement à ce qu'indiquaient les résultats sur la pression de fusion ?

C'est là qu'en fait, la loi d'échelle observée dans CeRu_2Si_2 et UPt_3 a été très utile, car elle a permis d'attirer notre attention sur une différence essentielle entre la propagation du son dans les composés "classiques" et dans ^3He polarisé : dans un cas elle se fait à champ magnétique appliqué constant ($\omega T_1 \ll 1$), et dans l'autre, à aimantation constante ($\omega T_1 \gg 1$). Cette différence est cruciale dans le cas de systèmes quasi-métamagnétiques, puisque des variations de pression à champ fixe peuvent conduire à d'importants changements d'aimantation, alors que dans le cas de m fixé, le champ varie peu quand la pression change (voir fig.). Finalement, il peut apparaître que l'existence de cette loi d'échelle n'est pas cruciale pour la validité de cet argument, mais elle facilite grandement le calcul explicite des variations de compressibilité dans le système polarisé et je pense finalement qu'elle constitue un assez bon point de vue pour l'analyse qui nous intéresse.

Dans l'article qui suit (L. Puech Solid State Communications, vol. 64, n° 9), je développe cette idée, le principe étant essentiellement de :

a) évaluer ce que serait dans CeRu_2Si_2 la compressibilité à aimantation constante, et montrer qu'il est peut être normal que nous n'ayons rien décelé dans $^3\text{He} \downarrow$,

b) insister sur le fait que, même à M constant, la vitesse du son constituait, à priori, un test sensible au comportement magnétique de ^3He . Pour ce faire, j'introduis une autre loi d'échelle "orthogonale" à celle observée dans CeRu_2Si_2 et montre que dans ce cas, nous aurions dû décélérer, une instabilité du type de celle observée, à partir de la courbe de fusion.

II - Travail publié

(Solid State Communications, vol. 64, n° 8, 1987)

**POLARIZED ^3He AND CeRu_2Si_2 : COMPARISON OF THEIR
MAGNETOELASTIC PROPERTIES**

L. Puech

Centre de Recherches sur les Très Basses Températures,
laboratoire associé à l'Université Scientifique, Technologique et Médicale de
Grenoble,
C.N.R.S., BP 166 X, 38042 Grenoble-Cédex, France

(Received 10 July 1987 by E. Bertaut.)

The field induced anomaly in the compressibility of CeRu_2Si_2 is shown to have most of its origin in the pressure-induced magnetization changes. Consequences are drawn for the compressibility at fixed magnetization. We extend those remarks to ^3He , and show that the measured sound velocity remains compatible with the metamagnetic tendency, deduced from the melting pressure lowering.

PACS: 67.50, Fermi fluids, Liquid ^3He .

PACS: 75.80, Magneto mechanical effects.

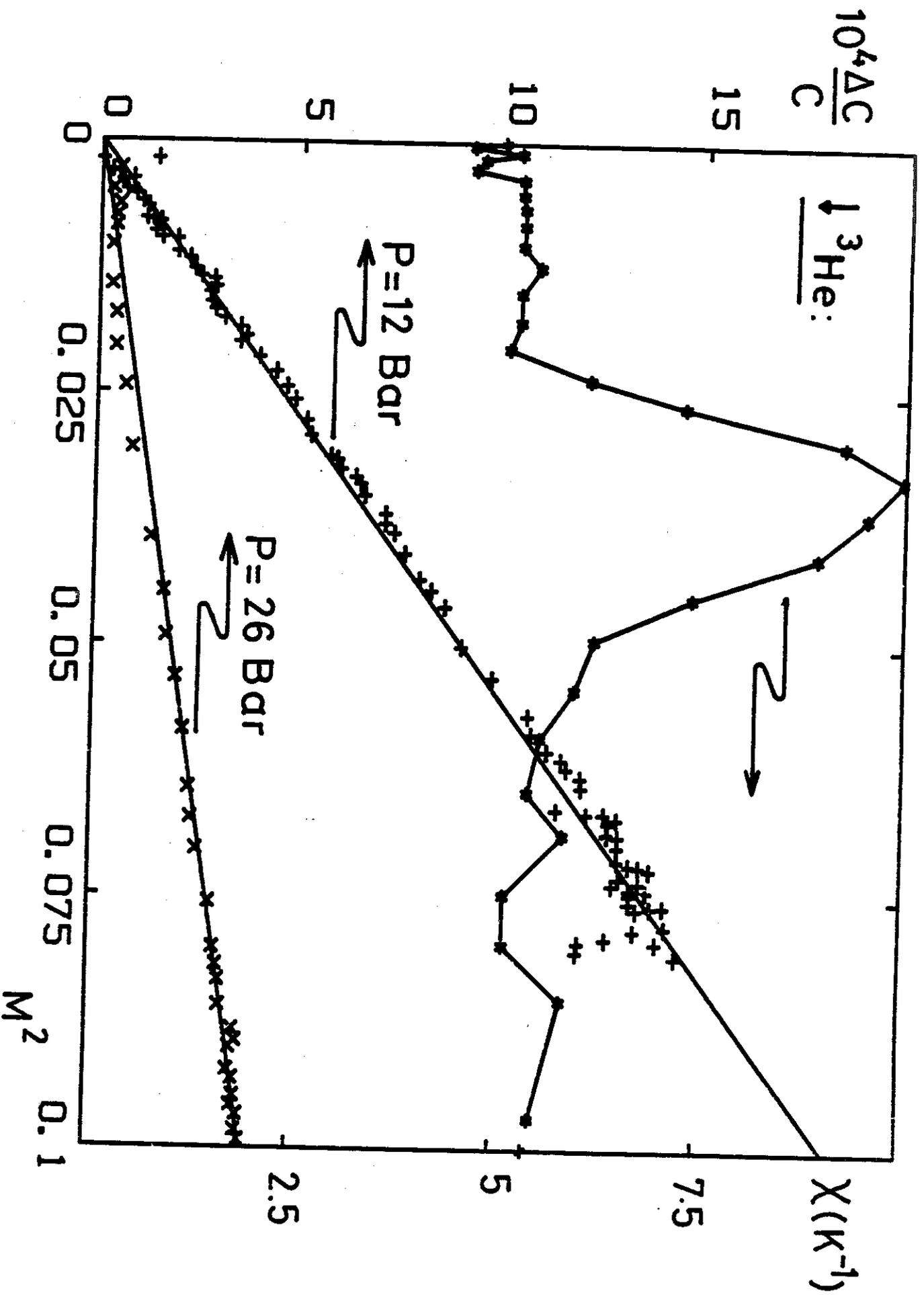


Fig 1 : Differential susceptibility χ (+) in unit of K^{-1} as a fuction of M^2 [7]. And relative sound velocity change at two pressures from ref. [11]. (+,x)

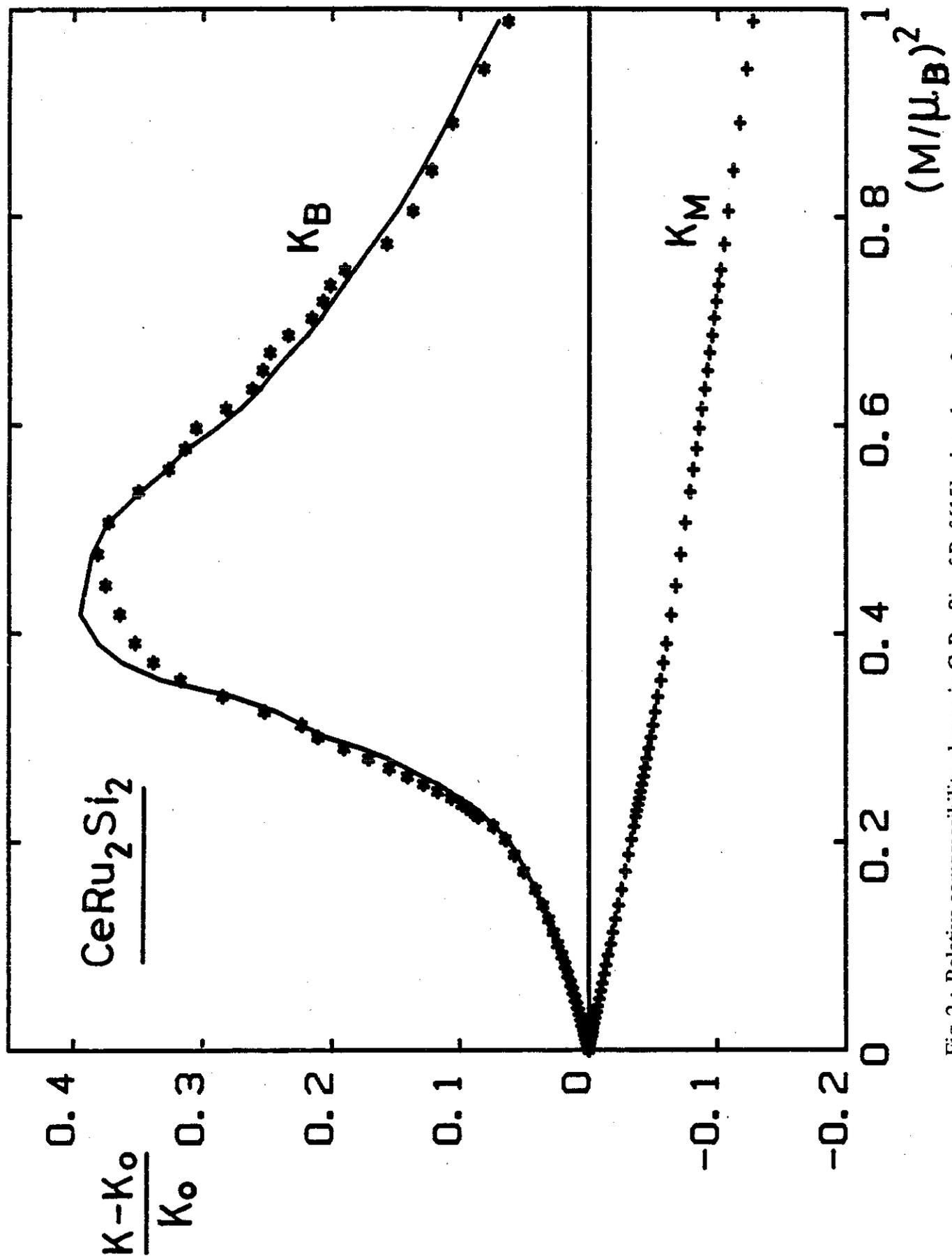


Fig 2 : Relative compressibility change in CeRu_2Si_2 of Ref [15] plotted as a function of squared magnetization per Ce ion in unit of Bohr magneton as reported in Ref[12] (—); and Equations. (5) : K_B (•) and (4) : K_M (+) evaluated from the data of

In this paper, we compare the magnetoelastic properties of two very different systems of fermions : the first one is polarized ^3He , the second one is the heavy fermion (H.F.) compound CeRu_2Si_2 . Both systems exhibit a metamagnetic like transition, i.e. a peak in their magnetic susceptibility at some finite magnetization. While the latter exhibits a strong enhancement of the compressibility (softening) at the field of maximum susceptibility, the former does not.

We will underline the differences in the thermodynamics of sound propagation in both cases, and show that the essential source of softening in the H.F. has its origin in those differences.

This will give a possible explanation for the absence of anomaly in the compressibility of polarized ^3He , a point that has not yet been satisfactorily explained.

^3He :

The magnetization curves of liquid ^3He are inaccessible by classical experiments, owing to the very high fields B necessary to get reasonable magnetization : $M/B \cong 3 \times 10^{-3} \text{ Tesla}^{-1}$ at 10 bars, where M is the nuclear magnetization relative to the saturation. As shown by Castaing and Nozières¹, access to $M(B)$ is provided by the lowering of the melting pressure of polarized solid, the nuclear magnetization remaining quenched during a rather long time T_1 ($> 10-100 \text{ s}$). This technique has been used quite extensively in various experiments^{2,3,4,5}, and showed a clear tendency of the polarized liquid to metamagnetism, as reported in Fig. 1 from ref. [6]. The interpretation of the raw data is complex and involves hypothesis on the morphology of the melting front⁷. This interpretation also assumes that no anomaly occurs in the under pressurized solid-phase, a point that is controversial up to now⁸.

To confirm this metamagnetic tendency, other experiments are performed on transiently polarized liquid ^3He ^{9,10,11}. One of them is the recently reported sound velocity change during the slow relaxation of the nuclear polarization¹¹. It has been rather disappointing to see that no visible anomaly occurs at $M \cong 20 \%$, for which the differential susceptibility is maximum, as reported on Fig 1. Some tentative explanation has been given in terms of the higher temperature and lower pressure used in this experiment, compared to those on the melting curve¹¹.

In fact, we shall show, that under some circumstances, which are well established for the heavy fermions CeRu_2Si_2 and UPt_3 , the measured sound velocity in ^3He is compatible with a sudden enhancement of the susceptibility at some polarization.

CeRu₂Si₂ :

This compound, known as a heavy fermion according to its large effective mass: $\gamma = 350 \text{ mJ/mole.K}^2$, and its large initial susceptibility $\chi_0 = 6E-3\mu_B \text{ Tesla}^{-1}/\text{Ce}$, shows striking properties when subjected to magnetic fields. The differential susceptibility $\chi = (\partial M/\partial B)_P$ is suddenly increased by a factor of ~ 7 at some threshold field $B_c \cong 8 \text{ T}$ ^{12,13}. Those features are very sensitive to pressure changes ; namely $\partial\chi_0/\chi_0\partial P \cong -0,170 \text{ kbar}^{-1}$ and $\partial B_c/B_c\partial P \cong +0,165 \text{ kbar}^{-1}$ ¹⁴. Conversely, the longitudinal sound velocity is strongly softened at this field¹⁵. This softening corresponds to an increase of the compressibility of about 40 % at 8 Tesla. Similar behaviours have been seen in the other compound UPt_3 ^{15,16,17,18}.

Comparison :

For making comparisons between the magnetoelastic properties of ^3He and the those of the H.F., one must realize that in ^3He , the sound propagates at fixed polarization, while in the H.F., the field is fixed in the sound wave, implying local

changes of the magnetization. Keeping this in mind we can evaluate the compressibility at fixed B : K_B , from the compressibility at fixed M : K_M

$$K_B = \left(\frac{-\partial V}{V \partial P} \right)_B = \left(\frac{-\partial V}{V \partial P} \right)_M - \frac{1}{V} \left(\frac{\partial V}{\partial M} \right)_P \left(\frac{\partial M}{\partial P} \right)_B = K_M - \frac{1}{V} \left(\frac{\partial B}{\partial P} \right)_M \left(\frac{\partial M}{\partial P} \right)_B$$

The last expression may be modified, using the identity :

$$\left(\frac{\partial M}{\partial P} \right)_B = - \left(\frac{\partial M}{\partial B} \right)_P \left(\frac{\partial B}{\partial P} \right)_M, \text{ to get : } K_B = K_M + \frac{1}{V} \left(\frac{\partial B}{\partial P} \right)_M^2 \left(\frac{\partial M}{\partial B} \right)_P \quad (1)$$

This expression shows : (i) $K_B > K_M$ for a paramagnetic medium; (ii) at a metamagnetic threshold, $(\partial M / \partial B)_P$ is suddenly increased ; thus K_B can show a strong increase , while nothing happens for K_M . This is precisely what we observe here : K_B in CeRu_2Si_2 shows a sharp maximum at the metamagnetic threshold, while K_M is monotonous in $\downarrow^3\text{He}$.

In the following section we show that the origin of the softening in CeRu_2Si_2 is essentially this last term ; and that, if the experiments in CeRu_2Si_2 were done at fixed magnetization, no anomaly would occur.

Simple scaling in CeRu_2Si_2 :

Equ. (1) allows comparison between K_B and K_M provided $(\partial B / \partial P)_M$ is known, which is not the case. Helpfully, we report in Ref [19] extensive magnetostriction measurements, and show that the magnetoelastic properties of the compound are very well described by the simple scaling form for $M(B,P)$:

$$M = F(B/B_S(P)) \quad (2)$$

where $B_S(P)$ is the unique field scale of the magnetization curves at pressure P :

$$\frac{\partial B_S}{B_S \partial P} = \frac{\partial B_c}{B_c \partial P} = - \frac{\partial \chi_0}{\chi_0 \partial P}$$

Such a simple form for $M(B,P)$ allows us to relate all the magnetoelastic properties to a single $M(B)$ curve at ambient pressure. Namely the volume change in field is :

$$\Delta V = \frac{\partial B_S}{B_S \partial P} \int_0^{M(B)} B'(M') dM' \quad (3)$$

This yields K_M and K_B :

$$K_M = K_0 - \frac{1}{V} \frac{\partial^2 B_S}{B_S \partial P^2} \int_0^{M(B)} B'(M') dM' \quad (4)$$

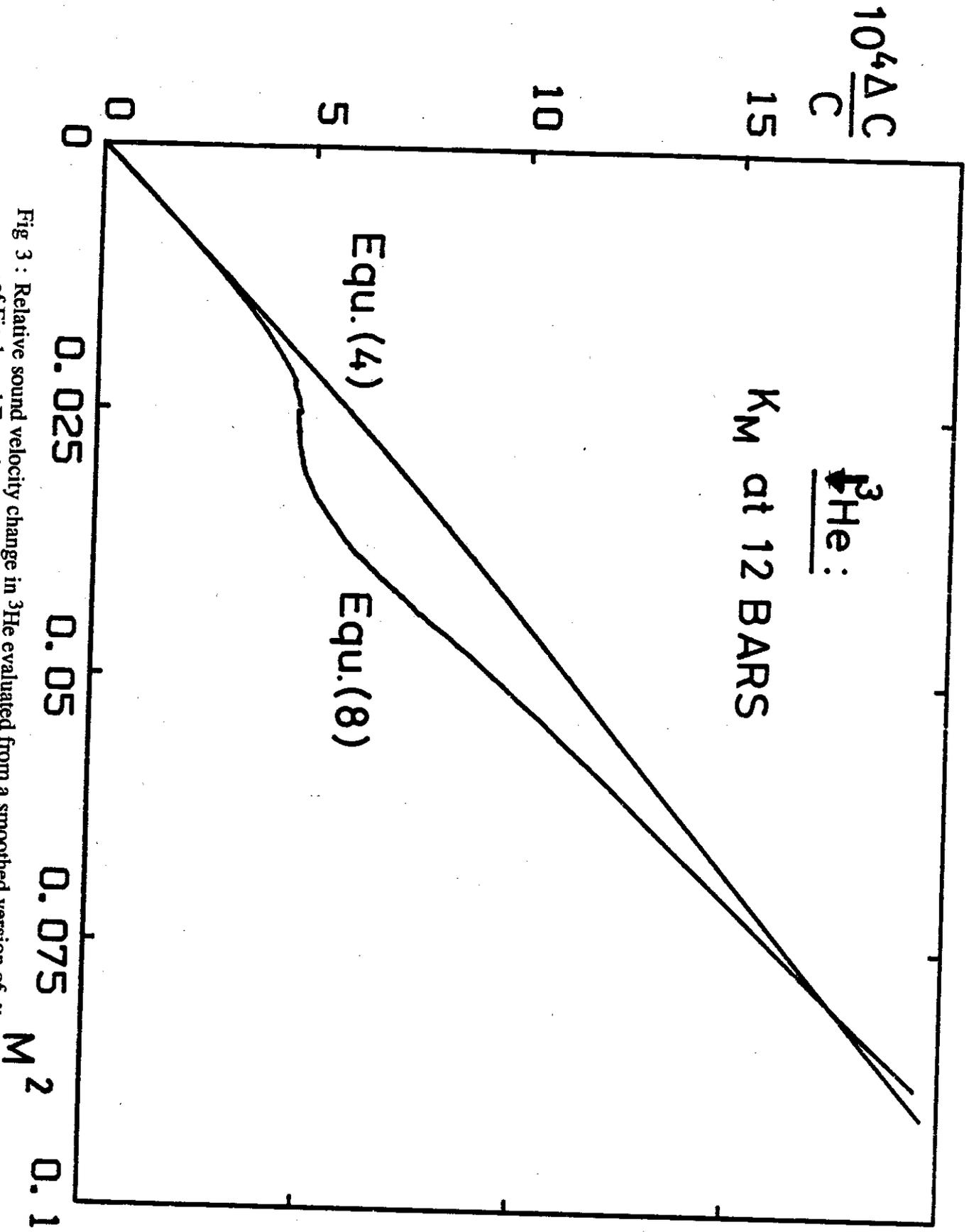


Fig 3 : Relative sound velocity change in ^3He evaluated from a smoothed version of χ of Fig 1, and Equations (4) and (8) ; at a pressure of about 12 Bar ,for which an estimated set of values is [22] :
 $V = 29.7 \text{ cm}^3$, $K_0 = 10^{-2} \text{ bar}^{-1}$, $1/\chi = .238 \text{ K}$, $d(1/\chi)/dP = -2.13 \times 10^{-3} \text{ K/bar}$,
 $d^2(1/\chi)/dP^2 = 4.2 \times 10^{-4} \text{ K/Bar}^2$.

$$K_B = K_M + \frac{1}{V} \left(\frac{\partial B_S}{B_S \partial P} \right)^2 B^2 \left(\frac{\partial M}{\partial B} \right)_P \quad (5)$$

where we have substituted $\left(\frac{\partial B}{\partial P} \right)_M = B \frac{\partial B_S}{B_S \partial P}$ in equ. (5).

In ref. [19] equ. (3) and (5) are shown to describe to a high accuracy the available data, thus giving confidence to the proposed form of Equ. (2) for this compound. In Fig. 2 we have plotted K_B of Ref [15] versus M^2 of ref. [12], the natural coordinate for the ^3He experiments, together with the data of refs. [12,13] and the form of Equ.(5). We also report the calculated K_M of Equ. (4). This figure makes obvious the fact that the huge softening observed by Kouroudis et al. is due essentially to the second term of equ. (5), a term that is absent in the $\downarrow^3\text{He}$, or quenched-moment sound experiments. We thus can draw two conclusions :

- If Kouroudis et al could make sound velocity experiments at fixed polarization in CeRu_2Si_2 or UPt_3 they would not observe this striking huge softening, they have reported.

- Moreover, if $\downarrow^3\text{He}$ has a behaviour close to equ. (2), it is quite natural that no anomaly occurs in the compressibility (See Fig.3), thus showing that the sound velocity experiments of Bonfait et al. does not rule out the metamagnetic tendency shown from the melting pressure ones. A cross check of this tendency is then highly needed, all the more since it has recently been predicted theoretically in two very different approaches by Vollhardt²⁰, and Bedell et al.²¹.

On the other hand, this last conclusion depends on the form of $M(B,P)$. For instance if (2) is replaced by (6): $M = M_S(P) G(B)$; where $M_S(P)$ is a pressure dependent magnetization scale, the situation is more or less reversed : K_M shows an extremum at the metamagnetic threshold, while K_B remains a monotonous function of B .

$$\text{Namely : } K_B = K_0 + \frac{\partial^2 M_S}{V M_S \partial P^2} \int_0^B M' dB' \quad (7)$$

$$\text{and } K_M = K_B - \frac{1}{V} \left(\frac{\partial M_S}{M_S \partial P} \right)^2 \frac{M^2}{\left(\frac{\partial M}{\partial B} \right)_P} \quad (8)$$

K_M of Eqs.(4) and (8) are plotted on Fig. 3 for liquid ^3He . Those curves show that while, if Equ. (2) is assumed, K_M is a monotonic function of M^2 , this fact effectively depends on the specific form of $M(B,P)$, as shown by Equ.(8). Thus, sound velocity experiments, even at fixed M , are "a priori" sensitive probes of the eventual metamagnetic tendency . The absence of anomaly reported in ref. [11] may then be considered as an indication of the fact that (2) is close to the real behaviour of liquid ^3He .

Finally, let us quote, that the difference in K_B and K_M implies a substantial source of sound attenuation when the frequency ω of the sound wave crosses over the two regimes: $\omega\tau \ll 1$: $K = K_B$ or $\omega\tau \gg 1$: $K = K_M$, where τ is an hypothetical

unique relaxation time of the magnetization. In the cross over region we would have an attenuation, that we can express from the quality factor Q of the wave :

$$Q^{-1} = \left(\frac{\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \right) \frac{\left(\frac{\partial M}{\partial P} \right)_B \left(\frac{\partial B}{\partial P} \right)_M}{K_0 V}$$

This expression is the ratio of the dissipated energy per period to the stored compressional-energy. The last factor is nothing but the relative compressibility change due to the magnetization changes in Equ.(1). As seen on fig.2, this factor reaches 0.5 at 8 Tesla in CeRu_2Si_2 and implies a strongly damped sound wave for $\omega\tau \sim 1$.

This anomalous attenuation may be observed in the thermal phonon line width of inelastic neutron scattering experiments, and may also be a source of transport anomalies at the metamagnetic threshold

Conclusions

We emphasize an important difference in the sound propagation in classical media and polarized ^3He .

Introducing the very simple scaling hypothesis (2), well verified for CeRu_2Si_2 , we can remove the apparent contradiction between the suspected metamagnetism of ^3He and the sound velocity results we have recently reported¹¹.

Implications concerning a new source of sound attenuation in H.F., have also been presented.

Acknowledgements - P.E. Wolf, P.Haen and J. Flouquet are greatly acknowledged for very stimulating observations on the structure of this letter.

REFERENCES

- [1] - B. Castaing, P. Nozieres : *J. Physique* **40**, 239, (1979).
- [2] - M. Chapellier, M. Olsen, F.B. Rasmussen : *Proceedings of LT16, Physica* **109&110B** (1982).
- [3] - G. Bonfait, L. Puech, A.S. Greenberg, G. Eska, B. Castaing, D. Thoulouze : *Phys. Rev. Lett.* **53**, 1092 (1984).
- [4] - A. Dutta and C.N. Archie : *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2949 (1985)
- [5] - G. Vermeulen, S.A.J. Wieggers, C.C. Kranenburg, R. Jochemsen, G. Frossati : *Banff Conf. on Quantum fluids and solids, Proceedings in Can.J.of Phys.*(1986)
- [6] - G. Bonfait, L. Puech, B. Castaing, D. Thoulouze : *Europhys.Lett.* **1**, 521(1986)
- [7] - L. Puech, G. Bonfait, B. Castaing : *J.Phys.* **47**, 723 (1986)
- [8] - J.P. Bouchaud, C. Lhuillier : *Europhys. Lett.* **3**, 481 (1987)
- [9] - P. Kopietz, A. Dutta, C.N. Archie : *Phys. Rev. Lett* **57**, 1231(1986)
- [10] - Kranenburg, Wieggers et al. : to be published in **LT18**, proceedings.(1987)
- [11] - G. Bonfait, L. Puech, W.P. Halperin, B. Castaing : *Europhys. Lett* **3** , 489 (1987)
- [12] - J. Flouquet, P. Haen, C. Marcenat, P. Lejay, A. Amato, D. Jaccard and E. Walker : *J. Magn. Magn. Mat.* **52**, 85 (1985)
- [13] - P. Haen, J. Flouquet, F. Lapiere, P. Lejay and G. Remenyi : *J. Low Temp. Phys.* **67**, 391 (1987)
- [14] - P. Haen, J. Flouquet, F. Lapiere, P. Lejay , J.M. Mignot, A. Ponchet and J. Voiron : *J. Magn. Magn. Mat.* **63-64**, 320 (1987).
- [15] - I. Kouroudis, D. Weber, M. Yoshizawa, B. Luthi, L. Puech, P. Haen, J. Flouquet, G. Bruls, U. Welp, J.J.M. Franse, A.A. Menovsky, E. Bucher and J. Hufnagel : *Phys. Rev. Lett.* **58**, 820 (1987)
- [16] - P.H. Frings, J.J.M. Franse, F.R. De-Boer, A.A. Menovsky : *J. Magn. Magn. Mater.* **31,34** , 240, (1983)
- [17]- A. de Visser, A.A. Menovsky, J.J.M. Franse : *J. Magn. Magn. Mat.* **63-64**, 365 (1987).
- [18] - A. de Visser, L. Puech, W. Joss, A.A. Menovsky, J.J.M. Franse : **LT18**, proceedings (1987)
- [19] - L. Puech, J.M. Mignot , J. Voiron, P. Lejay, P. Haen and J. Flouquet : Submitted to *J. Low Temp. Phys.* and **LT18**, proceedings (1987)
- [20] - D. Vollhardt : *Rev. Mod. Phys.* **56**, 1 (1984).
- [21] - K.S. Bedell, C. Sanchez-Castro : *Phys. Rev. Lett* **57**, 854 (1986)
- [22] - G. Bonfait : These d'Etat, Université. de Grenoble (1987)



III - Conclusions

J'ai montré dans cet article, que nos résultats sur la vitesse du son n'excluent pas la possibilité d'une tendance métamagnétique dans $^3\text{He} \downarrow$.

Par ailleurs, cette approche a l'avantage de montrer, que, suivant le type d'expériences, et même dans le cas d'une tendance métamagnétique très marquée, les résultats peuvent être tout à fait monotones en fonction de l'aimantation.

Ce serait en particulier le cas de la magnétostriction du système polarisé, qui dans le cas où la loi d'échelle [2] est vérifiée, est proportionnelle à la variation de la vitesse du son.

Cette analyse fait ressortir le fait que d'autres mesures, comme la pression de fusion font intervenir des quantités nettement plus singulières, dans le cas pseudo-métamagnétique, *i.e.* : $\int \text{MdB}$.

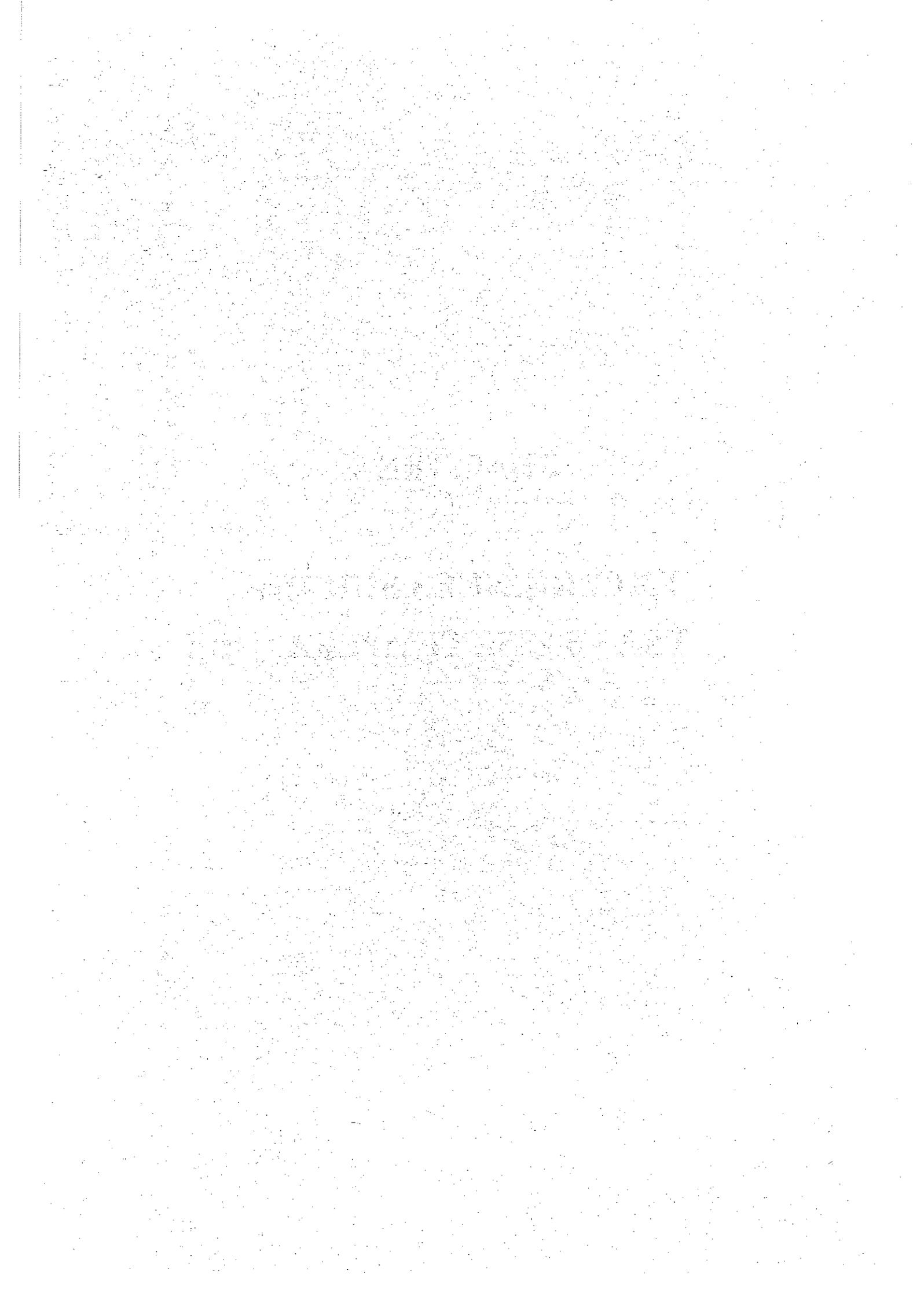
Enfin, il reste vrai que les mesures de pression de fusion et de vitesse du son ont été faites dans des gammes de température très différentes : 0,11 K et 0,21 K respectivement. Le danger que la température élevée ($\frac{S}{k_B} \sim \log 2$), masque beaucoup des effets importants, reste majeur.

Cette observation nous a conduit à imaginer une expérience se déroulant dans des régions où $^3\text{He} \downarrow$ est fortement dégénéré : $T \sim 0,03 \text{ K}$, qui fait l'objet des prochains chapitres.



CHAPITRE V

EXPERIENCES SUR $^3\text{He}\downarrow$ A TRES BASSE TEMPERATURE



I - Introduction

Dans ce chapitre, je vais donner un rapide aperçu des techniques utilisées pour obtenir du ^3He polarisé froid ($T \lesssim 50$ mK), et définir la voie que nous avons suivie, ainsi que les raisons qui nous y ont guidé.

Je décrirai ensuite l'expérience que nous avons entreprise. A cette date, nous avons montré que, en utilisant de la poudre d'argent de $0,1 \mu$ comme échangeur de chaleur, il est possible de refroidir du ^3He polarisé aux environs de 30 à 50 mK en un temps très court ($\lesssim 5$ s) par rapport au temps de relaxation de l'aimantation de l' ^3He , ($T_1 = 120$ s en présence d' ^4He). Ce résultat constitue un point essentiel pour de futurs développements de l'étude de l' ^3He polarisé.

II - Les choix possibles

Comme nous l'avons déjà conclu au chapitre IV, il est apparu que l'étude des propriétés magnétiques de ^3He passait par la réalisation d'expériences à très basses températures.

Dans cette voie, d'autres groupes de recherche ont exploré trois directions :

- fusion d'une faible quantité de solide polarisé à très basse température [27,28,29,42,43]. Ils ont utilisé cette méthode tant pour la mesure de l'abaissement de la courbe de fusion, que pour la mesure de variation de viscosité en présence de polarisation,

- expériences de viscosimétrie en champ statique très élevé à basse température, [67],

- refroidissement rapide du ^3He liquide polarisé obtenu par pompage optique en phase vapeur [40]. Bien que prometteuse, la technique utilisée à l'E.N.S. n'a pas, pour l'instant, donné des résultats dans des zones de température comparables à celles dont nous traitons ici.

Si la première méthode citée autorise transitoirement de fortes polarisations à basse température (~ 20 mK), elle fournit du point de vue de l'investigation des

propriétés du ^3He polarisé, des résultats contradictoires [42,43]. L'origine de ces contradictions réside dans la nature essentiellement inhomogène du système obtenu (polarisation, température) [27,28]. Par ailleurs, un très long temps de relaxation de la polarisation dans ces régions de température (1500 s) permet d'atteindre l'équilibre thermique, mais avec une polarisation également homogène et donc faible. Cette technique devrait permettre à G. Frossati et al. de tester la prédiction de Bedell [66], selon laquelle, en présence de polarisation modérée ($m \approx 0,15$), la transition superfluide A_1 devrait atteindre 15 mK.

Les mesures en champ statique permettent une investigation fiable des propriétés de transport de l' ^3He , mais à des polarisations au maximum de 10 % (30 Tesla, 30 bars au S.N.C.I., M.P.I.). Ce type d'expérience a déjà été fait à 11 Tesla [67]. Pour ce qui est des mesures de viscosité, G. Frossati et Wieggers ont montré que la diminution de viscosité observée à Stony Brook [43] pouvait être due à une inhomogénéité de température. Ils ont d'ailleurs obtenu une augmentation de viscosité comparable à celle obtenue en champ statique à Orsay [67].

III - Notre choix

Nous voulons refroidir rapidement du liquide ^3He polarisé, obtenu par la méthode de Castaing-Nozières [23]. Nous souhaitons cependant, que l'état final présente des conditions d'homogénéité irréprochables (température, polarisation). Nous avons donc examiné les possibilités de refroidissement de ^3He liquide, en milieu très divisé (poudre d'argent). Il n'était pas évident qu'une quantité de surface importante autorisât des temps de relaxation de l'aimantation supérieur au temps de refroidissement. Il nous est apparu, grâce aux résultats obtenus par H. Godfrin [68] et A. Schuhl [69], que des temps T_1 beaucoup plus longs que ceux d'équilibre thermique devraient être accessibles.

Dans ce chapitre, nous allons présenter notre analyse des ordres de grandeur des différents paramètres qui déterminent le succès de cette méthode.

A - Refroidissement

L'enthalpie de ^3He liquide, dans le régime dégénéré est par unité de volume $H = \frac{\gamma}{2v} T^2$ avec $\gamma \simeq 30 \text{ J K}^{-2} \text{ mole}^{-1}$ et $v \simeq 30 \text{ cm}^3/\text{mole}$ et donc $\frac{\gamma}{v} \simeq 1 \text{ J/K}^2 \text{ cm}^3$ (0.5 $\text{J/K}^2 \text{ cm}^3$ dans du fritté compacté à 50 %).

La puissance par unité de volume passant du ^3He liquide à la température T_3 à la poudre d'argent à la température T_g est, pour $T \gtrsim 10 \text{ mK}$, $\dot{Q} = \frac{S}{v} \frac{\Delta T^4}{4(R_K T^3)}$, où $\frac{S}{v}$ est la surface d'échange par volume, et R_K la résistance de Kapitza ; $R_K T^3$ est dans cette région à peu près indépendant de la température. Ces quantités conduisent à un temps de relaxation de la température : $\tau_{th} = \frac{(R_K T^3)}{(S/v) \cdot T^2} \cdot \left(\frac{\gamma}{v}\right)$.

Pour fixer les ordres de grandeurs, j'ai joint dans le tableau ci-dessous, des valeurs estimées, d'après les résultats de H. Franco et al. [70].

Tableau V-1
Vitesse de refroidissement du ^3He dans deux poudres d'argent

	Japonaise 700 Å (0,1 μm) 50 %	Française (1 μm) 50 %
$\frac{S}{V}$	$10^5 \text{ cm}^2/\text{cm}^3 (10 \mu\text{m}^{-1})$	$5 \times 10^3 \text{ cm}^2/\text{cm}^3 (0,5 \mu\text{m}^{-1})$
$R_K T^3$	$2400 \frac{\text{K}^4 \text{cm}^2}{\text{w}}$	$400 \text{ K}^4 \text{ cm}^2/\text{w}$
$\frac{S}{V R_K T^3}$	$40 \frac{\text{W}}{\text{K}^4 \text{cm}^3}$	$10 \frac{\text{W}}{\text{K}^4 \text{cm}^3}$
$\tau_{th} T^2$	12 ms K^2	50 ms K^2
τ_{th}		
0,1 K	1,2 s	5 s
0,05 K	5 s	20 s
0,03 K	12 s	50 s

Les valeurs de τ_{th} du tableau sont estimatives et sans doute surévaluées, puisque déduites des mesures sur du ^3He dilué ; elles donnent donc une borne supérieure du temps de relaxation de la température.

Par ailleurs, τ_{th} est la valeur du temps de relaxation à la fin du processus de thermalisation. Comme toujours, lorsque entre en jeu la résistance de Kapitza en T^{-3} , le refroidissement initial (de 0,3 K à 0,1 K par exemple) est beaucoup plus rapide, et non exponentiel.

A titre indicatif, si $T_3 \gg T_g$ on a

$$\frac{dT_3^2}{dt} = - \frac{(T_3^2)^2}{2(\tau_{th} T^2)} \text{ soit } t \approx 2 [\tau_{th} T^2] \left(\frac{1}{T_3^2(H)} - \frac{1}{T_3^2(0)} \right)$$

Ainsi, pour atteindre 0,1 K, il ne faut pas plus de 2,5 s. Comme nous le verrons plus loin, ces valeurs sont tout à fait comparables à celles que nous avons observées.

B - Homogénéité de température

Il y a deux sources d'hétérogénéité de température :

$10^{-5} \times 10^5 :$

 $10000 \times 5,032 \text{ K} \times 4 \text{ h}$

 $\approx 10^9 \text{ s} = 130 \text{ h} = 5 \text{ jours}$

- gradient de température dans le liquide à l'intérieur d'une cavité de la poudre ("pore"),
- gradient dans la poudre elle-même.

Ce premier point n'est pas du tout limitant dans le cas des poudres puisque les plus faibles diffusivités thermiques du ^3He sont : $D_t \gtrsim 3 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{s}$ à 100 mK, soit $3 \cdot 10^4 \mu\text{m}^2/\text{s}$ et elles atteignent 10^{-1} à $10^{-2} \text{ cm}^2/\text{s}$ à 10 mK. La conduction devient insuffisante quand $\frac{l^2}{D_t}$ est plus grand que $\tau_{\text{th}} : l \gtrsim 10^{-2} \text{ cm}/\text{T}^4$ qui est de l'ordre du mètre à 100 mK !

Le deuxième est lui nettement plus déterminant, car il fixe l'ordre de grandeur des dimensions géométriques du fritté. La diffusivité du système ^3He + poudre est :

$$D_{\text{tot}} = \frac{K_{\text{Ag}}}{C_{\text{He}}^3} = \frac{\left[\frac{K_{\text{Ag}}}{T} \right]}{\left(\frac{C_3}{T} \right)}$$

et est indépendant de la température :

$$D_{\text{tot}} \approx \frac{10^{-2} \frac{\text{W}}{\text{K}^2 \text{cm}}}{0.5 \frac{\text{J}}{\text{K}^2 \text{cm}^3}} = 2 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{s}$$

Le facteur limitant le refroidissement reste la résistance de Kapitza, tant que :

$$\frac{L^2}{D_{\text{tot}}} \lesssim \tau_{\text{th}} = \frac{25 \times 10^{-3}}{T^2} \text{ s.}$$

L étant la dimension typique du fritté, c'est-à-dire $L \lesssim \frac{0.2 \text{ mm}}{T}$ Des dimensions supérieures à quelques millimètres sont à exclure, car elles n'autoriseraient pas une homogénéité de température suffisante.

C - Homogénéité de la polarisation

Le coefficient de diffusion de spin, D_s , est de l'ordre de $D_s \approx 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{s}$, et donc le temps de diffusion de l'aimantation à l'intérieur d'un pore du fritté est très

inférieur à la seconde : 10^{-6} seconde à 0,1 K et 10^{-8} s à 10 mK pour $0,1 \mu$. Ceci assure l'homogénéité de la polarisation dans un pore, pour une échelle de temps de l'ordre de τ_{th} (> 1 s).

D - Temps de relaxation

Si nous arrivons à obtenir des temps de relaxation de l'aimantation, supérieurs au temps de relaxation thermique de l' ^3He dans la poudre, il sera possible de refroidir notablement du ^3He polarisé. Dans ce paragraphe, nous examinons cette possibilité.

L'étude de la relaxation de l'aimantation de ^3He en présence de surface fait, depuis longtemps, l'objet d'études expérimentales et théoriques. La richesse des phénomènes observés, reflète le grand nombre de processus parallèles de relaxation .

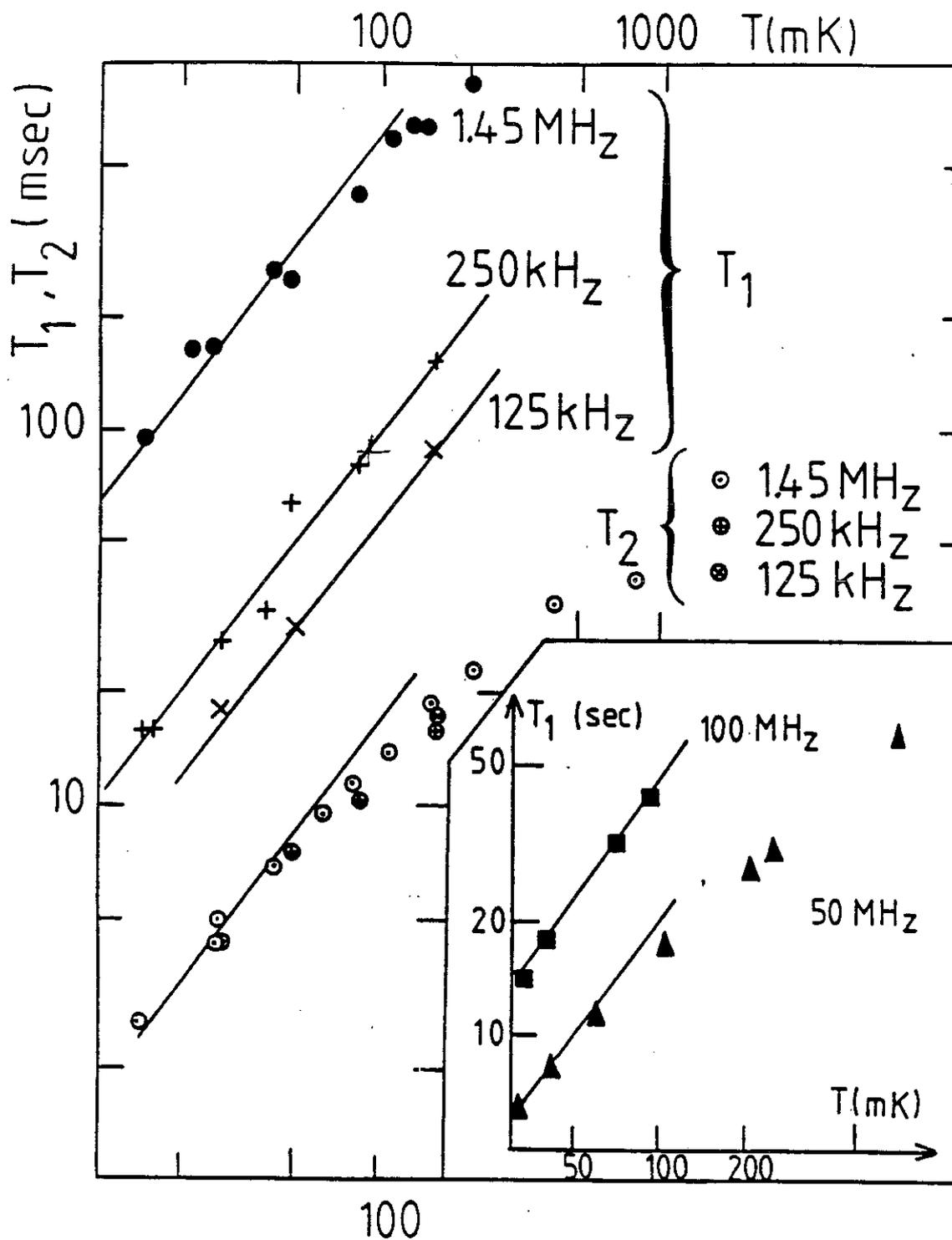
On distingue essentiellement trois sources de relaxation pour de l' ^3He confiné :

- 1) relaxations dues aux mouvements des atomes dans les gradients de champ inévitables en présence d'un "container" : champs liés à des impuretés localisées dans la paroi [voir thèse ENS, 72] ou champs créés par l'aimantation macroscopique du container,
- 2) la relaxation dans la, ou les couches solides absorbées sur le substrat, qui peuvent échanger de l'aimantation avec la phase liquide [68,71 à 75,76 et Refs. incluses],
- 3) la relaxation à l'interface entre la couche adsorbée et le liquide, cet effet est bien sûr, lié au 2) [69].

Nous reviendrons plus longuement sur la physique de ces processus. Dans les paragraphes suivants, je vais simplement montrer que, à partir des mesures existantes, on peut prédire la faisabilité d'expériences sur le polarisé, dans du fritté d'Argent.

E - Relaxation dans le DLX 6000

A. Schuhl, [69], présente dans son travail des résultats sur la relaxation de l'aimantation du ^3He confiné entre des billes de polytétrafluoroéthylène de diamètre 2000 \AA (DLX 6000). Ce travail prolonge des mesures sur ce même substrat, effectuées à Cornell, ainsi qu'à Orsay par Chapellier [73].



Temps de relaxation, T_1 et T_2 , du liquide en fonction de la température. Les lignes continues représentent des lois linéaires.

Fig V-1 : Mesures du T_1 et T_2 dans la poudre de fluorocarbonate par Schuhl A. et al. (69)

Le point important, pour nous dans cette étude est une investigation dans de larges domaines de température et de champ magnétique, du T_1 du ^3He liquide confiné. Dans ce travail, sont reportées les temps de relaxation de l'aimantation nucléaire du fluor ^{19}F du substrat, et ceux du ^3He , soit en monocouche, soit sous forme de liquide massif.

Il présente une étude détaillée du T_1 du ^3He liquide dans le DLX en fonction du champ et de la température voir fig.V-1, et il interprète l'ensemble de ses résultats dans le cadre du modèle de Hammel et Richardson [76] (H.R.), selon lequel l'aimantation du liquide relaxe dans la couche solide adsorbée.

$$\frac{dM_{\text{tot}}}{dt} = - \frac{N_s}{T_1^S} (m_s - m_{s0})$$

où N_s est le nombre d'atomes solides, m_s la polarisation des atomes solides, et T_1^S le temps de relaxation de la surface seule (indépendant de la température). Dans ce modèle, on suppose que le solide adsorbé et le liquide peuvent échanger de l'aimantation, ce qui conduit à l'égalité des champs effectifs dans ces deux phases : $\frac{m_s}{\chi_s} = \frac{m_l}{\chi_l}$

$$M_s = \frac{M_{\text{tot}}}{N_s \left(1 + \frac{N_l \chi_l}{N_s \chi_s}\right)}$$

ceci conduit à une relaxation exponentielle de M_{tot} avec un temps de relaxation :

$$T_1 = T_1^S \left(1 + \frac{N_l \chi_l}{N_s \chi_s}\right)$$

De plus, on a $\frac{N_l \chi_l}{N_s \chi_s} = \frac{N_l}{N_s} \cdot \left(\frac{T}{T_{F^{**}}}\right)$, et donc si $T \gtrsim \frac{N_s T_{F^{**}}}{N_l} \sim 5 \text{ mK}$

alors $T_1 \approx T_1^S \left(\frac{N_l}{N_s}\right) \left(\frac{T}{T_{F^{**}}}\right)$

En accord avec ce modèle et les mesures de Friedman [73], Schuhl obtient à 100 MHz : $\frac{T_1}{T} = 410 \text{ s/K}$. Par ailleurs, il a montré que T_1 est proportionnel à la

fréquence de 0,15 à 100 MHz : $\frac{T_1}{\nu T} = 4,1 \text{ s/K/MHz}$, qui correspond à $\frac{T_1 S}{\nu} = 32 \text{ ms/MHz}$, puisqu'il a opéré avec $\frac{N_L}{N_S} \approx 50$.

Il est notable que cette dépendance en fréquence soit observée sur 3 décades de champ. A. Schuhl en donne d'ailleurs une explication assez convaincante : du fait de l'hétérogénéité du substrat, la ou les couches solides sont à des surfaces molaires très variables, ν , et offrent des fréquences d'échange sur une très large bande : ($\omega_c \sim \nu^\alpha$, $\alpha \approx 20$). A ω_c fixé la densité spectrale de bruit à la fréquence de Larmor ω_0 peut être schématisée par : $J \approx 1/\omega_c$ si $\omega_0 \leq \omega_c$ et $J \approx 0$ si $\omega_0 \geq \omega_c$. Ceci conduit à une densité spectrale totale à ω_0 :

$$J(\omega_0) = \int_{\omega_c > \omega_0} A(\nu) d\nu / \omega_c \text{ ou } A(\nu) \text{ est la proportion de surface à } \nu \text{ que l'on}$$

suppose uniforme jusqu'à $\omega_c \gg \omega_0$. On trouve alors la densité spectrale à ω_0 : $J(\omega_0) \propto \omega_0^{-(1-1/\alpha)} \approx \omega_0^{-1}$.

L'observation de A. Schuhl selon laquelle $T_1 \propto \nu$ jusqu'à au-moins 100 MHz, implique l'existence de fréquences d'échange bien au-delà de cette limite : 100 MHz \equiv 5 mK. Ces valeurs sont élevées, même pour ^3He solide sur la courbe de fusion ou la température θ de Curie-Weiss ne dépasse pas : 2,7 mK, mais restent d'un ordre de grandeur raisonnable.

Dans notre optique, cette dépendance en champ magnétique du T_1 est cruciale, puisqu'elle permet, en principe d'obtenir des T_1 conséquents, malgré une très grande quantité de surface. Les chiffres que nous retenons pour notre étude sont :

- la quantité de surface présente est de 10 m²/g de substrat [73] soit 20 m²/cm³ de DLX, qui conduit, pour un compactage, de 70 % [69] à 47 m²/cm³ de liquide et à un rapport N_S/N_L du nombre d'atomes en première couche à celui d'atomes dans le liquide d'environ $N_S/N_L \approx 1/40^1$.

¹Ces valeurs font intervenir la surface occupée par un atome adsorbé $\approx 10 \text{ \AA}^2$, ou plus précisément un volume STP adsorbé par monocouche et par mètre carré de 0,395 cm³ STP/m² [78].

- le temps de relaxation est proportionnel à la température et à la fréquence, avec $\frac{T_1}{\nu T} \approx 4 \text{ s/K/MHz}$, correspondant, dans le modèle de H.R. à $\frac{T_1^S}{\nu} \approx 30 \text{ ms/MHz}$.

A. Schuhl présente également une étude de la relaxation des premières couches devrait permettre de prédire la relaxation du liquide massif, en contact avec ces premières couches.

La comparaison directe entre les résultats sur le liquide et ceux sur la première couche donne un accord assez relatif : $\frac{T_1^S}{\nu} \approx 70 \text{ ms/MHz}$ à 2,5 MHz.¹

F - Autres substrats

Il est souhaitable de comparer les valeurs de T_1 obtenues sur le DL à des résultats pour d'autres substrats afin d'évaluer au-moins le degré de généralité, des comportements observés, et des ordres de grandeur.

Les travaux de H. Godfrin, Frossati et al. [68], donnent plusieurs exemples de mesures de ce type, pour des substrats très différents (graphite, Al_2O_3 , platine).

Les temps de relaxation reportés sont mesurés à une unique fréquence, très basse : 0,25 MHz \approx 0,008 Teslas, c'est-à-dire des champs environ trois ordres de grandeurs inférieurs à ceux que nous comptons utiliser.

La comparaison entre les différents substrats est rendue délicate par la caractérisation insuffisante de leurs propriétés spécifiques pour certains d'entre eux : surface spécifique, compactage. J'ai porté dans le tableau V-2, les caractéristiques essentielles que l'on peut trouver ou estimer dans les refs 68, 69 et 73.

¹La dépendance linéaire de T_1^S avec la fréquence n'est pas établie pour la monocouche.

Tableau V-2

Matériaux	Densité du matériau massif (g/cm ³)	Surface spécifique		T ₁ 3He liquide à 0,25 MHz (sec)		T ₁ estimé à 6 Teslas et pour 20 m ² /cm ³ de liquide (sec)	
		m ² /g	m ² /cm ³ de liquide	0,1 K	0,01 K	0,1 K	0,01 K
Grafoil	2,25	20 ^{a)}	45	0,5	0,15 ^{a)}	1125	375
Alumine	3,5	103 ^{a)}	360	0,03	0,007 ^{a)}	540	125
Platine	21	-	0,8 ^{d)}	0,2	0,04 ^{a)}	8	1,6
DLX	2,1	10 ^{b)}	47 ^{c)}	0,08	0,01 ^{a)}	190	23
Argent	10	2 ^{a)}	20	-	-	-	-

- a) H. Godfrin, Thèse. Les surfaces par volume de liquide sont estimées pour un compactage a) de 50 %,
 b) H. Friedmann, [73], valeur déduite d'isothermes BET avec de l'azote,
 c) A. Schuhl, valeur déduite de b) et d'un compactage à 70 %. En accord avec ses mesures de susceptibilité.
 d) Déduite de la taille des particules : $\phi : 8 \mu$ qui conduit à une surface par volume de substrat de 6/d, et la même valeur par volume de liquide si $\mu = 50 \%$.

Dans la dernière colonne, nous avons porté les valeurs de T₁ que l'on attend pour un champ de 6 Teslas et une quantité de surface de 20 m²/cm³ de liquide, qui est la valeur typique pour des poudres d'Ag frittés de 700 Å à 50 % de compactage.

Pour établir ces colonnes, nous avons supposé que T₁ est proportionnel au champ pour tous les substrats, et inversement proportionnel à la quantité de surface. Sauf précision particulière, nous avons considéré que les échantillons des expériences citées avaient un comptage de 50 %.

Nous avons tiré quatre enseignements de ce tableau :

- 1°) Il est encourageant de noter qu'il est possible que nous obtenions des T₁ nettement supérieurs à une seconde dans de forts champs, pour T \approx 50 mK,
- 2°) Ramenées à des surfaces équivalentes, les différents substrats conduisent à des taux de relaxation très variés (plus de 2 ordres de grandeur !), même pour des champs égaux. Donc rien ne garantit que la poudre d'argent puisse satisfaire au requisit 1°),
- 3°) Nous avons tiré la conclusion 1°) en supposant que T₁ est proportionnel au champ pour tous les substrats, ce qui n'est pas prouvé,

- 4°) Si le caractère métallique du substrat est important, il faut noter que le cas du platine est un peu alarmant, puisqu'il conduit à des T_1 nettement inférieurs à ceux des substrats non métalliques.

Il nous a donc paru raisonnable de tenter de refroidir du ^3He liquide polarisé, mais il était absolument nécessaire de faire des expériences préliminaires testant la faisabilité de telles expériences.

Signalons de plus que toutes les expériences de relaxation d'aimantation en présence de surface ont été faites très près de l'équilibre, c'est-à-dire avec des polarisations très faibles. Dans le principe même, l'expérience que nous avons menée se déroule avec des polarisations très fortes ($\sim 30\%$), pour lesquelles des relaxations non exponentielles étaient envisageables.

G - Influence d'un film d' ^4He

Il est depuis longtemps reconnu que la présence d'un film d' ^4He sur les parois réduit la relaxation d'un facteur 10 à 100, même avec une monocouche d' ^4He [68]...

Les raisons pour cela sont :

- éloignement des noyaux d' ^3He des moments paramagnétiques du substrat (électroniques ou nucléaires) : [72]

- élimination de la couche d' ^3He solide, siège de la relaxation générée par l'échange direct ou indirect [69,73,76].

D'un point de vue pratique, ce fait est indiscutable, et fort précieux pour nous, comme nous le verrons plus loin. Pour ce qui est de sa compréhension, je pense qu'il y a encore des progrès à faire. En effet, sur ce point précis, il faut relever, dans les résultats de Schuhl en présence d' ^4He les points suivants :

- même pour une monocouche flottant sur le film d' ^4He , on a $T_1 \propto T$,
- pour le liquide, les T_1 obtenus ne sont pas plus longs (au contraire) que ceux d'une monocouche d' ^3He , et on a toujours $T_1 \propto T$ pour $T \leq 10$ mK.

Ces deux points sont en contradiction avec l'idée retenue, selon laquelle la présence d'un film d' ^4He devrait supprimer le mécanisme de relaxation proposé par Hammel et Richardson. En effet, une fois supprimée la couche ^3He solide, on ne devrait plus avoir $\chi_S \propto 1/T$ et donc $T_1 \propto T$. Si on continue à observer que $T_1 \propto T$, cela peut suggérer que le mécanisme proposé par H-R n'est pas le seul qui peut conduire à une telle dépendance de T_1 avec la température [74,75].

Notons encore que ce raccourcissement de T_1 à basse température, même en présence d' ^4He a été déjà été également observé par H. Godfrin sur l'ensemble des substrats étudiés, même si T_1 n'y est pas proportionnel à la température.

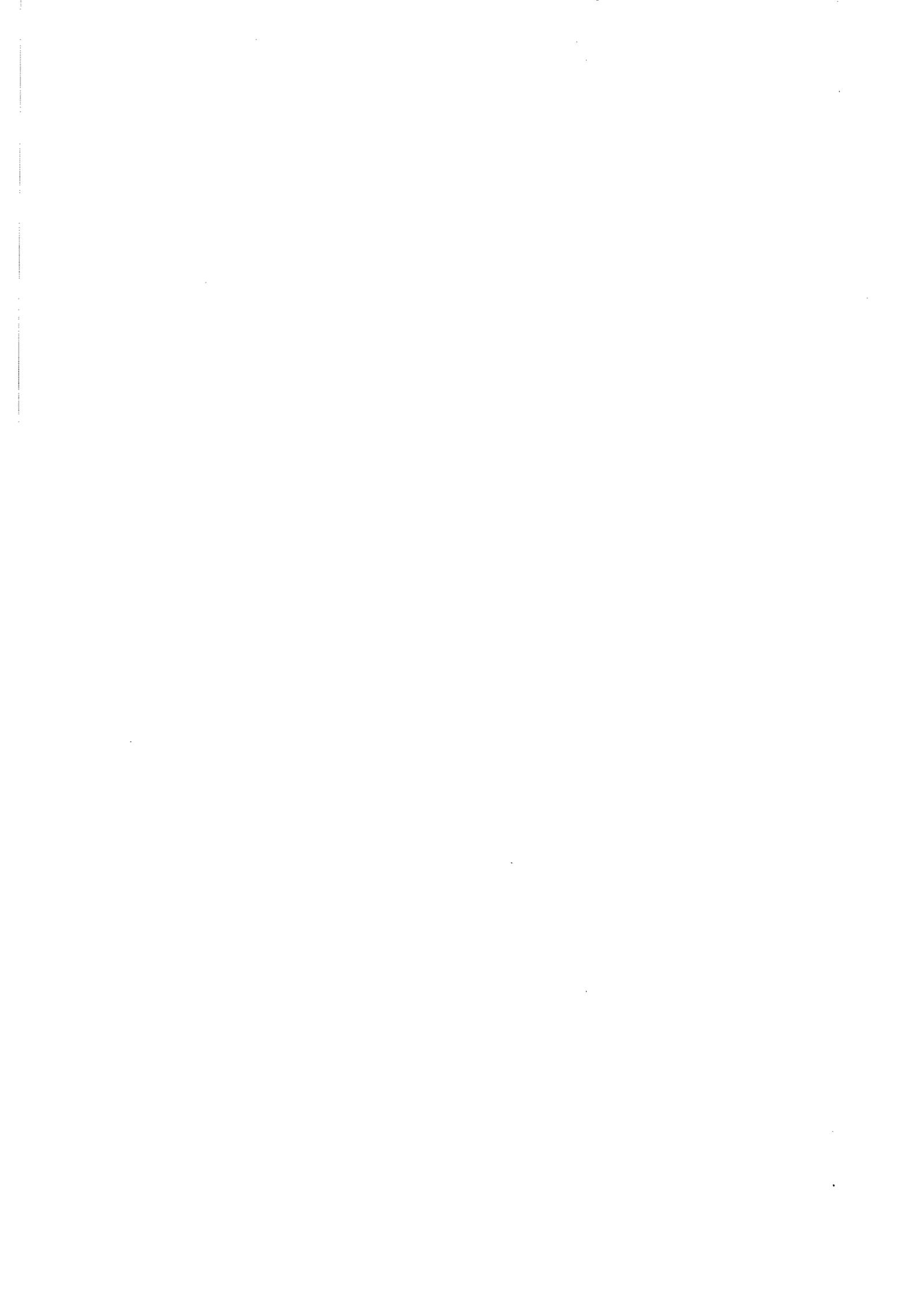
H - Conclusions

Pour notre étude, nous avons retenu les points suivants :

i) la relaxation de l'aimantation est importante à la surface de tous les substrats. Pour des dimensions de l'ordre de celles utilisées ($\leq 1 \mu$) la relaxation sera entièrement contrôlée par la surface, et donc sera d'autant plus rapide qu'il y a de surface,

ii) le temps de thermalisation de ^3He liquide dans des poudres d'Ag est très inférieur à 150 s à 50 mK pour des tailles $\leq 0,1 \mu\text{m}$. Ce temps peut être nettement inférieur au temps de relaxation de l'aimantation dans la poudre, principalement si on recouvre la poudre d' ^4He .

Il est alors raisonnable d'essayer de refroidir de l' ^3He polarisé, obtenu à 0,3 K par la méthode de Castaing et Nozières, jusqu'à 50 mK, avec des polarisations très élevées ($\geq 50 \%$). Nous avons donc décidé de vérifier ces points dans deux expériences, dont la description et les résultats font l'objet des chapitres VII et VIII -et-, pour l'appliquer à la mesure du champ effectif dans l' ^3He liquide polarisé par l'évaluation de la relaxation d'énergie.



CHAPITRE VI

RELAXATION D'ENERGIES

DANS $^3\text{He}\downarrow$

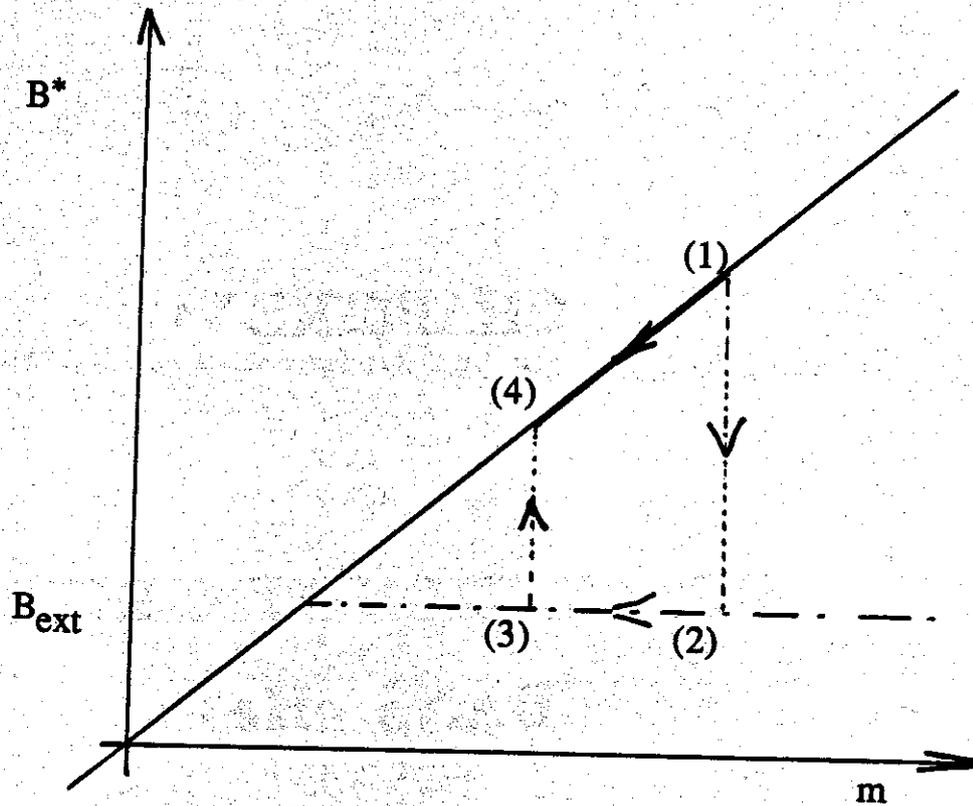


Fig VI-1 :Le chemin suivi lors de la relaxation de m est équivalent à l'abaissement réversible de $B^*(m)$ à B_{ext} accompagné de l'injection d'une quantité de chaleur $\dot{Q} = (B^* - B_{ext}) dm/dt$

I - Le principe

Nous avons décidé d'aborder, d'une manière la plus directe possible, la mesure du champ effectif dans l'³He polarisé transitoirement, afin de confirmer nos résultats sur la courbe de fusion.

L'idée est de mesurer le dégagement de chaleur lié à la relaxation de la polarisation du liquide.

Soit $B^*(m)$ le champ qu'il faudrait appliquer au liquide à la température T pour qu'il acquiert la polarisation m . B^* est appelé champ effectif [23]. Nous allons voir que la relaxation de m vers sa valeur d'équilibre m_{eq} sous le champ extérieur appliqué B_{ext} , est équivalente à la réduction réversible de B^* jusqu'à B_{ext} , accompagnée de l'injection extérieure de la quantité de chaleur $\delta Q = -(B^* - B_{ext})dM$. Ceci est vrai, que la relaxation soit adiabatique ou non. Si on exclut de l'énergie interne du liquide, le terme $-\vec{M} \cdot \vec{B}$ d'interaction avec le champ \vec{B} , lors d'une variation de \vec{M} , le travail reçu par le liquide vaut $\delta W = + \vec{B} \cdot d\vec{M}$. Si on fait passer soudainement le champ de $B^*(m)$ à B_{ext} , ((1) à (2) sur fig. IV-1)) ou (3) à (4) ce travail est donc nul.

Le long de (2) (3), ce travail vaut $B_{ext}dM$, alors qu'il est B^*dM de (1) à (4). Pour que l'état (4) soit le même, le long des parcours (1) (2) (3) (4) et (1-4), il faut que :

$$\delta Q_{rev} + B^* \delta M = B_{ext} \delta M + \delta Q_{irr} \quad (1)$$

au δQ_{irr} est une quantité de chaleur extérieure, apportée au liquide. On trouve bien ainsi que :

$$\delta Q_{rev} = \delta Q_{irr} - (B^* - B_{ext})dM > \delta Q_{irr}$$

ce qui signifie que la relaxation de l'aimantation est équivalente à l'application d'une puissance calorifique :

$$\dot{Q} = -(B^* - B_{ext}) \frac{dM}{dt}$$

qui est toujours positive, et nulle, près de l'équilibre.

Cette énergie est tout à fait importante en taille, puisqu'elle est exactement le surplus d'énergie emmagasinée dans le liquide surpolarisé : dans le régime linéaire et $\mu_n B^* = RT_F^* m$, avec $T_F^* \approx 0,3$ K. Si $T_1 = 10^2$ s, $\dot{Q} = 25$ mW $(\Delta m)^2$ par mole d' ^3He . Si la relaxation est adiabatique, ce dégagement de chaleur doit conduire à un échauffement du liquide. L'enthalpie de ^3He pour $T \lesssim 0,1$ K est en pratique :

$$H \approx \frac{RT^2}{2T_F^*}$$

Si le liquide est initialement à $T = 0$ avec une polarisation m_i , il atteindra la température :

$$T_f \approx T_F^* \sqrt{m_i^2 - m_f^2}$$

qui est très élevée pour des polarisations raisonnables : 0,15 K si $m_i = 0,5$.

Ce réchauffement est bien sûr moins important à des températures déjà élevées :

$$\frac{\Delta T}{T} \approx \frac{1}{2} \left(\frac{T_F^*}{T} \right)^2 \Delta m^2 \approx 10 \% \text{ à } 0,21 \text{ K pour } m_i = 30 \%$$

mais il aurait dû être déjà observé, par exemple lors de nos expériences sur la vitesse du son.

Il y a en fait une raison fondamentale pour laquelle cet effet est difficilement observable à des températures de l'ordre de T_F^* . Ce point a été mis en avant par Vermeulen, [79] et Frossati [66] : l'entropie du liquide dépend en fait de l'aimantation ; lors de la relaxation, il faut en fait écrire :

$$\dot{Q} = \frac{T dS}{dt} = C_m \frac{dT}{dt} + T \frac{\partial S}{\partial m} \frac{dm}{dt}$$

ou $C_m = \gamma_m T$ est la chaleur spécifique à m constant.

On peut évaluer $\frac{\partial S}{\partial m}$ par la relation de Maxwell :

$$\frac{\partial S}{\partial m} = - \frac{\partial B^*}{\partial T} m$$

Combinée avec (1), cette relation conduit à la vitesse de réchauffement, en conditions adiabatiques :

$$C_m \frac{dT}{dt} = - [H^* - T \left(\frac{\partial H^*}{\partial T} \right)_m - H_{\text{ext}}] \frac{dm}{dt} \quad (2)$$

En champ extérieur nul, on constate que le sens de variation de la température dépend du signe de $\frac{\partial}{\partial T} (H^*/T)$.

Pour les faibles aimantations $H^* = m/\chi$ et (2) s'écrit alors:

$$C_m \frac{dT}{dt} = -T^2 \cdot \frac{\partial (1/\chi T)}{\partial T} \cdot \frac{dm}{dt}$$

Dans ^3He , la quantité χT est une fonction monotone croissante de T qui interpole entre T/T_F^* et 1. C'est-à-dire que la fin de la relaxation en champ nul doit toujours chauffer le liquide, contrairement aux résultats reporté par Vermeulen (voir fig. VI-1).

Par contre, en champ fini, l'équation (2) montre que si $\frac{\partial H^*}{\partial T} > 0$, qu'il existe une ligne dans le plan m, T , à gauche de laquelle la relaxation va refroidir, au lieu de chauffer. Cet effet peut être compris comme étant dû au travail que les spins font sur les sources de champ (cf. désaimantation adiabatique).

Lors de nos expériences sur la vitesse du son, la présence d'un champ fini et une température élevée ($T \sim T_F^*$), ont vraisemblablement repoussé la ligne d'inversion vers d'assez fortes polarisations, ce qui explique qu'aucun réchauffement notable ne soit apparu.

Enfin, pour illustrer l'effet de H_{ext} sur la relaxation, j'ai porté sur la figure VI-2, deux types de trajectoires dans m, T ; pour un gaz parfait de fermions libres :

-Lignes supérieures $H_{\text{ext}} = 0$

-Lignes inférieures $H_{\text{ext}} \neq 0$ tel que $m_{\text{eq}}(T=0) = 6 \%$

Les lignes verticales sont $m_{\text{eq}}(T)$ et la ligne d'inversion.

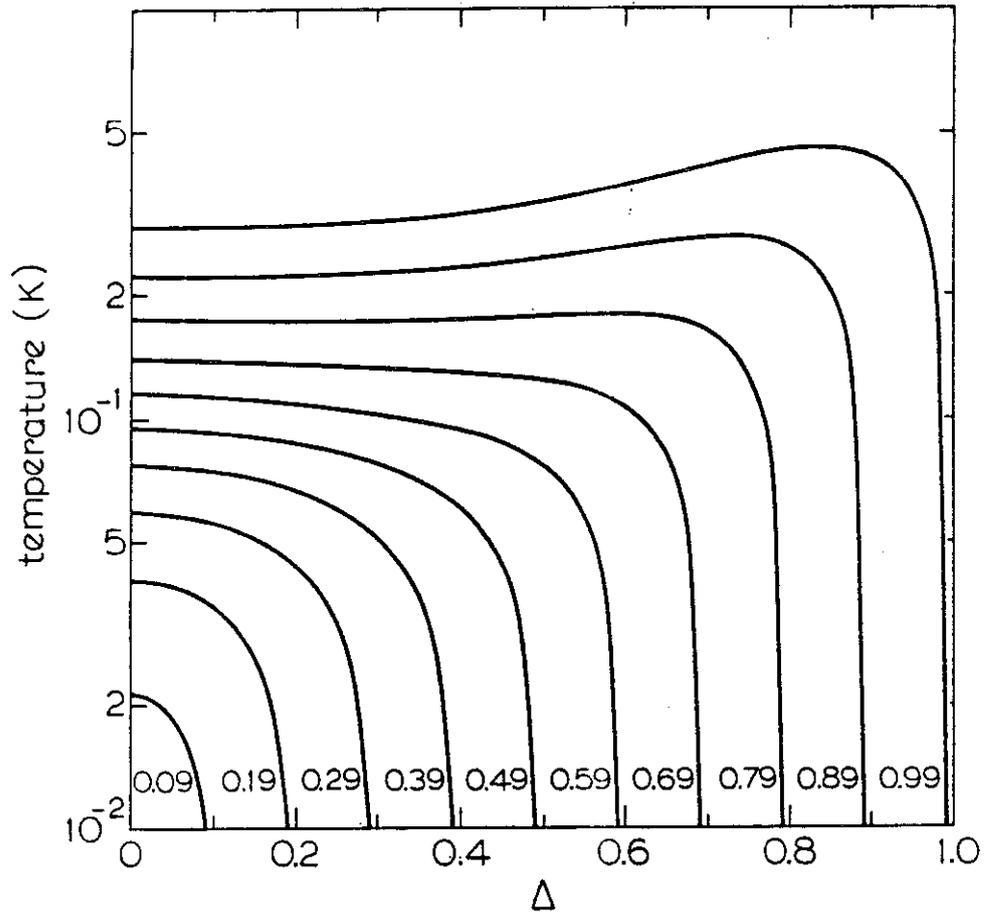


Fig VI-1: Trajectoires dans le plan m, T , lors de la relaxation de m , calculées dans le cadre du modèle de Bedell et Castro. (Thèse Vermeulen G.A. Ref 79).
On note le refroidissement pour m petit et $T > 0.15K$.

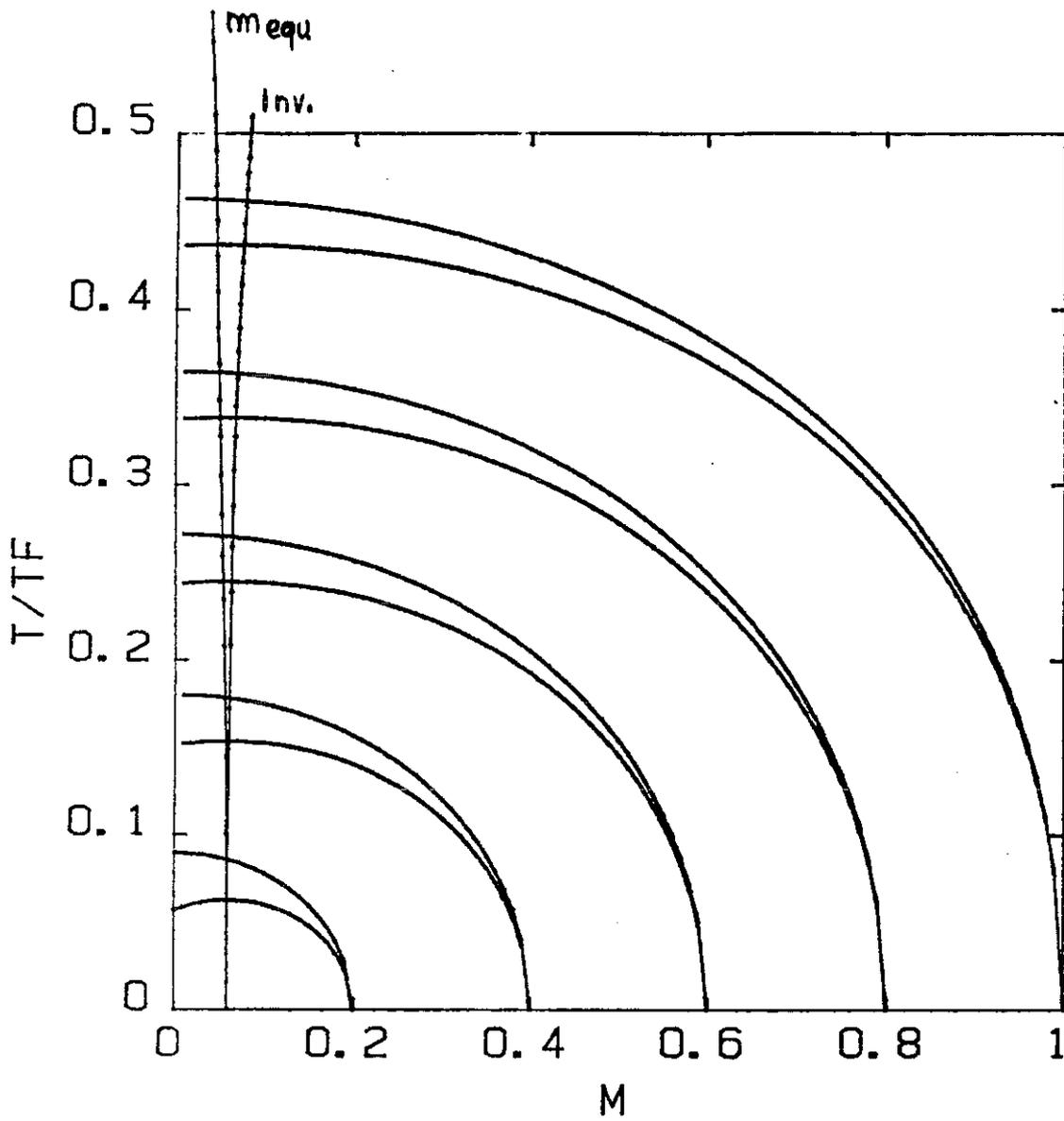


Fig VI-2: Trajectoires dans le plan m, T pour un gaz parfait avec et sans champ extérieur appliqué. Sont reportées également la courbe $m_{equ}(T)$ et la ligne d'inversion.

Dans la suite, pour fixer les ordres de grandeur des quantités à mesurer, nous prendrons explicitement :

$$H = \frac{R}{2T_F^*} T^2 ;$$

$$N \mu_n B^* = RT_F^* m$$

$$\text{et } \dot{Q} = -RT_F^* (m - m_{eq}) \frac{dm}{dt} ; \text{ avec } T_F^* = 0,3 \text{ K (10 bars).}$$

II - Refroidissement du liquide polarisé chaud

Après fusion du solide polarisé, on obtient du liquide chaud, à cause de l'effet Pomeranchuk inverse et d'autres raisons (irréversibilités dans le solide lors de la fusion). Nous avons considéré que si on partait de conditions semblables à celles des expériences sur la vitesse du son, nous arriverions à des températures comparables : 0,20 K. Ceci correspond à une enthalpie de 550 mJ/mole d' ^3He polarisé, c'est-à-dire une quantité très importante pour les basses températures. Bien que d'autres solutions soient envisageables, nous avons choisi d'évacuer cette énergie vers un réservoir de frigories constitué par de l' ^3He liquide non polarisé et froid, dans un autre fritté en très bon contact thermique avec celui du polarisé.

Ce réservoir a pris le nom de "Ballast". Il doit contenir typiquement 10 fois plus d' ^3He que le compartiment polarisé pour atteindre la région des 50 mK.

Il est clair que dans ces conditions, on va répartir la puissance relaxée par N_p moles de polarisé, dans $N_p + N_B$ moles de ^3He , et donc réduire l'échauffement à :

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{N_p}{N_p + N_B} \left[\frac{T}{T_F^*} \right]^2 \left(\frac{\Delta m^2}{2} \right)$$

En fait $(N_p + N_B) \frac{RT^2}{2T_F^*}$ est l'enthalpie $N_p H_p$ qu'avait le polarisé après fusion, et ne dépend pas de N_B :

$$\frac{\Delta T}{T} = \left[\frac{RT_F^*}{H_p} \right] \frac{\Delta m^2}{4} \simeq \Delta m^2$$

Bien que ce point paraisse paradoxal, il indique définitivement qu'en valeur relative, l'échauffement ne dépend pas de la température T ou est faite la relaxation, c'est-à-dire de la taille du Ballast.

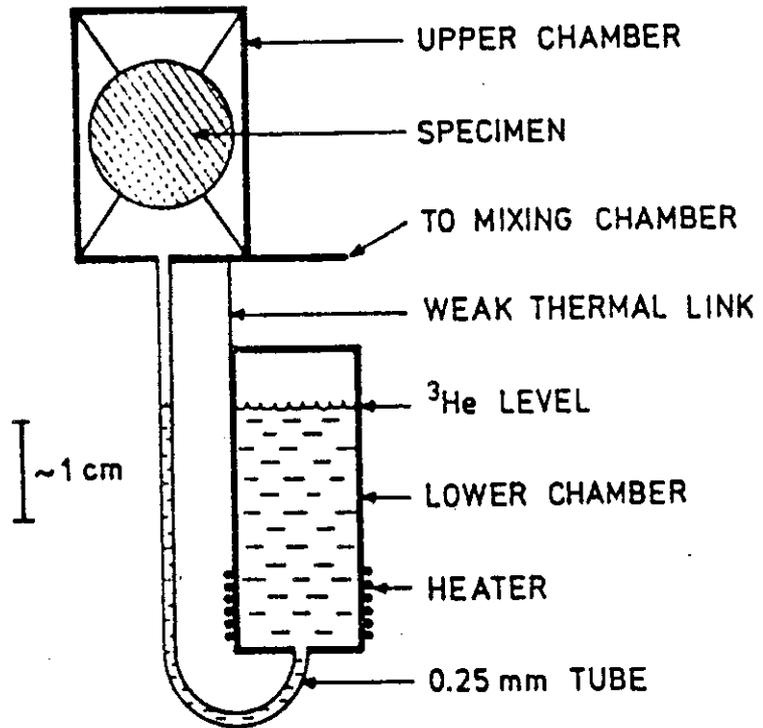


Fig VI-4: Interrupteur thermique proposé par Reinstein et Gerben. Ref.80

III - Adiabaticité

Pour $n_p \approx 10^{-2}$ moles, on a $\dot{Q} = 0,25 \text{ mW} (m - m_{eq})^2$ si $T_1 = 10^2 \text{ s}$. Pour $\Delta m = 5 \%$, ceci correspond à $0,6 \mu\text{W}$ et pour $\Delta m = 1 \%$, 25 nW .

Les valeurs typiques de pertes thermiques sont de l'ordre de 10 W et fixent donc la résolution de notre future expérience.

Pour pouvoir faire cette expérience, il faut disposer d'un interrupteur thermique susceptible de :

- a) permettre de refroidir $0,1$ mole d' ^3He liquide vers 5 mK en 12 heures,
- b) s'ouvrir et se fermer à volonté sous champ ($6,5 \text{ Tesla}$).

Il y a peu de solutions à ce type de problème, mais une d'entre-elles semble particulièrement adaptée à notre cas. C'est J. Chaussy qui nous l'a indiquée, et nous l'en remercions. Il s'agit d'un dispositif décrit par Reistein et Gerben [80]. On utilise la pression de vapeur de ^3He , dans un réservoir situé au bas de l'écran d'évaporateur pour faire monter à volonté du ^3He liquide dans le Ballast, jusqu'à ce qu'il remplisse un poral supérieur en contact avec la boîte à mélange. En diminuant alors la pression de vapeur, on peut faire redescendre le liquide et couper ainsi le contact thermique, voir fig. VI-4. La faible densité de ^3He liquide ($\sim 0,1$) fait que de très faibles pressions suffisent à le faire monter : 15 cm par Torr.

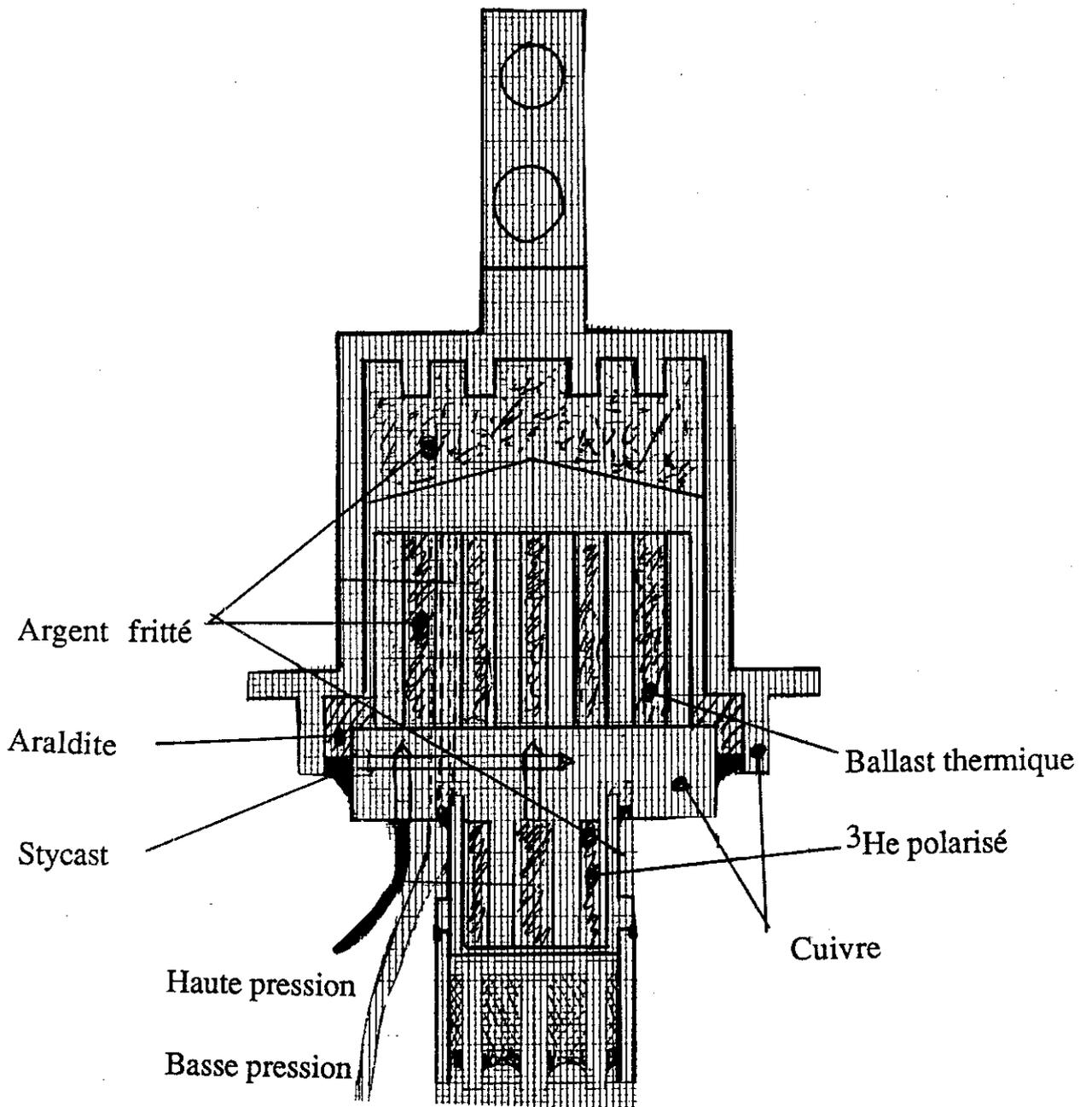


Fig VI-5: Cellule utilisée initialement pour tester le fonctionnement de l'interupteur thermique et la rapidité des échanges de chaleur entre le ^3He polarisé et le ballast thermique.

IV - Notre première cellule

Nous avons voulu dans une première phase, vérifier les points suivants :

- a) fonctionnement de l'interrupteur thermique,
- b) test des conditions d'adiabaticité en position ouverte,
- c) vitesse de thermalisation du liquide polarisé.

et éventuellement, mesures préliminaires sur la production de chaleur.

Mise à part la mesure de l'aimantation, cette expérience était, en principe, assez proche de la version définitive, actuellement en cours d'élaboration.

Lors de cette série d'expériences, nous avons pu confirmer le bon fonctionnement du système pour ce qui est des points b) et c). Le point a) n'a pas pu être testé avec succès, à cause de problèmes simples, qui sont en partie résolus aujourd'hui.

Cette cellule a eu plusieurs mérites puisqu'elle nous a amené à :

- 1°) définir précisément les conditions de fonctionnement de l'interrupteur,
- 2°) confirmer les valeurs attendues de vitesse de refroidissement.

Il est donc raisonnable, à ce stade, de s'attarder sur certains détails pratiques de réalisation d'une telle expérience.

A - La cellule. Détails

Elle est représentée sur la fig. Le compartiment inférieur est un fritté de poudre 700 Å contenant 10^{-2} moles d' ^3He à 10 bars ; fritté directement sur un bloc de cuivre, en même temps qu'un deuxième fritté de 6 cm^3 pour le Ballast (compartiment supérieur). Les particularités de ce bloc sont :

- existence de "doigts" de cuivre de $\varnothing 2\text{ mm}$ usinés dans le bloc lui-même, destinés à diminuer les épaisseurs libres de fritté (cf. paragraphe V-III-B),

- le tube de remplissage du Ballast se prolonge jusqu'à la face supérieure du fritté côté ballast. Ceci interdit au ballast de se vider en-dessous de ce point,

- le compartiment ^3He polarisé est équipé d'un capteur capacité de pression constitué par un diaphragme en Cu-Be, fort utile pour la calibration sous champ des thermomètres, et vérifier que l'on obtient des temps de fusion raisonnables, malgré la présence de la poudre d'argent,

- Il est muni de deux thermomètres constitués par des résistances speer 100Ω à $0,5 \text{ mm}$ d'épaisseur collées sur le bloc de cuivre avec du "stycast noir" : 2850 F.T. Les temps de réponse de ces thermomètres se sont avérés très courts $\leq 0,1 \text{ s}$ (voir fig. VI-6). La cellule était également munie d'un chauffage : jauge PtW 370Ω collée au stycast, dont la résistance dépend très peu de la température. Point important pour la calibration des chaleurs spécifiques.

Un défaut grave présent dans cette réalisation est le simple fait que ce bloc soit en cuivre. En effet, le moment nucléaire du cuivre implique que, sous champ magnétique, une forte énergie doit être fournie pour le réchauffer depuis T_i :

$$Q \approx 10 \text{ mJ/mole} \times \left(\frac{B}{6T}\right)^2 \cdot \left(\frac{10 \text{ mK}}{T_i}\right)$$

Cette énergie est déjà importante en soi, mais, de plus elle est relaxée doucement : $T_1 T \approx 1 \text{ s K}$ soit $T_1 \approx 20 \text{ s}$ à 50 mK . Ces valeurs nous ont, en pratique, conduit sous champ à des conditions d'expériences complètement non adiabatiques, avec une puissance fortement dépendante de la température initiale : $\Delta Q \propto 1/T_i$. C'est ce point, combiné avec le fait que nous ne connaissions pas du tout la vitesse de relaxation de la polarisation, qui nous a interdit toute estimation fiable de la puissance relaxée. Ce problème a bien sûr une solution très simple : utiliser de l'Ag massif pour le corps de la cellule. Le moment magnétique nucléaire à saturation de l'argent étant environ 10 fois plus petit, il conduit à une susceptibilité 10^2 fois plus faible.

Nous avons cependant utilisé du cuivre, pour des raisons aussi sentimentales que mauvaises !

B - Le contact avec la boîte à mélange

L' ^3He du ballast, permet, en position haute, le contact thermique avec la boîte à mélange. A cet effet, nous avons aménagé un volume conséquent dans le "chapeau" de la cellule pour y loger un fritté d'argent de $3,5 \text{ cm}^3$ correspondant à 25 m^2 soit un temps de

relaxation thermique pour l'ensemble de la cellule de 2500 s à 5 mK, si on néglige la chaleur spécifique du cuivre sous champ. En position ouverte, l' ^3He liquide doit quitter le poral supérieur. Afin d'éviter la formation de "lambeaux" d' ^3He liquide, toujours possibles vu la faible densité de ce liquide (longueur capillaire ~ 1 mm), ce poral est relativement distant du poral du bas, et a une forme conique destinée à favoriser l'écoulement de l' ^3He vers les parois.

Lorsque l'interrupteur est ouvert, le seul contact restant avec la B.M. est à travers le collage entre le chapeau et le corps de la cellule. Il est ici en stycast noir et araldite. La fuite thermique correspondant à cette partie est limitée, à la fois par la conduction thermique des isolants, et par la résistance de Kapitza Métal isolant. On peut estimer ces fuites à 20 nW et 10 nW ~~sont limitées~~ à $T = 50$ mK et $T_{\text{BM}} = 0$, d'après les valeurs connues [81].

C - Le siphon

Le principe en est très simple. Cependant, son bon fonctionnement impose des conditions assez sévères que nous n'avons hélas pas toutes réunies.

Un réservoir d' ^3He situé au bout de l'écran d'évaporateur doit accueillir le liquide nécessaire au remplissage de l'interrupteur thermique. Pour contrôler les variations de niveau dans la cellule, nous avons disposé d'une capacité cylindrique dans ce réservoir, qui devrait être suffisante pour contrôler le bon fonctionnement du siphon.

Pour que l' ^3He sorte effectivement de la cellule, la pression de vapeur doit descendre au-moins jusqu'à 0,5 Torr, c'est-à-dire 0,6 K. Avec les écrans dont nous disposons, elle ne pouvait descendre en-dessous de 1 K, ce qui fait que nous n'avons pas pu faire fonctionner ce dispositif.

A l'heure actuelle, nous avons refait tous nos écrans thermiques, en augmentant sensiblement leurs sections, et en éliminant les parties en laiton qui étaient présentes. Nous estimons que maintenant le siphon devrait fonctionner de façon satisfaisante.

Pour le bon fonctionnement de ce système, un certain ajustement de la taille des canaux dans la région des basses températures [Boîte à mélange, Plaque froide], est très important. Il s'agit de trouver un compromis satisfaisant entre :

- la conduction par ^3He liquide le long du capillaire,
- et les forces de viscosité, qui risquent d'empêcher ^3He de s'écouler en des temps raisonnables à basse température.

Ces faits imposent des restrictions contradictoires sur la taille du capillaire à utiliser. Ce problème a en fait bien sûr une solution, mais qui se situe plutôt vers des dimensions tout à fait respectables.

A basse pression, la conduction thermique de ^3He liquide est :

$$K \approx \frac{K_1}{T}$$

avec $K_1 = 3 \times 10^{-4} \text{ W/m}$ [Gregwall 84]. Un capillaire de section S et longueur L amène au point froid (T_F) depuis un point à T_c une puissance $\dot{Q} = \frac{SK_1}{L} Lg \left(\frac{T_F}{T_c} \right)$ pour $T_F/T_c = \frac{5 \text{ mK}}{50 \text{ mK}}$ on a $\dot{Q} \approx 700 \mu\text{W} \left(\frac{S}{L} \right)$. Cette puissance ne doit pas excéder une valeur maximale \dot{Q}_{max} de l'ordre de 10 nW pour éviter une surchauffe de la cellule par rapport à la boîte à mélange. Par ailleurs, le débit volumique en ^3He entre la cellule et le réservoir à $0,5 \text{ K}$, engendré uniquement par la pesanteur sur une hauteur h ne peut dépasser la valeur :

$$\dot{V} \approx \frac{hS^2}{L} \frac{g}{4\pi\nu T^2} \frac{Lg(T_c/T_F)}{\left(\frac{1}{T_F^2} - \frac{1}{T_c^2} \right)}$$

Pour trouver cette formule, j'ai pris l'hypothèse ou la viscosité cinématique ν est de la forme $\frac{\nu_1}{T^2}$ [avec $\nu_1 \approx 3 \times 10^{-9} \frac{\text{m}^2\text{K}^2}{\text{s}}$, Wheatley 75].

Les valeurs typiques sont : $h \approx 0,1 \text{ m}$; $g = 10 \text{ m}^2/\text{s}^2$; $T_F = 5 \text{ mK}$, $\dot{V} \approx 400 \cdot \frac{S^2}{L} \text{ m}^3/\text{s}$. Dans le tableau ci-dessous, je donne les valeurs nécessaires pour ν_S et L pour 4 hypothèses :

Tableau VI-1

\dot{V} / \dot{Q}_{\max}	1 nW : $S/L \leq 10^{-6}$ m	10 nW : $S/L \leq 10^{-5}$ m
$\frac{0.1 \text{ mole}}{1000 \text{ sec}} : \frac{S^2}{L} \geq 9 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3$	$\sqrt{S} = 3 \text{ mm}$ $L = 9 \text{ m}$	$\sqrt{S} = 1 \text{ mm}$ $L = 10 \text{ cm}$
$\frac{0.1 \text{ mole}}{100 \text{ sec}} : \frac{S^2}{L} \geq 9 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3$	$\sqrt{S} = 1 \text{ cm}$ $L = 90 \text{ m}$	$\sqrt{S} = 3 \text{ mm}$ $L = 1 \text{ m}$

En pratique, nous avons choisi : 1 m de capillaire 1,5 x 2, qui donnerait :

$$\dot{V} = 2 \cdot 10^{-9} \text{ m}^3/\text{s} \Rightarrow 0,1 \text{ mole en } 1500 \text{ s et } \dot{Q} = 1,4 \text{ nW.}$$

Par ailleurs, le frottement visqueux crée de la chaleur. Elle correspond, au pire, au travail mgh de la pesanteur, soit ici $0,3 \text{ mJ}$ et une puissance de $\frac{0,3 \text{ mJ}}{10^3 \text{ sec}} = 300 \text{ nW}$. Une partie de cette chaleur doit être utilisée pour réchauffer le liquide qui est en train de descendre. La chute irréversible de ^3He dans le champ de pesanteur sur 10 cm le réchaufferait uniquement à :

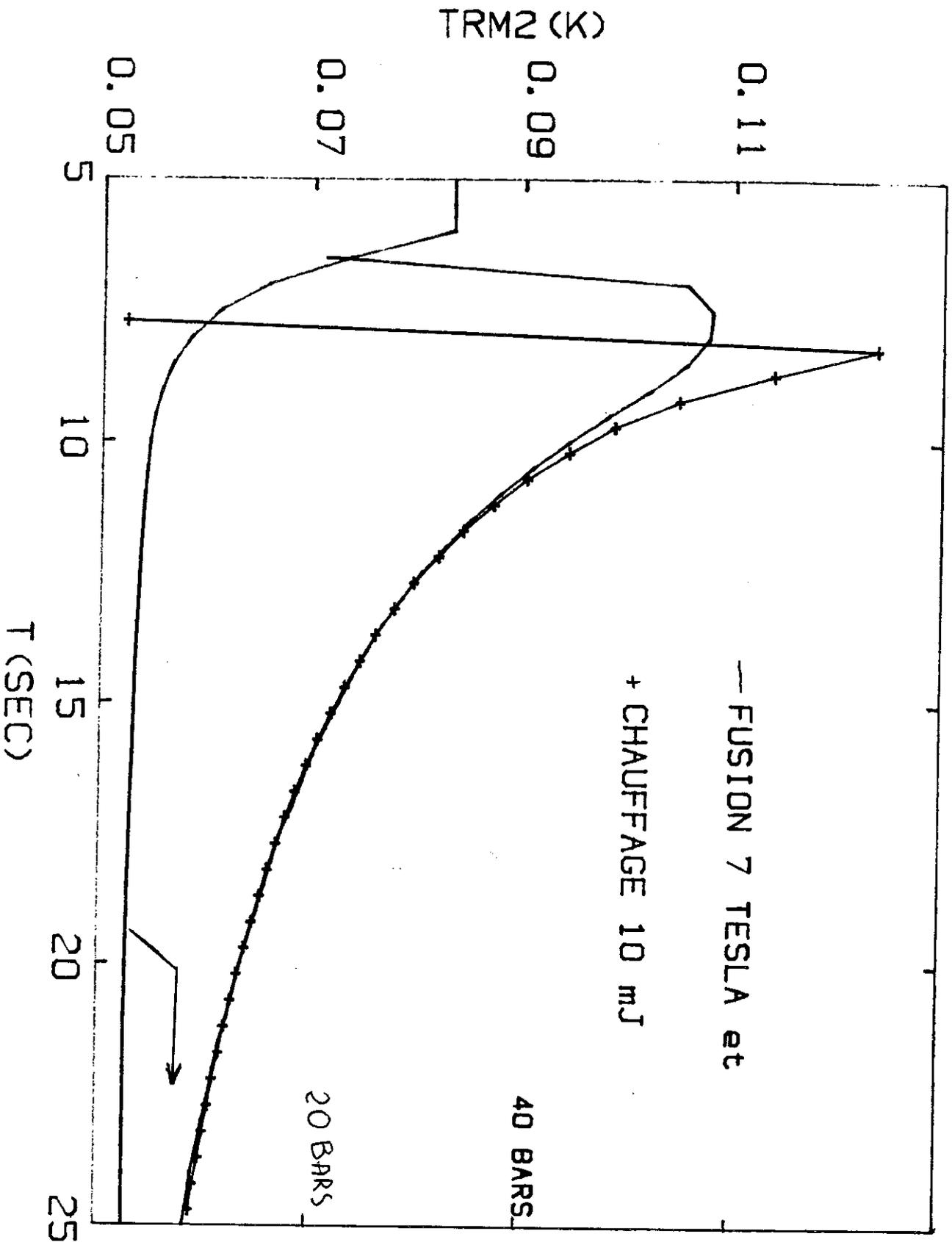
$$\frac{\gamma T^2}{2} = mgh \Rightarrow T \approx 15 \text{ mK}$$

qui est bien inférieure à la température attendue sur la plaque froide (~ 30 à 50 mK).

Un calcul complet tenant compte de la conduction, de la viscosité et de la pesanteur est certainement faisable, mais également complexe. Les points suivants paraissent cependant clairs :

- des conditions draconiennes sur les pertes et le temps de vidange impliquent des dimensions exagérées pour le tube ; des choix raisonnables (10 nW et 10^3 sec) doivent être donc faits,

- une grande partie de la chaleur développée par l'écoulement visqueux n'atteindra pas la cellule, si bien que l'on peut s'attendre à un fonctionnement raisonnable de l'ensemble.



RESULTATS EXPERIMENTAUX DU BLOC DE CUIVRE EN FONCTION DU TEMPS :
après une décompression du solide et après un chauffage de 10mJ en 1 Sec sur le bloc de
cuivre (+).

D - Fusion dans ce dispositif. Thermalisation

1) Vitesse de thermalisation

Dans la cellule décrite précédemment, nous avons effectué deux types d'expériences destinées à tester la rapidité de la thermalisation du liquide chaud, avec le ballast :

- * décompression du solide froid,
- * chauffage très rapide de la cellule.

La comparaison entre le comportement de la température du bloc de cuivre dans ces deux cas permet d'évaluer le temps nécessaire pour que la chaleur passe du liquide chaud, au cuivre et à l'³He du ballast.

Sur la fig VI-6 j'ai porté un exemple typique de tels essais, où la température du cuivre est portée en fonction du temps : en trait continu, pour une décompression, et les croix pour un chauffage de 10 mJ en 1 seconde.

Cette quantité de chaleur a été ajustée pour obtenir la même température finale.

On constate effectivement que pour des temps supérieurs à 1,5 secondes après l'application du pulse de chaleur, les deux évolutions sont strictement identiques. Ceci indique qu'à cette date, après la décompression, l'³He initialement chaud est effectivement thermalisé avec le cuivre.

De plus, à cette date, la température du cuivre est de $0,10 \text{ K} \pm 0,01$; or, l'enthalpie des 0,1 moles de ballast est de 10 m Joules à 0,1 K. Ceci signifie que la quantité de chaleur de 10 m Joules qui a été injectée est effectivement passée dans l'³He du ballast, c'est-à-dire que le processus de thermalisation est fini.

Notre conclusion est que l'échelle de temps caractéristique pour la thermalisation entre le liquide polarisé et le ballast est de 1,5 s, à cette température finale de 0,1 K. Une telle valeur est en très bon accord avec celle estimée plus haut, pour la résistance de Kapitza.

Cette vérification est importante pour la suite, puisqu'elle confirme également que la géométrie choisie, (dimensions de l'ordre de quelques millimètres pour le fritté, et armatures de métal massif) offre un chemin thermique suffisamment court.

2) Températures atteintes

Deux points doivent être éclaircis à propos de cette figure :

- la dérive de température aux temps longs,
- la valeur de la température obtenue juste après la fusion : 0,1 K.

La rapide dérive de température est due à la relaxation de l'aimantation des spins du cuivre, sous le champ appliqué de 7 Tesla. En effet, ces derniers, initialement à basse température sont polarisés dans le champ, et ont une énergie magnétique M.B. Pour une température initiale de 10 mK, et 1/3 de mole, qui est la quantité présente dans notre cellule, ceci correspond à environ 3 mJ. Des essais de fusion, similaires, mais à champ nul, ont montré que cette rapide dérive était absente.

Aussi bien à 6,5 Tesla qu'à champ nul, la température finale que nous avons obtenue ($0,10 \text{ K} \pm 0,01$) est un peu supérieure à celle que nous attendions.

Plus précisément, la chaleur dégagée par cette fusion : $10 \text{ mJ} \pm 0,5$ est supérieure d'environ 30 % à ce que l'on peut attendre d'une fusion réversible de 0,085 mole d' ^3He .

Le bilan exact de la chaleur équivalente à la fusion "réversible" doit être fait avec soin, car le terme "réversible" n'est pas réellement bien adapté pour deux raisons :

* dégagement de chaleur dû à la relaxation de la polarisation, ou, ce qui revient au même, dû à l'abaissement de la pression de fusion, en présence de polarisation,

* échange très irréversible de chaleur entre le liquide chaud et le ballast. Ce processus dissipe du travail par le fait que la pression à laquelle le solide est fondu si on va trop vite est inférieur à celle que l'on aurait si on laissait le temps au ballast de se thermaliser avec la cellule du polarisé.

Nous reviendrons plus loin sur le premier point. Quant au second, il faut bien préciser que la chaleur 10 mJ dégagée par la fusion, est supérieure à celle qui serait dégagée par un échange totalement irréversible de chaleur entre le ballast et l'³He chaud, à savoir :

- décompression adiabatique du solide,
- puis mise en contact thermique avec le ballast.

Dans ce cas, on obtient d'abord du liquide ayant une entropie de $R \log 2 = R \cdot 0,6931$ si on part d'un solide non ordonné ($m \ll 1$; $T \gtrsim 10$ mK). A 29 bar, ceci correspond à du liquide à 0,328 K et 0,396 K à 0 bar. Par rapport à 0 K, ceci correspond à une énergie interne de : 923 m Joules/mole.

Pour refroidir ce liquide jusqu'à 0,1 K, il faut donc lui enlever 823 m Joules/mole, c'est-à-dire 7,0 mJ pour nos 85 m moles. La valeur trouvée de 10 mJ est en fait supérieure de 30 % à celle attendue. Un tel écart correspond à un échauffement de 16 mK à 0,1 K pour 0,1 mole de ballast et hélium fondu.

Quant à la situation sous champ, elle est finalement assez similaire, malgré la compétition entre deux effets importants qui se compensent : l'entropie initiale du solide est plus faible : 80 % de $\log 2$ pour $m = 0,5$, et conduit à un liquide polarisé, en principe plus froid : 0,278 K à 0 bar, et une énergie interne de 557 mJ/mole.

La relaxation de la polarisation dégage encore une chaleur de $\frac{m_i^2}{2\chi} = 310$ mJ pour $m = 0,5$ et au total l'énergie à enlever au liquide pour l'amener à 0,1 K est de 770 m Joules/mole. On constate bien que dans notre cas, ou 85 m moles sont fondues, la chaleur équivalente à la fusion ne devrait pas dépasser 7 m Joules.

Cet excès d'environ 30 % est largement au-delà de nos barres d'erreurs expérimentales de 5 % pour la mesure de la chaleur à injecter, et implique qu'une autre source d'irréversibilité est présente.

De fait, une possibilité apparaît au premier abord, qui est l'échauffement par écoulement visqueux dans le fritté. Cet effet peut être évalué, et conduit à une dissipation élevée pour des vitesses de fusion raisonnables.

Pour l'hélium plongé dans l'éponge d'argent, on peut définir une résistance à l'écoulement α :

$$\vec{\nabla}P = - \alpha \vec{v}$$

ou P est la pression et \vec{v} la vitesse moyenne de l'écoulement. Si on schématise le milieu pour un grand nombre de tubes de diamètre d en parallèle, alors $\alpha = \frac{128}{\pi d^2} \eta$ pour un écoulement laminaire.

Pour l'hélium à 0,2 K, $\eta \approx 100 \mu \text{ Poise} = 10 \cdot 10^{-6} \text{ MKS}$ et $d \approx 0,1 \mu\text{m}$,
 $\alpha \approx 4 \cdot 10^5 \text{ Bar/m}$ et par m/s

Une fusion de 1 cm^3 d'hélium par une section de 1 cm^2 en 1 s conduit à une vitesse d'écoulement de $5 \cdot 10^{-2} \text{ cm/s}$, et donc $\vec{\nabla}P \approx 400 \text{ Bar/m}$ et la perte de charge $\Delta P \approx 2 \text{ Bar}$. A cette perte de charge est associée une dissipation de $S \cdot v \cdot \Delta P$ par seconde, soit 10 m Joule par seconde.

Cette estimation montre que nous n'avons certainement pas pris les précautions suffisantes pour fondre notre solide, et explique pourquoi nous avons obtenu des températures finales trop élevées.

E - Conclusions

Une fois prises, les précautions nécessaires offrant au choix des matériaux constituant le corps de la cellule (spins nucléaires du cuivre !), et des écrans ; le dispositif, tel qu'il a été conçu donnera satisfaction pour la mesure de relaxation d'énergie telle que nous l'avons envisagée ($T \sim 50 \text{ mK}$, $\frac{M_B}{M_P} \sim 10$). Au point le plus important, à savoir la vitesse de thermalisation de ^3He polarisé chaud, nous avons apporté une réponse positive puisque nous avons atteint l'équilibre thermique en moins de 2 s à 0,1 K.

L'étude plus approfondie de la fusion dans ce dispositif, nous a permis de mettre en évidence deux points importants pour l'obtention de températures de travail suffisamment basses.

Les pertes visqueuses dans le fritté risquent de dégager une chaleur non négligeable.

Par ailleurs, des temps de fusion supérieurs à celui de thermalisation avec le ballast devraient autoriser l'obtention de températures finales dans une assez large gamme :

$$\text{de } T_i \sqrt{\frac{N_P}{N_B}} \approx 0,1 \text{ K pour les fusions très rapides}$$

$$\text{à } T_i \frac{N_P}{N_B} \approx 0,03 \text{ K pour les fusions lentes (= thermalisées avec le Ballast)}$$

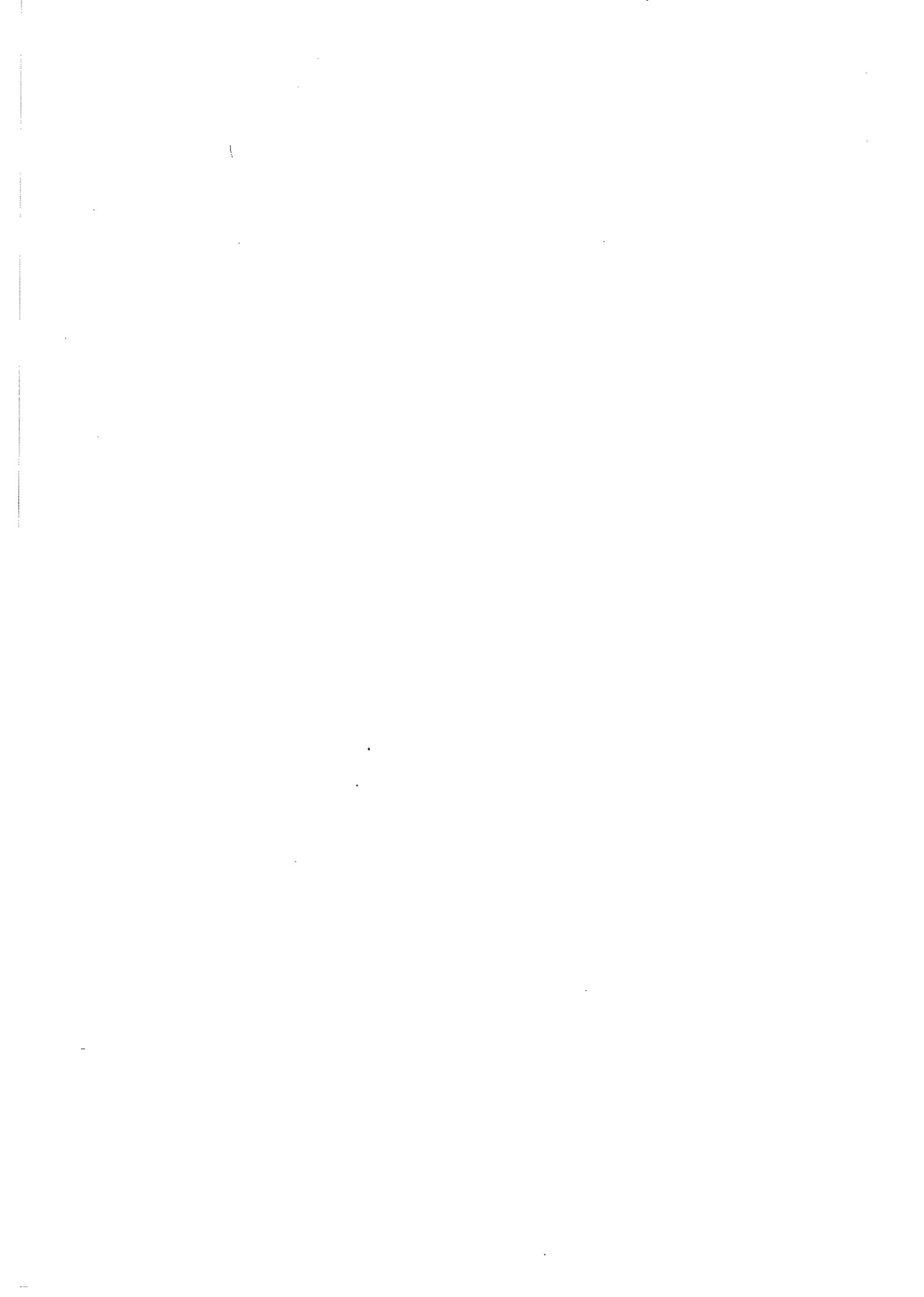
(ou $T_i = 0,3 \text{ K}$ est la température du liquide isolé après fusion).

Il est regrettable que nous n'ayons pas pensé à ce point lors des expériences, car nous aurions pu le vérifier explicitement, bien qu'il ne passe guère de doute. La seule inconnue reste, qui est de savoir si on peut obtenir des T_i suffisamment longs lors de la fusion pour permettre des fusions lentes, en équilibre thermique avec le ballast.

Avant de nous lancer dans le montage définitif de cette expérience, il nous a paru raisonnable de tester encore deux points très délicats :

- possibilité de mesurer l'aimantation nucléaire de ^3He avec un SQUID, à 6,5 Tesla,
- obtention de temps de relaxation raisonnable : 10 à 200 s.

C'est ce que nous avons fait sur le montage que je vais décrire dans le chapitre suivant, après un rapide descriptif de la mesure de flux grâce au SQUIDs.



II - Notre flux mètre pour ^3He polarisé

* Si le signal de l'aimantation nucléaire est petit pour les méthodes galvanométriques traditionnelles, il reste élevé pour un SQUID.

En effet, à saturation, l'aimantation nucléaire conduit à un champ $B_s = \mu_0 \frac{\mu N}{v}$

où :

$\mu = \frac{1}{2} h \gamma$ est le moment à saturation,

$\gamma = 2.03795 \times 10^8$ rd/s/T est le rapport gyromagnétique du noyau ^3He . (Soit $N\mu = 6.470 \cdot 10^{-3}$ J/mole/Tesla [A m²/mole]) et $\frac{\mu_0 N \mu}{v} = 2.7 \text{ G} \times \frac{30 \text{ cm}^3}{v}$ où v est le volume molaire.

Soit un cylindre de $0,2 \text{ cm}^2$, ^3He polarisé à saturation, le flux par spire est alors de $0,34 \text{ G cm}^2$ soit $\approx 10^4 \phi_0$ sur l'anneau du SQUID, qui correspond à 10 "pleines échelles" du SQUID sur la sensibilité la plus faible ($\times 1 \equiv \pm 500 \phi_0$).

Ceci montre combien un SQUID est un instrument sensible. Dans le pire des cas, nous verrons que le bruit large bande est de l'ordre de ϕ_0 ; ce qui implique un bruit de l'ordre de 0,01 % sur la polarisation de ^3He .

* Si dans l'absolu, notre signal est grand pour un SQUID, il est alors dans les faits très petits par rapport aux autres flux mis en jeu sous 6 Teslas. En effet, 3 Gauss à saturation correspond à $2 \cdot 10^{-5}$ du champ extérieur : une mesure à 0,01 % près est alors $2 \cdot 10^{-9}$ du flux dû au champ appliqué. Une excellente stabilisation basse fréquence du champ extérieur est nécessaire (dérive du champ, vibrations dans la gamme 1-10 Hz). Une excellente rigidité mécanique de l'ensemble bobine de champ, bobine de mesure, cellule expérimentale (gamme 100 Hz-10 KHz) doit être obtenue. De plus, j'ai insisté, dans le chapitre précédent, sur le fait que le SQUID ne marche que si il peut suivre tous les bruits de flux induits dans la bobine de détection.

La contrainte la plus sévère dû à cet effet est $\frac{d^2\phi}{dt^2} \leq 4 \cdot 10^8 \phi_0/s^2$. Ceci implique à la fréquence ν une stabilité relative du flux de $2 \cdot 10^{-10}/\sqrt{\text{Hz}}$ à 10 KHz.

Enfin, et c'est là le point qui a rendu inopérant le SQUID de Dutta [82], lors de la décompression du solide polarisé à 35 bar, cette variation de pression ne doit pas trop déformer la bobine de mesure. Le signal pleine échelle correspondant à 10^{-5} fois le champ appliqué, les dimensions de la bobine de mesure doivent être stables à mieux que 500 Å près !

A - Les précautions initiales

1) La bobine de détection

Elle est constituée d'enroulements compensés, dans le but de :

- diminuer l'influence de dérives du champ appliqué,
- de soustraire un éventuel signal dû à l'argent de la cellule lors de variations de température.

Une compensation des surfaces des différentes spires de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-2} est facilement réalisable, mais il est très difficile de descendre notablement au-dessous de cette valeur.

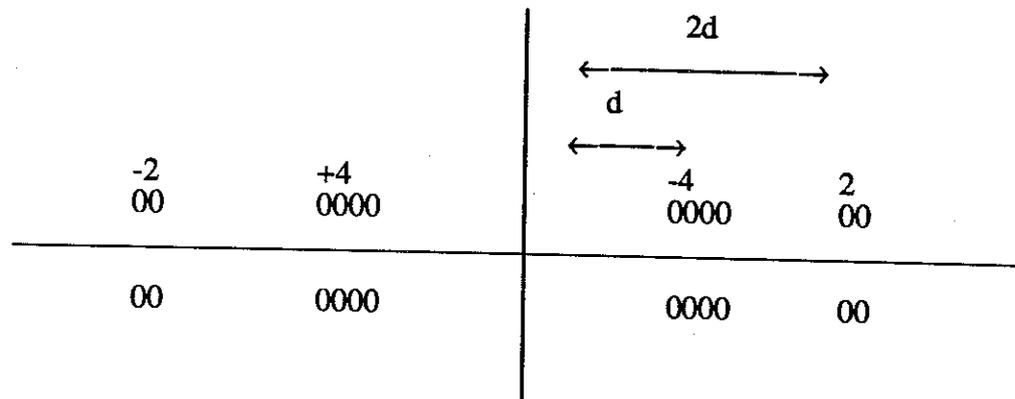
Par ailleurs, dans le but de rendre la bobine de mesure insensible à des moments situés à l'extérieur, nous avons adjoint deux enroulements supplémentaires de façon à annuler plusieurs multipôles d'ordre supérieur. Si on note S_{n_i} , la surface algébrique de l'enroulement i au point z_i sur l'axe de la bobine de champ ; n_i est un entier ≥ 0 , et que l'on développe le champ B_z dû à des effets parasites extérieurs, en puissance de z : $B_z = \sum b_n z^n$; le flux dans la bobine de mesure sera :

$$\phi = S \sum_n b_n \left(\sum_i z_i^n \cdot n_i \right)$$

Avec une bobine ayant un centre de symétrie en $z = 0$, on a $\sum_i z_i^n n_i = 0$ pour n pair.

Si de plus on met deux enroulements de chaque côté de $z = 0$ de façon à avoir $\sum_i z_i n_i = 0$, ϕ ne contiendra que des termes $n \geq 3$.

Enfin, pour un moment M à la distance R : $b_n \sim 1/R^{n+3}$ et donc ϕ décroît comme $1/R^6$ (au lieu de $1/R^4$ pour deux bobines compensées). Pratiquement, nous avons obtenu ce résultat avec un enroulement du type :



2) Le montage de cette bobine

Elle est enroulée sur un mandrin en araldite (fig. VII-6), d'un diamètre (\varnothing 9) supérieur à celui de la cellule \varnothing 7.

Elle est attachée à la cellule par 9 vis en nylon de \varnothing 2, effilées à leur extrémité, qui vont se glisser dans des gorges étroites tracées sur la cellule, dans des régions ne devant pas subir de déformation sur la pression (voir fig. VII-6). Les enroulements sont collés à l'araldite sur le mandrin, afin d'éviter les vibrations des fils dans le champ appliqué, qui seraient complètement catastrophiques pour le fonctionnement du SQUID.

3) Ecran supraconducteur

Pour écranter les signaux extérieurs à la cellule, et principalement les fluctuations du champ "statique", un écran en NbTi, cylindrique est disposé autour de la bobine de mesure.

Pour un tube de largeur h et diamètre d , parfaitement supraconducteur, on montre que les fluctuations de champ extérieur sont atténuées d'un facteur $\approx 10^{-5}h/3d$ [83], au centre du tube. Pour les dimensions que nous avons choisies : \varnothing 16 : $h = 50$, cela conduit à 6×10^{-6} .

Si l'on compte une compensation des bobines à 10^{-2} près, on obtient alors une atténuation des fluctuations de champ de l'ordre de 10^{-7} qui devrait être largement suffisante.

La présence d'un écran supraconducteur autour de la bobine de détection pose divers problèmes sur lesquels nous reviendrons ultérieurement. L'un d'entre eux, est qu'il écrante également le signal à mesurer, en "repliant" les lignes de champ à l'intérieur de la bobine de mesure. A la limite où la bobine de mesure toucherait l'écran supraconducteur, le signal mesuré serait nul ! Pour estimer la taille de cet effet, nous avons utilisé une géométrie très simplifiée :

- écran cylindrique de section S_S ,
- spire de mesure de section S_M ,
- échantillon : cylindre ∞ de section S_e .

Le flux $B_M S_e$ créé dans l'écran supraconducteur est écranté par les courants supra qui répartissent un flux opposé sur la section S_S . Le flux mesuré par la bobine est alors $S_e B_M \left\{ \frac{S_S - S_M}{S_S} \right\}$. Pour nous :

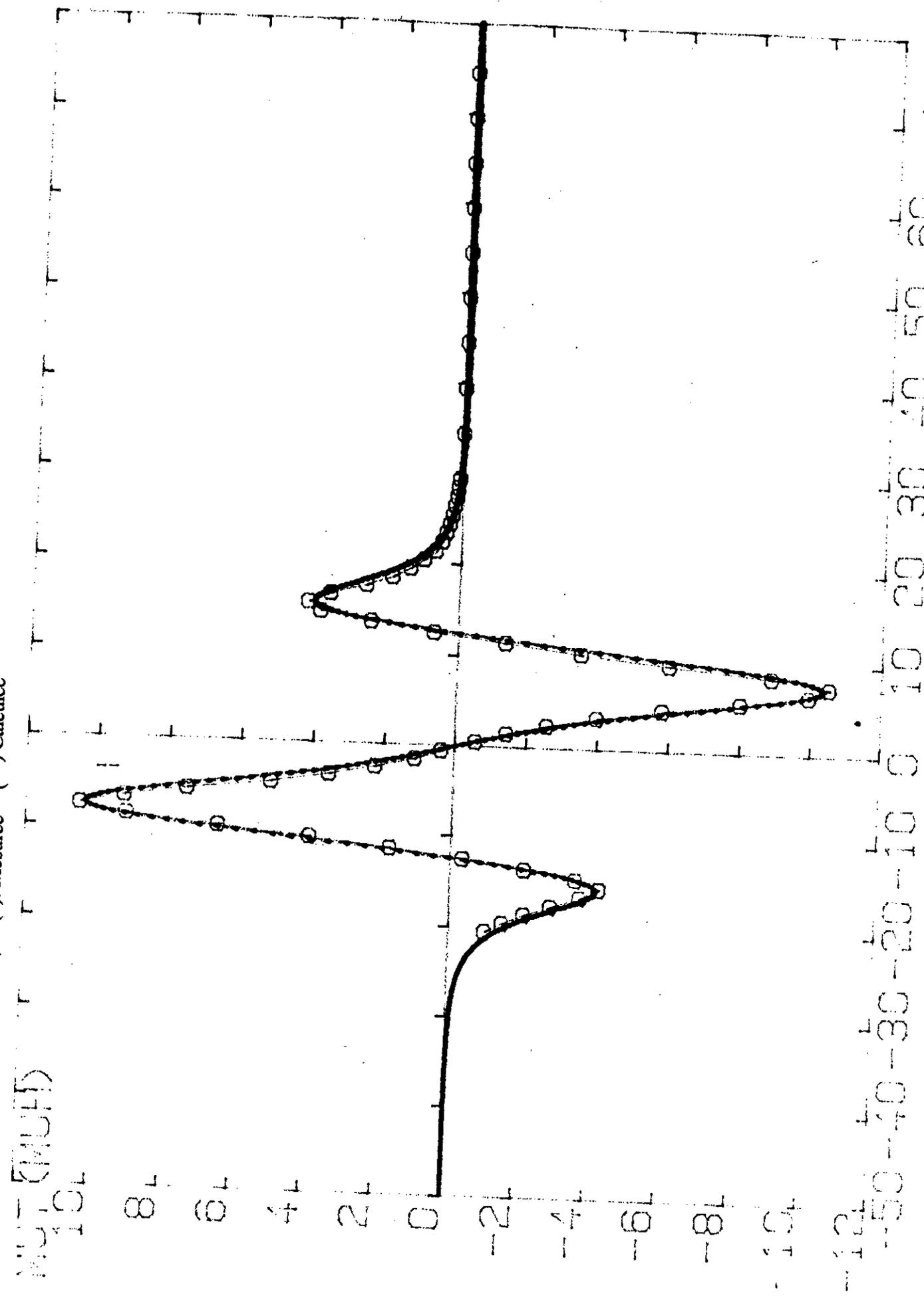
$$S_M = \emptyset 11 ; S_S = \emptyset 16 \text{ et } (1 - S_M/S_S) \approx 0,53$$

Ces dimensions étaient, à l'époque, imposées par les dimensions de la cellule (barreau d'Ag $\emptyset 7$) et de l'écran (barreau de NbTi $\emptyset 18$). La section de l'écran est en fait beaucoup trop petite ; nous verrons plus loin que ceci nous a induit des problèmes sérieux de variation de la sensibilité avec le champ magnétique.

Notons encore, que la présence de l'écran supraconducteur modifie également la self inductance de la bobine de mesure d'un facteur comparable, ce qui influence également la sensibilité du SQUID, mais en sens contraire.

Des calculs sophistiqués peuvent être développés pour étudier exactement les champs à l'intérieur d'écrans supraconducteur cylindriques infinis [voir par ex. = Asterman et Williamsen]. Nous n'avons pas approfondi ce point, car il n'est pas essentiel pour notre expérience et que de plus, aucune évaluation de la modification de la self inductance de la bobine de mesure n'est donnée dans cet article.

Fig VII-5: Carte de champ de la bobine de detection de notre circuit
 (o): Mesurée (—) Calculée



4) Calibration

Afin de calibrer la sensibilité de l'ensemble : bobine de mesure - SQUID, nous avons disposé sur le mandrin de la bobine de mesure 110 spires compensées de fil supraconducteur très fin (0,05 mm). Ces bobines, représentées sur la figure VII-6, nous permettent de fabriquer un flux, en principe connu, dans la bobine de mesure.

5) Réalisation

Nous avons donc réalisé la bobine représentée sur la fig. avec du fil en NbTi de 0,15 mm de diamètre fournit par SHE corp. Nous avons fait, à température ambiante, deux mesures destinées à vérifier la qualité de l'enroulement.

a) Nous avons mesuré sa mutuelle avec une petite bobine épaisse de 470 spires, donnant au total 230 cm² de section. Cette carte de champ est portée telle quelle sur la figure en même temps que la carte de champ théorique, dont le flux est évalué pour 230 cm². On constate que la carte obtenue se compare très favorablement avec celle calculée. Ce test n'est en fait pas très sévère, car il ne permet d'affirmer que la bobine est compensée à mieux que 5 % près, à cause des barres d'erreurs élevées sur la mesure de mutuelle et de la position.

b) Nous avons mesuré également la mutuelle entre cette bobine de mesure et un long solénoïde. A la précision de la mesure, la mutuelle était nulle ($< 0,1$ nH), ce qui implique une compensation meilleure que $5 \cdot 10^{-3}$, de l'ordre de grandeur de ce que nous attendions.

c) Nous avons déterminé en absence d'écran la mutuelle de la bobine de mesure avec celle de calibration. Ce qui nous a donné $2,44 \mu\text{H} \pm 0,01$, qui est la valeur que nous avons utilisée.

La connection de cette bobine, au SQUID proprement dit est assez sophistiquée, puisque l'ensemble du circuit de mesure doit être entièrement supraconducteur.

Le SQUID est placé au-dessus du chapeau du calorimètre, au fond du bain d'⁴He liquide. Un passage étanche amène les bornes du SQUID à l'intérieur du calorimètre,

sous la forme de deux barreaux de NbTi, munis de vis permettant de brancher la bobine de détection et ce, à l'intérieur d'un cylindre en NbTi de $\varnothing 18$ (fig.). Les fils issus de la bobine ont une longueur de 1,2 m et sont passés par un capillaire de NbTi de $\varnothing_{\text{ext}} = 3$ mm. Nous avons augmenté la section du trou du capillaire avec de l'acide fluorhydrique, puis nous avons passé les fils de mesure, torsadés, et enrobés d'un petit tube de téflon. Par un petit morceau de tube NbTi situé sur l'autre face de la bobine, passent les fils de la bobine de calibration. Les extrémités des tubes de NbTi sont munies d'un pas de vis $\varnothing 3$, et peuvent aussi être vissées sur le mandrin de la bobine de mesure

Le circuit de mesure est ainsi entièrement blindé par une enceinte supraconductrice. Les fils de mesure, torsadés, n'offrent que très peu de surface à d'éventuels champs magnétiques à l'intérieur du capillaire en NbTi, et de surcroît, ils y sont maintenus très fermement. Ce dernier point est crucial, puisque les fils de mesure traversent des gradients de champs très importants ($\sim 0,5$ Tesla/cm), ou d'éventuelles vibrations dans cette région engendrent les variations de flux gigantesques : ~ 5 G/cm² par cm de longueur, mm d'amplitude, 0,1 mm de largeur.

d) Thermalisation. L'écran NbTi de la bobine de mesure doit pouvoir être amené dans l'état normal, afin de changer le champ magnétique appliqué. Pour pouvoir faire cette opération sans arrêter la dilution, cet écran, ainsi que le capillaire en NbTi est thermalisé par une petite fuite thermique constituée de 1 m de fil de Cu de 0,2 mm, fixé sur la plaque froide. Il est également muni d'un chauffage et d'un thermomètre (Allen Bradley, 47 Ω).

Le capillaire NbTi va directement de 4,2 K à la bobine de mesure ($T = 0,05$ K), et il est thermalisé sur l'évaporateur. Les puissances parasites transportées par ce tube peuvent être estimées par les valeurs connues de conductivité de NbTi : $K \approx 75 T^{1.85} \mu\text{W/K cm}$, obtenues au-dessus de 4,2 K [88].

$$\frac{\dot{Q}}{S} = 26 (\Delta T)^{2.85} \mu\text{W/cm}$$

$$S \approx 3 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2$$

$$4.2\text{-evap} : 4,5 \mu\text{W} \quad (l = 10 \text{ cm})$$

$$\text{evap-cell} : 2 \text{ nW} \quad (l = 100 \text{ cm})$$

Ces puissances ne devraient pas être gênantes, à condition que la thermalisation à 0,6 K soit efficace.

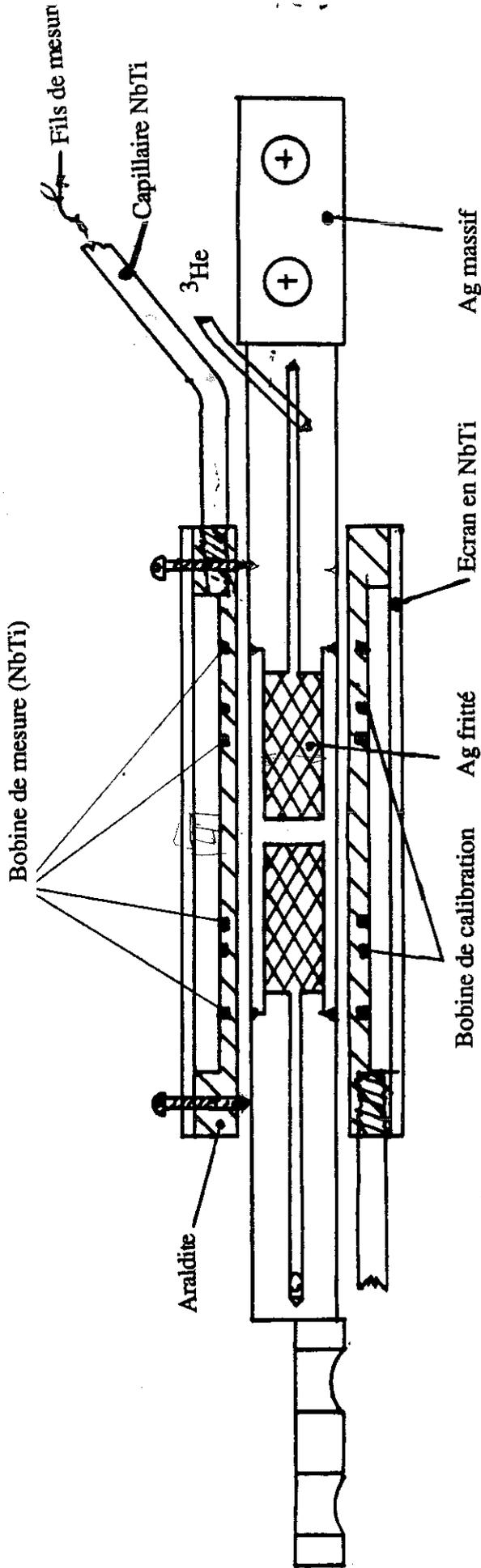


Fig VII-6: Cellule d'expérience utilisée pour mesurer l'aimantation avec le SQUID: Montage de l'ensemble

Ech 2x1

15/11/85

B - La cellule d'expérience

Le but de ce montage était de tester la faisabilité d'une mesure de l'aimantation nucléaire du ^3He à l'aide d'un SQUID, à 6,5 Tesla d'une part et d'évaluer le temps de relaxation de la polarisation nucléaire, dans de la poudre d'argent d'autre part. Le programme étant déjà relativement ambitieux, nous avons décidé de ne pas faire un montage adiabatique.

La cellule est alors très simple. Afin de supprimer d'éventuels signaux dus à des impuretés magnétiques dans la poudre d'argent ou l'argent lui-même, nous avons dessiné une cellule totalement symétrique, avec deux compartiments cylindriques de $\varnothing 5$, $L = 12$ mm, remplis de poudre d'argent 700 Å compactée à 40 % - 50 % et fritté à 200°C. Soit $\frac{0.236}{2} \text{ cm}^3 = 0,118 \text{ cm}^3$ d' ^3He (3,9 μmoles d' ^3He à 30 cm^3/mole). Ces compartiments sont aménagés dans un barreau d'argent 99,999 % de $\varnothing 7$.

Les frittés sont ainsi dans le même bloc d'argent, n'ont aucun point à plus de 2,5 mm d'une paroi en argent massif, et devraient ainsi rester sensiblement isothermes, même après la fusion d' ^3He dans un des compartiments (voir chapitre V).

Ce barreau est prolongé à ses deux extrémités de barreaux de même section, de 45 mm de longueur, percés à $\varnothing 1$ dans le sens de la longueur, pour amener l' ^3He dans les frittés.

Avec cette géométrie, aucun matériau autre que l'argent et l' ^3He n'est à une distance de la bobine de mesure inférieure à 40 mm, point au-delà duquel le champ de la bobine de détection est inférieur à 10^{-3} de sa valeur au centre. Par ailleurs, ce sont ces barreaux de 45 mm de long qui permettent la connection avec la boîte à mélange d'une part et 1 thermomètre (speer 100 Ω) et un chauffage (PtW-150 Ω) de chaque côté, d'autre part. Afin d'obtenir un contact thermique le meilleur possible entre les frittés et les barreaux, l'ensemble a été porté à 200°C lors du frittage, ce qui a permis à ces barreaux d'être pratiquement "collés" aux frittés. Enfin, pour assurer l'étanchéité de l'ensemble, deux filets de soudure à l'étain ont été déposés après le frittage aux jointures entre ces parties.

L'extrémité supérieure de cette cellule était montée avec deux boulons en laiton de $\varnothing 4$ sur le doigt froid de la B.M., qui serraient également les supports du thermomètre

et chauffage. Deux boulons identiques serraient les thermomètres et chauffage du bas de la cellule.

Le compartiment supérieur était celui du ^3He polarisé haute pression alors que celui du bas permettait l'introduction d'un petit ballast basse pression.

C - De la théorie à la pratique

Nous avons monté le dispositif décrit précédemment dans le réfrigérateur à dilution dont nous avons déjà parlé. La mise au point du SQUID sous 6,5 Tesla a été assez longue (1/6 au 10/8/1987).

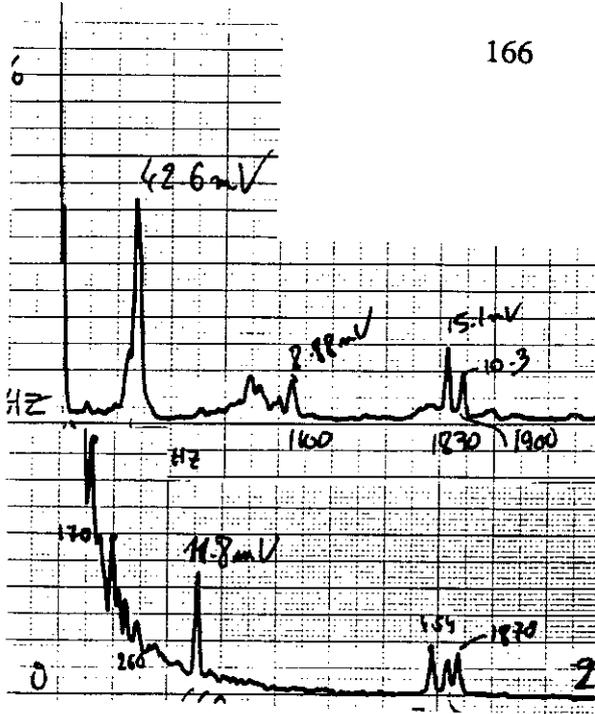
Comme nous le craignons, les problèmes de vibrations sous champ magnétique ont été très difficiles à résoudre, ainsi que la stabilisation du champ appliqué.

A l'ensemble que j'ai déjà décrit précédemment, nous avons apporté beaucoup de modifications successives jusqu'à ce que le SQUID donne satisfaction. Ceci a nécessité un nombre d'interventions assez élevé à l'intérieur du calorimètre, c'est-à-dire un grand nombre d'heures de travail manuel.

1) Les problèmes

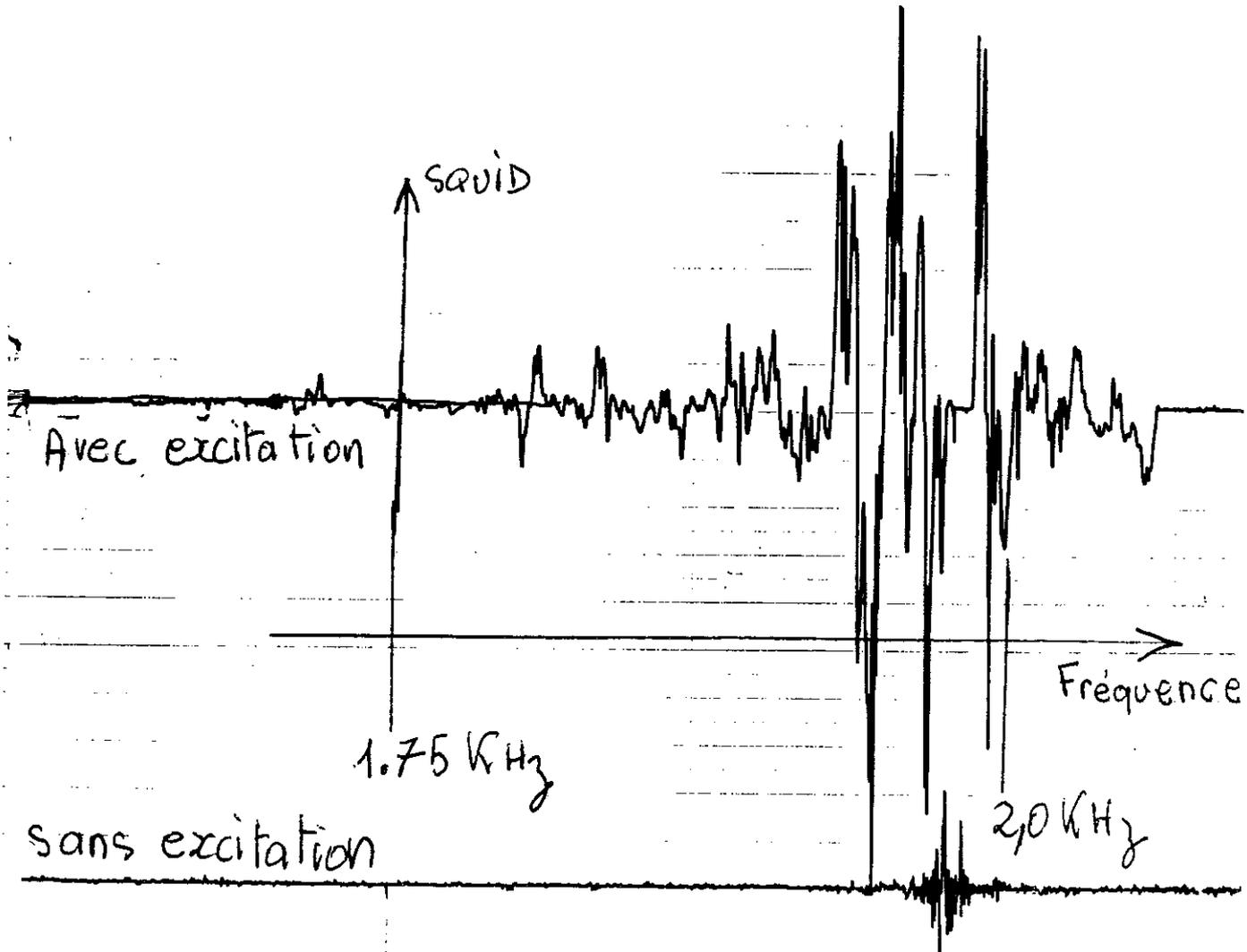
Il est apparu dès le premier refroidissement de l'ensemble, que le fonctionnement du SQUID était parfait en l'absence de champ magnétique, avec un niveau de bruit et de stabilité excellents ($\leq 0,07 \phi_0$ en 12 heures).

- l'analyse spectrale de la sortie du SQUID a fait apparaître avec beaucoup de netteté l'existence de quelques fréquences très largement résonnantes, excitées dans le réfrigérateur, par le bruit acoustique ambiant. S'il s'est avéré difficile de déterminer exactement quelles parties du montage résonnent à telle fréquence, il a été assez facile de mettre en évidence les sources d'excitation de ces vibrations.



Accéléromètre

SQUID



Avec excitation

1.75 kHz

sans excitation

Fréquence

2.0 kHz

- Problèmes d'oscillation de Taconis vers 30 Hz dans le bain d' ^4He
- Excitation type "bruit blanc" par le bain d'huile bouillante du "Booster" du réfrigérateur
- Vibrations issues des pompes mécaniques de la boîte à 1 K et du mélange $^3\text{He}/^4\text{He}$,
- Vibrations issues de la boîte à 1 K, elle-même, où l'on suppose qu'il apparaît des bulles, ou bien un écoulement fortement turbulent, ou.....
- Bruit autour du KHz lié à l'activité de nos chers collègues dans le Hall des "mesures fines".

Il est apparu en fait, qu'une bonne partie de ces vibrations à haute fréquence étaient transmises, par l'air, et non pas uniquement le long des structures du cryostat.

Il nous a également fallu reconnaître que seules les vibrations à haute fréquence (≥ 1 KHz) empêchaient le SQUID de fonctionner. Pour tirer l'ensemble de ces conclusions, nous avons utilisé deux outils très efficaces :

- un analyseur de transformées de Fourier,
- un accéléromètre.

Pour illustrer ce point, j'ai reporté sur la fig. VII-7-a), une des nombreuses transformées de Fourier que nous avons faites de la sortie du SQUID, et de l'accéléromètre placé au sommet du cryostat. La corrélation entre ces spectres apparaît dès le premier coup d'oeil : quelques pics très aigus apparaissent à la sortie du SQUID, qui existent tous sur l'accéléromètre.

Voilà qui prouve très clairement que les bruits sur le SQUID sont bien des vibrations dans le champ appliqué. Pour se convaincre plus définitivement de ce couplage entre les vibrations du cryostat et le SQUID, nous avons fait une autre "manip" reportée sur la fig. VII-7-b). En injectant du courant à fréquence variable dans un haut-parleur placé sur le cryostat, nous avons détecté la sortie du SQUID synchrone avec le haut-parleur, et porté le résultat en fonction de la fréquence. Les deux courbes ont la même échelle verticale, mais une est faite avec une excitation dans le haut-parleur, et l'autre pas. Il apparaît ainsi un nombre très grand de résonnances toutes dans la gamme 1800-2200 Hz.

L'autre problème, qui a été difficile à mettre en évidence a été celui de la stabilité du champ appliqué.

Nous avons pu, à posteriori, vérifier le mauvais fonctionnement du shunt supraconducteur de la bobine de champ, qui fait perdre environ 50 Gauss à 6 Tesla en 20 heures.

L'écran supraconducteur étant largement au-dessus de son H_{c1} , il a des facultés d'écrantage assez faibles, et en particulier il ne peut pas "retenir" plus d'une dizaine de Gauss.

C'est bien sûr très peu par rapport à ce que l'on attendrait d'un supraconducteur de type II avec un bon piégeage des vortex [87]. S'il y a un problème de matériau utilisé, il y a certainement également le fait que notre écran étant dans le vide, il doit opérer de façon pratiquement adiabatique, ce qui fragilise énormément sa rigidité magnétique. La façon dont nous avons vu ce problème est intéressante pour l'anecdote. Une surveillance attentive de la température de cet écran a montré que de temps en temps, sa température montait au-delà de 2 K, sous forme de "tempêtes". A chacune de ces tempêtes était associés des "sauts" du SQUID très violents. Ce comportement est compatible avec l'idée d'avalanche de flux :

- si l'écran se réchauffe localement, car il a atteint son courant critique, cette chaleur le réchauffe, diminue le courant critique ailleurs, ou il transite etc...

Nous avons essayé de fonctionner avec le shunt de la bobine chaud, avec l'alimentation de courant en marche. Il est apparu alors que la stabilité à long terme (> 10 minutes) était meilleure, mais par contre, le bruit de 1 à 10^{-3} Hz est de l'ordre de 10^{-4} , ce qui est trop pour l'écran supra-adiabatique.

2) Les solutions

Nous avons résolu l'ensemble de ces problèmes, en plusieurs étapes. Je vais ici les présenter globalement.

a) Nous avons amélioré la tenue mécanique de la cellule et de la bobine de mesure, en les tenant avec des fils de pêche, tendus vers les écrans thermiques. Cette solution est apparue bien supérieure à celle de l'utilisation de vis de nylon qui poussent,

au lieu de tirer, la tension des fils de nylon augmentant à basse température. Par ailleurs, la conduction thermique le long des fils est bien moindre (≤ 2 nW depuis 1 K pour 8 fils, 1 μ W pour 1 vis depuis 1 K). D'autres fils de nylon tiennent l'écran de l'évaporateur à la queue du calorimètre. La bobine de champ est centrée sur le calorimètre par des cales en fibre de verres.

b) Nous avons également monté une sonde à effet Hall sur l'écran de l'évaporateur, afin de réguler la valeur du champ et non pas du courant, dans la bobine à 6 Tesla. La stabilité obtenue était meilleure que 7.10^{-2} gauss sur 7 Tesla, soit $\sim 10^{-6}$. Pour diminuer le bruit à 50, 100 et 150 Hz, issu de la source de courant de la bobine de champ, nous avons monté une batterie de 3 x 2000 μ F en parallèle sur la bobine d'environ 10 Henry de self.

c) Nous avons construit une enceinte d'isolation phonique pour le cryostat (voir photo), dont le but est évident. Pour un proche avenir, il faudra encore découpler les tuyaux de pompes des vibrations issues des pompes, en les faisant passer par des blocs de béton.

Reste à résoudre le problème ardu des vibrations issues du Booster. A plusieurs reprises nous les avons éliminées en éteignant purement et simplement le Booster. Ce qui laisse une autonomie d'environ 20 minutes, à basse température.

d) Nous avons également divisé la sensibilité du SQUID en plaçant en parallèle, une petite inductance d'environ 0,05 μ H, constituée de 5 spires de fil supra bobinées sur une vis de nylon de $\varnothing 3$, avec un pas de 0,5 mm. Ceci conduit à une réduction de la sensibilité d'un facteur environ 15.

En effet, les couplages avec le SQUID, sont :

sans inductance parallèle :

$$\frac{M/LS}{1+L_M/LS} \sim 6.6 \cdot 10^{-3} \quad [\text{expérience} = 5 \cdot 10^{-3}]$$

avec inductance parallèle $L_{//}$:

$$\frac{M/L_S}{(1+L_M(\frac{1}{L_{//}} + \frac{1}{L_S}))} \approx \frac{10^{-2}}{1 + 0.5 + 20} = 4.6 \times 10^{-4} \quad [\text{expérience} = 3.5 \cdot 10^{-4}]$$

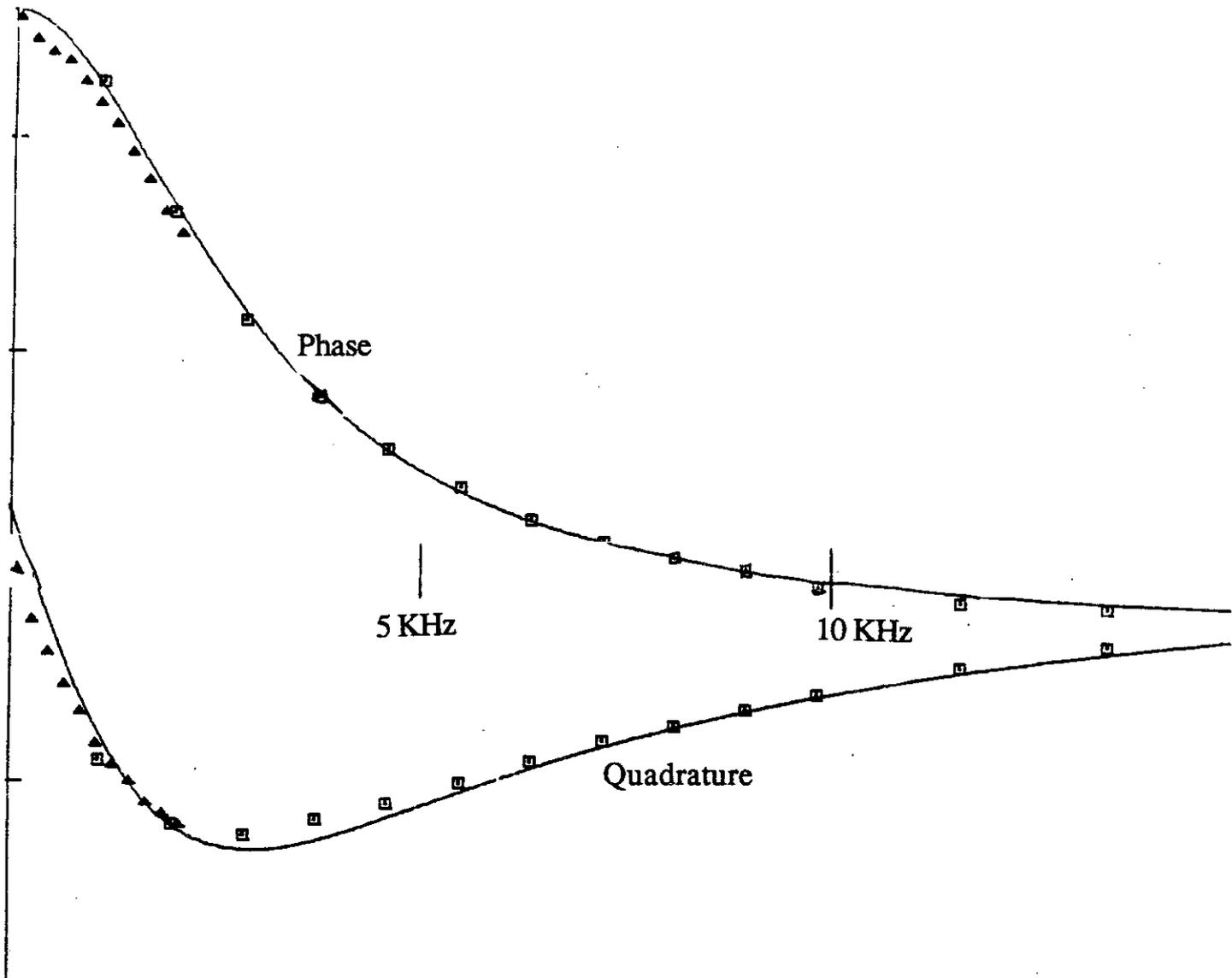


Fig VII-8: Fonction de transfert de la bobine de calibration au SQUID avec le "passe-bas". Les courbes continues sont les meilleures Lorentziennes avec une fréquence de coupure ~ 3 KHz

Soit les réductions de sensibilité :

	Théorie	expérience
$\frac{S_{//}}{S_0}$	= 1/14	1/14

e) Cette réduction d'un facteur 15 de l'amplitude du bruit étant encore insuffisante, nous avons monté un petit shunt résistif, en parallèle sur le SQUID, devant court-circuiter les hautes fréquences.

Pour être efficace dans la région du KHz, en parallèle sur une inductance de 0,05 μH , la résistance doit être inférieure au $\text{m}\Omega$. Nous avons monté 5 mm de fil de Cu 4/100 de mm, donnant 15 Ω/m à 300 K et 15 $\cdot 10^{-2}$ Ω/m à 4,2 K, c'est-à-dire 0,75 $\text{m}\Omega$.

Le temps $\frac{L}{R}$ vaut alors 7 $\cdot 10^{-5}$ s, soit $\omega\tau = 1$ pour $\nu = 2.4$ KHz. Cette fréquence doit être de l'ordre de la fréquence de coupure du passe bas.

Effectivement, nous avons tracé la fonction de transfert bobine de calibration/SQUID output, en fonction de la fréquence, comme nous l'avons mesurée à la détection synchrone. Les deux voies (phase et quadrature) sont très bien approximées par des Lorentziennes :

$$\begin{cases} Q_{\text{Phase}} = 145 \text{ mV} \cdot \frac{1}{\left(1 + \left(\frac{\omega}{\omega_0}\right)^2\right)} & \frac{\omega_0}{2\pi} = 2.9 \pm 0.2 \text{ KHz} \\ Q_{\text{Quad}} = 160 \text{ mV} \frac{\omega}{\omega_0} / \left(1 + \left(\frac{\omega}{\omega_0}\right)^2\right) & \frac{\omega_0}{2\pi} = 2.8 \pm 0.4 \text{ KHz} \end{cases}$$

voir fig. VII-8.

Ceci signifie que cette technique de filtrage des bruits haute fréquences pour les SQUID sous fort champs est très pratique à mettre en oeuvre. On doit simplement déplorer le fait que, par peur de ne pas suivre les T_1 très courts, nous avons choisi une fréquence de coupure trop élevée. En fait, 100 Hz serait largement suffisant.

f) A ce stade, le SQUID avait un fonctionnement satisfaisant même à 6,5 Tesla.

Le seul problème restant était quelques sauts du SQUID, de temps en temps, à la fin du bain d' ^4He , ou après les siphonnages, ou encore après le changement de la température de l'évaporateur, où était thermalisé la sonde à effet hall, de régulation du champ.

Ces sauts avaient lieu à un rythme d'environ 1/h en moyenne, avec des maximums de 1 par minute. Ils nous ont gêné, essentiellement lors des refroidissements du solide, ou on essayait de tracer la loi de Curie du solide sur environ 20 h.

Nous avons donc fabriqué un "détecteur d'erreur" qui se branche sur la prise "Det out", qui détecte, avec un seuil, les écarts au zéro de la sortie de la détection synchrone à 50 KHz. La sortie de cet appareil est une bascule qui peut être lue par le micro-ordinateur, et remise à zéro après lecture de l'erreur. Le micro-ordinateur peut alors, lorsqu'il y a eu erreur, déterminer la taille de l'erreur en multiple entier de ϕ_0 , par interpolation des mesures avant et après l'erreur.

Ceci s'est avéré utile, d'autant plus que petit à petit, le réfrigérateur est de plus en plus contrôlé par le micro-ordinateur.

3) Ecrantage du signal nucléaire du ^3He polarisé par des courants de Foucault

Nous avons pensé à la possibilité, que si des T_1 assez courts étaient obtenus, la disparition du moment magnétique du ^3He pouvait générer des courants de Foucault dans l'argent de la cellule, dont le temps de vie risquait d'être supérieur au T_1 de ^3He , et par la même de masquer la mesure de T_1 .

Une estimation de ce temps d'amortissement est facile : soit $L = \mu_0 \pi r^2/h$, la self inductance d'un cylindre conducteur avec un trou de rayon r et une hauteur h . Sa résistance est $R = \frac{2\pi r}{he\sigma}$, où σ est la conductivité du métal ($10^8 - 10^{10} \Omega^{-1} \text{ m}^{-1}$) et e l'épaisseur du cylindre.

Le temps d'amortissement des courants de Foucault est $\tau = \frac{L}{R} = \frac{\mu_0 \sigma e r}{2}$ soit, ici ou $r \approx 3 \text{ mm}$, et $e \approx 1 \text{ mm}$, $\tau \approx 10^{-3}$ à 10^{-1} s . Ce temps est plus court que les temps de relaxation de l'aimantation que nous avons obtenus, mais il risquait de s'approcher des premiers T_1 que nous avons obtenus (2,5 s).

Nous avons jugé utile de mesurer explicitement ce temps. C'est ce que nous avons fait, en répétant la mesure décrite au paragraphe précédent, mais pour des fréquences nettement plus basses.

Seule une fraction de l'ordre de 25 % de la mutuelle entre la bobine de calibration et celle de mesure peut être écrantée par le barreau d'argent. De plus, pour des fréquences de l'ordre de 100 Hz, la présence du "passe bas" commence à se faire sentir. Les courbes de la réponse en phase et en quadrature ont donc une structure relativement complexe. Cette structure s'éclaircit beaucoup dans un diagramme Cole-Cole, de la quadrature en fonction de la phase

Il apparaît deux lobes correspondant à chacun des temps caractéristiques. Les extrêmes de ces lobes correspondent aux fréquences où $2\pi\nu\tau = 1$, soit $\nu = 3$ KHz et $\tau = 50$ μ s pour le passe bas et $\nu = 50$ Hz, $\tau = 3 \cdot 10^{-3}$ s pour le temps d'amortissement des courants de Foucault, en bon accord avec les valeurs estimées plus haut.

D - Les problèmes non résolus

1) Sensibilité sous champ

Un problème a surgit durant nos expériences, ou nous avons vu que la sensibilité du circuit de mesure dépendait du champ. Nous avons donc calibré cette sensibilité aux différents champs que nous avons utilisés. Ces valeurs sont portées sur la fig. VII-9, en volt en sortie par mA de courant dans la bobine de calibration. Cependant, nous avons vérifié que le déséquilibre du SQUID restait proportionnel au courant de calibration, pour des flux de l'ordre de ceux obtenus avec l'³He, ce qui est absolument indispensable à la validité de notre mesure de l'aimantation du ³He. Cette variation de sensibilité s'élève à - 50 % à 6,5 Tesla, c'est-à-dire qu'elle est tout à fait énorme.

Un effet similaire, bien que plus petit est reporté dans la thèse de Pelizzone [89], sur la construction d'un magnétomètre à SQUID sous fort champs. Sa sensibilité diminue d'environ 12 % à 6 T, et est linéaire avec B^2 . Pelizzone n'en donne pas d'explications satisfaisantes.

Dans notre cas, il est apparu également que cette sensibilité est extrêmement stable, si tout le circuit de mesure reste supraconducteur, mais que, par contre, elle n'est

que peu reproductible, après un cyclage du champ, associé à un réchauffement de l'écran et du circuit de mesure, au-delà de 10 K. C'est ce qui apparaît sous la forme d'un comportement un peu erratique de la sensibilité sur la fig. VII-9. Il est notable, qu'à l'échelle, les barres d'erreur sont en principe invisibles !

La valeur de la sensibilité à champ nul, avec la bobine de champ vierge, diffère de celle avec une bobine de champ ayant monté à 6 Tesla d'environ 10 %.

Cette variation de stabilité est, à notre avis, liée à la présence de l'écran supraconducteur autour de la bobine de mesure. Nous avons vu, au paragraphe B-3) que dans le cas parfaitement diamagnétique, il peut écranter environ 50 % du signal, et diminuer la self du circuit de mesure d'un facteur comparable. Les capacités d'écrantage de l'écran en NbTi diminuent lorsque l'on approche de H_{c2} , ce qui peut impliquer des variations notable de sensibilité. Cette explication, qui semble raisonnable vu les ordres de grandeurs, est cependant en contradiction avec un point présenté par Pelizzone : sa sensibilité varie de 20 % de 0 à 8 Tesla, mais il signale par ailleurs qu'avec ou sans écran, elle est la même à 3 % près. Il semble cependant, qu'il n'est fait cette comparaison qu'à un seul champ.

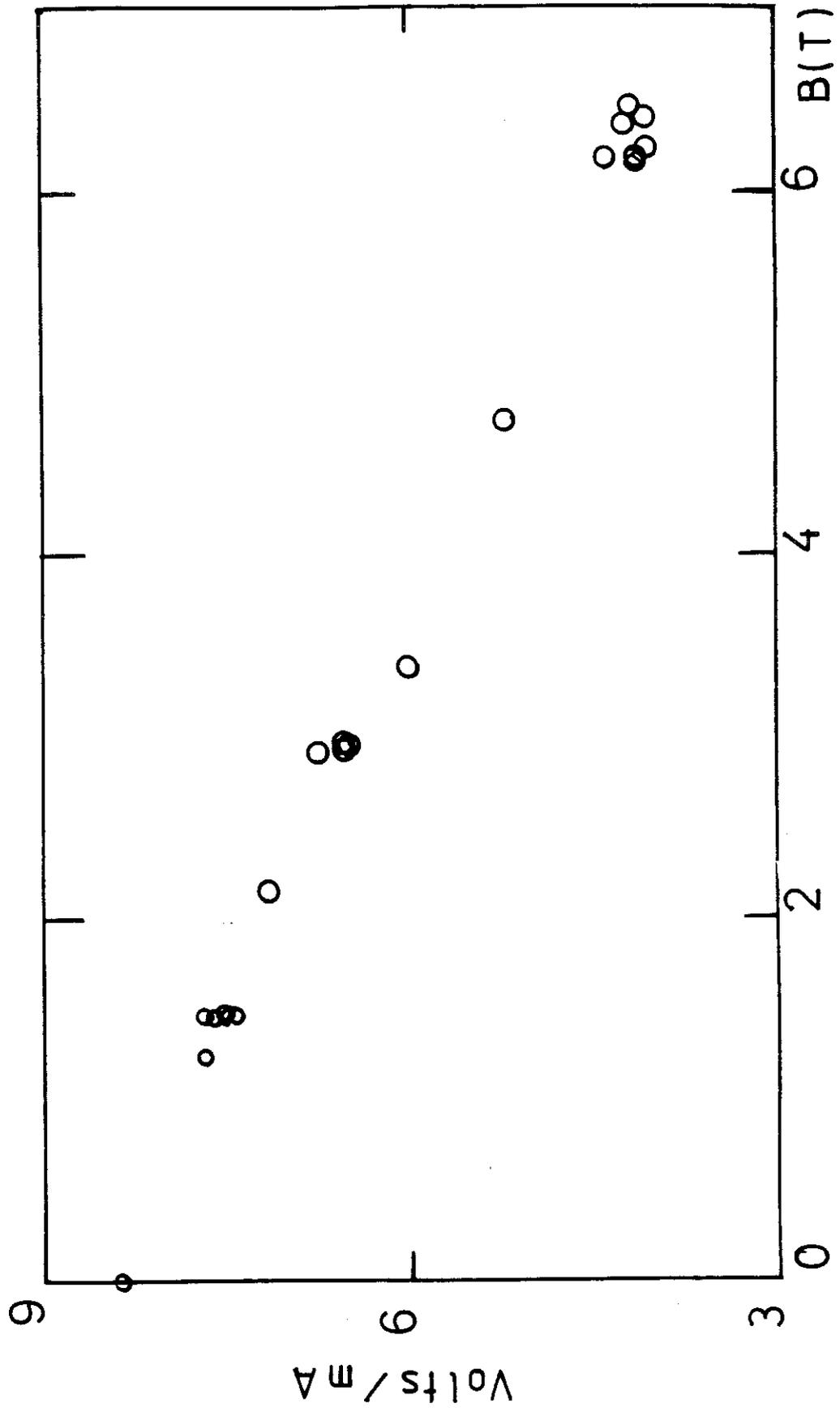
Si cette explication est la bonne, force est de reconnaître, que l'on ne peut pas prétendre estimer les variations de sensibilité du SQUID, pour un moment situé à l'endroit du ^3He , par celle obtenue pour un moment magnétique situé au niveau de la bobine de calibration, puisque les variations de l'écrantage de ces moments sont, à priori, différentes.

Nous en avons tiré la conclusion, que, à l'avenir, il faudra placer la bobine de calibration à un endroit plus proche de l' ^3He . Pour diminuer la variation de sensibilité sous champ, il sera nécessaire d'éloigner l'écran supraconducteur de la bobine de mesure.

2) Enroulement multipolaire

Un enroulement à l'intérieur d'un écran supraconducteur parfait, crée à longue distance un champ qui décroît une $\exp(-3z/l)$ avec $l \approx \frac{3a}{5}$, ou a est le rayon de l'écran, au lieu de $1/z^3$ pour un enroulement dans le vide. Ceci invalide l'analyse que nous avons faite au paragraphe B-1 de ce chapitre.

Fig VII-9: Sensibilité mesurée sous champ du dispositif: Bobine de calibration/SQUID-Output



Il semble en fait, que cette précaution que nous avons prise s'est en quelque sorte retournée contre nous.

Les enroulements de deux spires situés à 1,5 cm du centre de la bobine de mesure, se trouvent à une distance faible du bord de l'écran, et ne sont donc que peu écartés des champs extérieurs. Nous pensons, que les pics très aigus de bruit autour de 2 KHz qui nous ont beaucoup gêné sont dûs aux vibrations des thermomètres et chauffages de la cellule. Ils étaient montés sur des "clinquants" en cuivre dont les fréquences propres sont typiquement de l'ordre de 1 à 2 KHz. Etant donné que ces éléments étaient collés au "Stycast noir", réputé pour être magnétique, la vibration de ces moments à proximité des enroulements de compensation, pourrait tout à fait induire des bruits de l'ordre de ceux que nous avons.

Nous avons d'ailleurs confirmé un peu ce point de la manière suivante :

un courant alternatif dans les chauffages, doit, par la force de Lorentz, exciter mécaniquement les supports de ces chauffages. Il s'est avéré que les pics de bruit autour de 2 KHz pouvaient effectivement être excités, à résonance, par des courants injectés dans les chauffages. Les résonances observées étaient d'ailleurs très étroites (~ 1 Hz à 2 KHz).

3) Sensibilité aux dérives de champ

Si le champ appliqué dérive au cours du temps, un flux peut être induit dans la bobine de mesure. L'évaluation de ce flux est très facile expérimentalement, si on dispose d'une régulation du champ.

Nous avons trouvé un flux induit de 10^{-3} Gcm²/Gauss de variation. Ce nombre a la signification d'une surface effective non compensée. Hélas, on ne peut absolument pas en conclure que l'enroulement de la bobine de mesure est asymétrique de 10^{-3} cm². Un tel effet peut être effectivement induit par un mauvais centrage de la bobine de mesure, dans le champ appliqué, ou bien une carte de champ non symétrique de la bobine de champ. Tous ces facteurs sont très difficiles à estimer et rendent quasiment impossible la détermination de l'origine du défaut de compensation. En particulier, il est impossible d'estimer l'écrantage des dérives de champ par l'écran NbTi. Les tentatives d'estimation de ce facteur d'écrantage nous ont toutes donné un chiffre compris entre 10 et 100, qui est très inférieur à la valeur que nous attendions (10^4).

Tous ces points seraient nettement moins sensibles, si nous n'avions pas utilisé les enroulements des deux spires, puisque ceux-ci ont les défauts suivants :

- ils sont éloignés du centre de la bobine de champ, et donc sont dans des régions de fort gradient de champ,
- ils sont proches des bords de l'écran, et sont par là même sensibles aux dérives de champ.

Pour l'ensemble de ces raisons, nous allons abandonner cette idée de rajouter des enroulements supplémentaires ; nous allons également supprimer les collages au stycast noir, et utiliser des supports plus rigides pour nos thermomètres et chauffages.

E - Sensibilité effective. Diamagnétisme de ^3He . Bruit

1) Sensibilité

Plusieurs chiffres sont utiles pour caractériser le fonctionnement du SQUID. A 6,3 Tesla, nous mesurons un déséquilibre de 4,3 V par mA dans la bobine de calibration. Si on utilise la mutuelle de 2,44 μH , mesurée en absence d'écran, on obtient la sensibilité en V par Gcm^2

$$- U/\phi = 17.6 \text{ Volt}/\text{Gcm}^2$$

Dans le volume où est situé ^3He , le couplage à la bobine de mesure est de 1,80 Gcm^2 pour un moment magnétique $\mu_0 M$ de 1 Gcm^3 , et donc :

$$- U/\mu_0 M = 31.7 \text{ Volt}/\text{Gcm}^3$$

2) Sensibilité pour l'échantillon d' ^3He

Le volume libre pour ^3He est de 0,117 cm^3 , ce qui conduit à une sensibilité en terme d'aimantation $U / \left(\frac{\mu_0 M}{v} \right) = 3.74 \text{ Volt}/\text{Gauss}$.

3) Susceptibilités paramagnétique nucléaire et diamagnétique électronique

Le champ $\frac{\mu_0 M}{v}$ dans l' ^3He contient deux contributions :

* Le paramagnétisme nucléaire :

$$\frac{\mu_0 M}{v} = 2,71 \text{ m} \cdot \left(\frac{30 \text{ cm}^3}{v_{\text{mole}}} \right) \text{ Gauss}$$

où m est la polarisation nucléaire et v le volume molaire.

* Le diamagnétisme

$$\mu_0 M, v = \frac{[4\pi\chi_{\text{mol}}]_{\text{CGS}}}{v_{\text{molCGS}}} \cdot B = -8 \cdot 10^{-3} \cdot \left(\frac{30 \text{ cm}^3}{v} \right) \times (\text{B/Tesla}) \text{ Gauss}$$

On peut réécrire toutes les contributions (Pauli du liquide, Curie du solide) sous la forme :

$$m = \left(\frac{0.78 \text{ mK}}{T^*} \right) \times (\text{B/Tesla})$$

et

$$\frac{\mu_0 M}{v} = 2.11 \text{ Gauss} \times \left(\frac{\text{B/Tesla}}{T^*/\text{mK}} \right) \times \left(\frac{30 \text{ cm}^3}{v_{\text{mole}}} \right)$$

avec : liquide : $T^* = \frac{C}{\chi} \sim 250 - 500 \text{ mK}$ ou C est la constante de Curie.

Solide : $T^* = T$

La contribution diamagnétique peut être artificiellement réécrite sous cette forme, à condition de prendre :

Diamagnétisme : $T^* = -264 \text{ mK}$

ce qui montre que le terme diamagnétique de l'Hélium est du même ordre que

l'aimantation nucléaire du liquide. Finalement, la valeur la plus utile pour la suite, est la sensibilité en Volts par 1% de polarisation nucléaire.

$$U/1 \% = 0,101 \text{ Volts/\%} \times \left(\frac{30 \text{ cm}^3}{V_{\text{mole}}} \right) \times \left[\frac{(U/I)_{\text{cal}}}{4.3 \text{ V/mA}} \right]$$

" " " "

1 à 10 bars 1 à 6,34 Tesla

4) Analyse du bruit

Comme nous l'avons noté dans ce chapitre, au paragraphe C-1, le bruit en sortie du SQUID a des composantes dans toute la gamme de fréquence 0-2 KHz. Au-dessous de 0,1 Hz, nous parlerons plutôt de "dérives" du SQUID (cf. 5)). Il est nécessaire de bien préciser la morphologie du bruit puisque nous avons en vue l'évaluation de la dérivée de la polarisation m , de ^3He par rapport au temps : $\frac{dm}{dt} \sim -\frac{m}{T_1}$. Suivant la rapidité de la relaxation de m , le filtrage de la sortie du SQUID doit être fait dans des gammes de fréquences différentes.

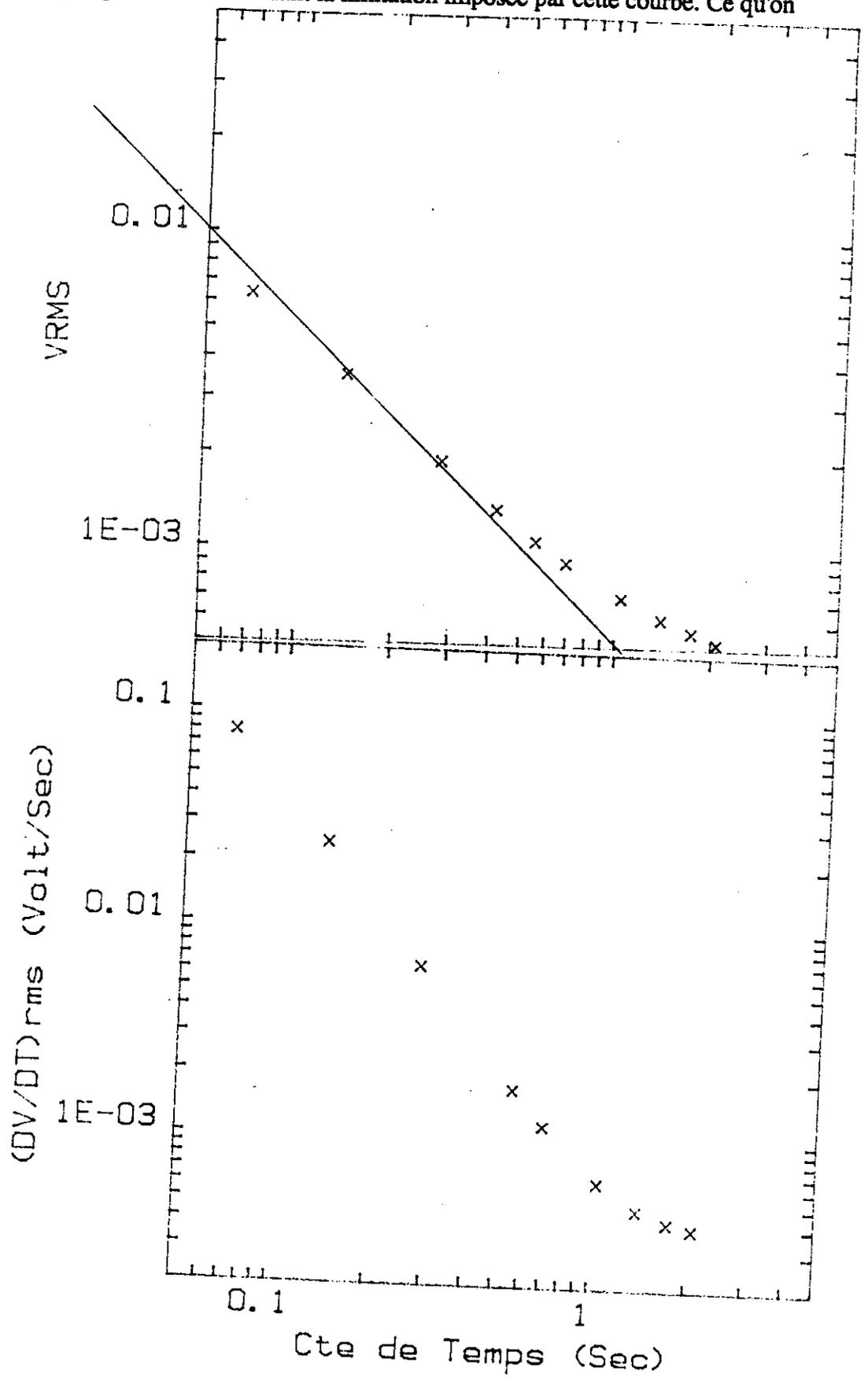
Le bruit large bande à la sortie du SQUID a toujours été inférieur à 50 mV RMS, ou 0,5 % de polarisation nucléaire.

Dans toutes les décompressions que nous présentons au chapitre suivant, nous avons fait une mesure numérique de la sortie du SQUID. Chaque mesure est une moyenne de 64 mesures réparties sur 0,07 secondes. Ainsi, la méthode de mesure constitue un passe bas à environ 15 Hz de fréquence de coupure. Le bruit RMS correspondant est de l'ordre de 12 mV, c'est-à-dire 0,1 % de polarisation.

A partir de ces mesures, on peut filtrer numériquement le résultat, ce que nous avons fait avec une méthode présentée en appendice. Le niveau de bruit V_{RMS} en Volt, décroît très rapidement avec la constante de temps d'intégration, τ et peut être amenée au-dessous de 1 mV (0,01 %) pour $\tau = 0,5$ s. Sur la fig. VII-10-a)) nous avons porté le bruit V_{RMS} en Volt en fonction de τ , pour une série de mesures sur 20 sec. prise au hasard parmi tous les fichiers que nous avons accumulés. Pour cette même série de mesure, nous avons également évalué le bruit $\left(\frac{dV}{dt} \right)_{\text{RMS}}$ en V/sec, en fonction de τ , valeur qui est reportée sur la fig. VII-10-b).

Fig VII-11: Bruit en sortie du SQUID pour $H=6.35$ Tesla en fonction du temps d'intégration.

La signification de cette figure n'est pas claire à première vue, il faut pousser l'analyse un peu plus loin en évaluant la limitation imposée par cette courbe. Ce qu'on



veut mesurer est une tension V et sa dérivée $\frac{dV}{dt}$, pour une relaxation du type $v_0 e^{-t/T_1}$ avec $v_0 \approx 3v$ et $T_1 = 3$ à 150 s.

La dérivée $\frac{dV}{dt}$ rentre dans le bruit $\left(\frac{dV}{dt}\right)_{RMS}$ à une date $\frac{t}{T_1} \approx -\text{Log} \frac{T_1}{V_0}$ $\left(\frac{dV}{dt}\right)_{RMS}$, au-delà de laquelle plus de mesure n'est possible. $\left(\frac{dV}{dt}\right)_{RMS}$ est approximativement $5 \cdot 10^{-4} + \frac{25 \cdot 10^{-5}}{\tau^2}$ Volts/s.

Si on prend comme critère que τ ne doit pas être choisi plus grand que $T_1/10$, on peut évaluer cette date de façon très simple :

$$\frac{t}{T_1} \approx -\text{Log} \left(T_1 \times 2 \cdot 10^{-4} + \frac{7 \cdot 10^{-3}}{T_1} \right)$$

Cette valeur à un maximum pour $T_1 \approx 6$ s ou $\frac{t}{T_1} \approx 6$ (36 s)

Pour $T_1 = 3$ s on sera limité à $\frac{t}{T_1} \approx 5,8$ (17,5 s)

et $T_1 = 150$ s on sera limité à $\frac{t}{T_1} \approx 3,5$ (530 s)

Ces valeurs permettent d'étudier la relaxation de l'aimantation du ^3He dans des conditions de précision largement suffisante : $e^{-t/T_1} \lesssim 2\%$.

V - Déformation de la cellule

Malgré les précautions que nous avons prises pour éviter tout couplage mécanique entre la cellule et la bobine de détection (cf. § B-2), lors des changements de pression dans la cellule, il est apparu un signal à la sortie du SQUID du côté diamagnétique ; ce signal est parfaitement linéaire avec la pression. Il s'élève à $-0,10 \text{ Volt} \pm 0,005 \text{ Volt/Bar}$ à $6,34$ Tesla. Cette valeur est reproductible, et légèrement dépendante de la température ($0,096 \text{ V/Bar}$ à $0,1 \text{ K}$, $0,102$ à 1 K). Cette pente dépend du champ, essentiellement de la même façon que la sensibilité du SQUID en Volt/mA dans la bobine de calibration.

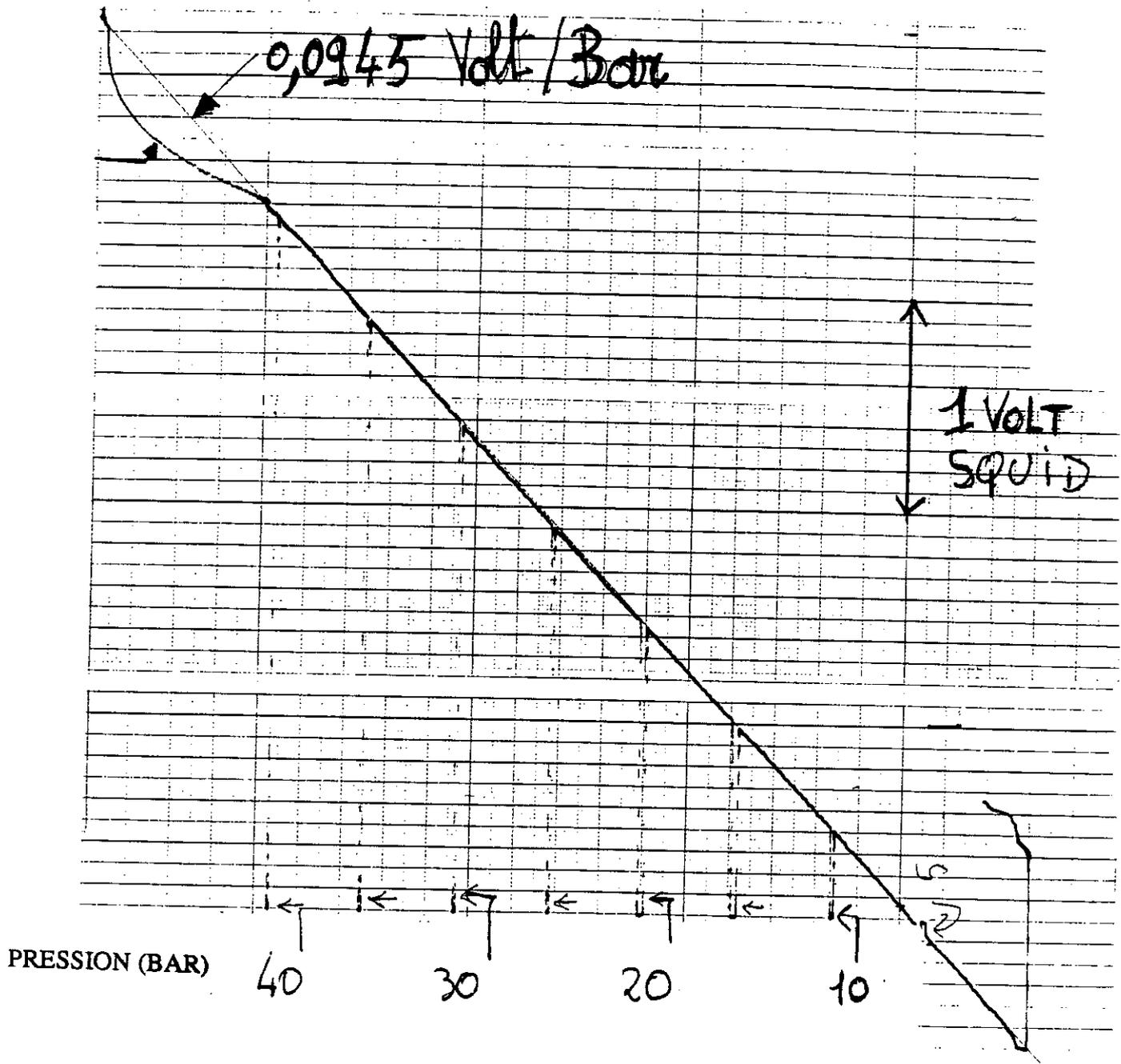


Fig VII-10: Signal induit dans le SQUID par les déformation de la cellule avec la pression pour $H=6.35 \text{ T}$, $T=1.0\text{K}$

Un tel signal correspond typiquement à 40 % de polarisation nucléaire, quand la pression passe de 40 à 0 bar. Il est bien sûr beaucoup plus grand que ce que l'on attend du diamagnétisme du liquide. Sa variation en température peut s'expliquer vraisemblablement par le fait que le signal nucléaire du liquide (paramagnétique) est nettement plus petit à 1 K qu'à 0,1 K. L'origine de ce signal est bien sûr mécanique. Lorsque nous avons rempli d' ^3He liquide à basse pression, l'autre compartiment (ballast), nous avons observé un signal dans l'autre sens, exactement de la même grandeur. Ceci implique, de fait, qu'il s'agit d'une déformation en quelque sorte reproductible, liée à un défaut de conception de la cellule. Rappelons tout de même qu'un signal de cet ordre est créé par une variation des sections des bobines de mesure, d'environ 500 Å. Ce problème doit pouvoir être éliminé, en fixant la bobine de mesure sur une partie de la cellule qui ne subit pas de contraintes.

Il ne faut cependant pas perdre de vue que la rigidité du montage bobine-cellule est cruciale pour le bon fonctionnement du SQUID. Une certaine prudence est donc de mise pour entreprendre de telles modifications.

Pratiquement, ce signal a été gênant pour les T_1 les plus courts que nous avons eus $\approx 2,5$ s puisque dans ces cas le temps de décompression n'était pas court comparé à T_1 . Pour les T_1 longs, ce signal n'a induit aucune gêne. Paradoxalement, cet effet "manomètre" de la cellule nous a aussi rendu service, puisqu'il nous a permis de contrôler la pression du solide formé, et donc le taux de solide dans la cellule, avant les décompressions (cf. chapitre VIII).

VI - Conclusions

Malgré quelques défauts décrits dans les derniers paragraphes, notre flux-mètre à SQUID, nous a permis de mesurer la polarisation nucléaire d' ^3He à l'intérieur de la poudre d'argent, à 6 Tesla et dans la région des très basses températures. La sensibilité obtenue autorise très largement le calcul de la dérivée $\frac{dm}{dt}$, de la polarisation, pour toute la gamme de temps de relaxations que nous avons observés (2 s - 150 s), jusqu'à environ $6 \times T_1$ après le début de la décompression. Nous proposons quelques modifications simples qui devraient permettre de supprimer les quelques défauts présents dans notre système, et en particulier d'améliorer la stabilité à long terme, et la variation de la sensibilité avec le champ.

CHAPITRE VIII

RESULTATS SUR LA RELAXATION DE LA POLARISATION NUCLEAIRE DANS LE FRITTE

I - Détails pratiques

La construction de la cellule est décrite en détail au chapitre VII, je vais ici rappeler quelques points, et préciser quelques grandeurs caractéristiques.

a) Morphologie de la cellule

Elle se présente sous la forme d'un barreau de 12 cm de long et $\varnothing 7$ vissée à une de ses extrémités, sur le doigt froid de la boîte à mélange.

Ce barreau contient en fait deux cavités cylindriques de $\varnothing 5$ et longueur 12 mm, rempli à 50 % de poudre d'argent 700 Å, fritté à 200°C.

Le compartiment du haut est celui où nous avons formé notre solide, celui du bas jouait le rôle de ballast. Nous l'avons très peu utilisé, à cause d'un bouchage sur le capillaire de ce compartiment.

A chacun des bouts étaient montés un thermomètre de carbone (Speer 100 Ω) et un chauffage. Le thermomètre du haut est baptisé RM2, et celui du bas SØ, dans les figures.

b) Volume et surface

Le volume libre pour l³He dans chaque compartiment était, en principe de 0,118 cm³.

Nous avons mesuré ce volume, ainsi que la surface de contact avec la poudre d'argent, avec un appareil permettant de tracer les isothermes d'adsorption de l'argon, à la température de l'azote liquide.

Nous avons trouvé des volumes libres de $0,11 \pm 0,01$ cm³. La détermination des isothermes d'adsorption d'un gaz sur une quantité inconnue de surface, permettent de connaître la quantité de surface effectivement présente. Dans le cas des substrats inhomogènes, ce qui est le cas pour la poudre d'argent, les isothermes ne présentent pas d'accident très marqué de la pression, lors de la complétion d'une monocouche (voir figure).

Une technique d'analyse très courante, est employée dans ces cas là. Il s'agit du modèle de Brunauer, Emmet et Teller [90,91].

Le résultat de ce modèle, relie la quantité de gaz adsorbée N (normalement mesurée en cm^3 STP), à la pression réduite $x = P/P_S$; P_S est la pression de vapeur saturante de l'adsorbat, à la température ou est faite l'isotherme. L'équation B.E.T. s'écrit :

$$\frac{x}{N(1-x)} = \frac{1}{N_m C} + \left(\frac{C-1}{N_m C} \right) x ; \text{ ou } C \text{ est un facteur de Boltzmann de l'enthalpie d'adsorption, et } N_m \text{ la quantité de gaz correspondant à une monocouche.}$$

En pratique, cette équation décrit bien les isothermes d'adsorption de gaz rares sur la poudre d'argent. On peut alors trouver N_m et évaluer C . On en déduit la surface présente, si on connaît la surface occupée par une monocouche de 1 cm^3 (STP) de gaz.

Nous avons mesuré les isothermes de l'argon à 77 K dans notre cellule (fig.) pour les compartiments du haut et du bas. Dans ces conditions:

$P_S = 188 \text{ Torr}$, $1 \text{ m}^2 = 0.27 \text{ cm}^3$) (STP) d'argon par monocouche et $C \approx 25$ [92,70].

Dans notre cas, nous avons obtenu $C = 45 \pm 10$ et $N_m = 0,30 \text{ cm}^3$ pour le compartiment du haut ($^3\text{He} \downarrow$) et $0,28 \text{ cm}^3$ pour celui du bas.

Ceci correspond à 1,0 et 1,1 m^2 pour un poids de poudre de 1,1 g de chaque côté. Ces valeurs se comparent favorablement à celle obtenue par Franco et al. [70], puisqu'ils présentent des surfaces spécifiques entre 1,8 et 1,2 m^2/g pour la poudre de 700 Å.

Pour résumer, nous avons travaillé avec $0,115 \text{ cm}^3$ d' ^3He liquide (3,8 m mole à $30 \text{ cm}^3/\text{mole}$), en contact avec 1 m^2 de surface. Une telle valeur correspond à environ 10^3 fois plus de surface par unité de volume que cette thèse que vous êtes en train de lire !

Cette quantité de surface correspond à 0,5 % d'atomes d' ^3He adsorbés¹ dans chaque monocouche. En général, on estime le nombre de couches solides à 1 ou 2.

c) Propreté

Nous n'avons pas pris de précautions particulières avec la poudre utilisée pour faire le fritté. Il est clair que dans ce cas, le niveau de propreté est assez douteux, bien que le procédé de frittage sous atmosphère d'hydrogène assure un certain nettoyage de cette poudre [H. Godfrin, communication privée].

Lors du montage de la cellule, nous avons monté des tés en cuivre, sur les capillaires, proches de la cellule, qui nous ont permis de pomper en vide secondaire, avec une vitesse de pompage élevée, chacun des compartiments, et ce, durant 10 heures. Ces tés ont alors été scellés, avec une atmosphère d' ^3He dans la cellule. Cette précaution a dû nous permettre d'éliminer l'oxygène de la poudre.

d) Méthode

Dans cette étude, nous avons utilisé initialement de l' ^3He à 200 ppm de pureté nominale, ou un très faible taux d' ^4He devait être présent.

Nous avons à plusieurs reprises employé la méthode suivante :

- Nous avons fait du solide vers 1 K, en contrôlant la pression finale dans la cellule grâce au signal induit dans le SQUID par les variations de pression. Systématiquement, nous avons cherché à partir à basse température d'une cellule pleine de solide, ce qui impose à 1 K une solidification à 40 bars au moins.

- Nous avons refroidi ce solide jusqu'à environ 18 mK. Cette température limite élevée est liée au dysfonctionnement du réfrigérateur dont l'origine n'a pas encore été élucidée. Durant ces refroidissements, nous avons mesuré avec le SQUID l'aimantation du solide, qui doit suivre une loi de Curie, dans ces gammes de température.

¹) La surface par atome adsorbé est environ 10 \AA^2 [93]

En partant de cette température limite, nous avons fondu ces différents solides, le plus rapidement possible, en détendant la pression des capillaires sur un volume important (1 l ou 0,25 l suivant le cas).

Les pressions finales atteintes de cette façon ont varié de 2 à 13 bars, alors que la température était d'environ 0,3 K. Durant, et après ces décompressions, nous avons mesuré le signal en sortie du SQUID, au cours du temps. Pour les temps inférieurs à 1,3 secondes après le début de la décompression, le SQUID était incapable de mesurer les variations trop rapides de flux liées à la rapide chute de pression, et à l'écoulement du ^3He dans les capillaires. Nous avons effectué ces expériences plusieurs fois à 6,5 Tesla, puis ensuite à 3 et 1,5 Tesla.

Dans le même temps, nous avons estimé les temps de relaxation dans le solide, en chauffant très rapidement la cellule de 18 mK à environ 0,1 K. Ainsi, nous avons pu suivre les variations de T_1 du solide avec le champ magnétique.

e) Utilisation d' ^4He pour rallonger T_1

Les T_1 d'environ trois secondes que nous avons obtenus pour ^3He pur, ne permettent bien sûr pas de refroidir notablement ^3He polarisé.

Nous avons donc introduit à plusieurs reprises de ^4He dans la cellule, afin d'éloigner, de la surface, les spins nucléaires de ^3He , et éventuellement de supprimer la ou les couches solides d' ^3He , à la surface (cf. chapitre VI).

Nous avons procédé de façon semi quantitative, en ce sens que les quantités d' ^4He adsorbé ne sont pas connues.

Procédure

La première fois que nous avons introduit du ^4He dans le système, nous avons tout d'abord réchauffé l'ensemble du cryostat à la température de l'azote liquide (77 K), en évacuant la plus grande partie possible d' ^3He de la cellule. Nous avons ensuite ramené le système à 4,2 K.

a) Nous avons alors injecté dans le circuit haute pression quelques Torr d' ^4He (environ 5 Torr), que nous avons laissé 30 minutes, avant de pomper grossièrement la cellule.

b) Cette première tentative n'ayant pas changé les valeurs de T_1 , nous avons à nouveau réchauffé l'ensemble du dispositif à 4,2 K et pompé à l' ^3He avec une pompe à charbons.

Nous avons alors laissé 100 Torr d' ^4He dans les capillaires pendant une nuit. Le lendemain, nous avons pompé la cellule assez rapidement, puis nous avons scellé ce volume, et suivi l'évolution de la pression, qui est remonté vers 2,5 Torr en 1 heure. Cette quantité d' ^4He nous a permis d'obtenir des T_1 environ 5 fois plus grand que pour l' ^3He pur (~ 15 s).

c) Enfin, nous avons réchauffé le cryostat jusqu'à 300 K pour déboucher le capillaire du "ballast", ce qui a d'ailleurs fonctionné. Une fois revenu à 4,2 K, nous avons à nouveau laissé 100 Torr de ^4He dans la cellule pendant 12 heures, puis nous l'avons pompée et scellée avec une pression de 4,5 Torr d' ^4He . Nous avons alors obtenu les T_1 supérieurs à 100 s.

Pour les volumes existant dans notre circuit, à l'intérieur du cryostat, le gaz porésent dans les tuyaux à 5 Torr et 4,2 K est de l'ordre de 4 μmole , alors que le gaz adsorbé pour une couche doit être environ 40 μmole par monocouche.

Par ailleurs, les pressions employées en b) et c) garantissent la présence au minimum une monocouche d' ^4He solide à 4,2 K, et vraisemblablement 2 monocouches [94,95,96] et Refs. de [94].

Fig VIII-1: Relaxation de la polarisation du ^3He dans le fritté. Fig a): ^3He pur, Fig b) avec trop peu ^4He . Les diverses courbes correspondent aux corrections dont il est question au §III

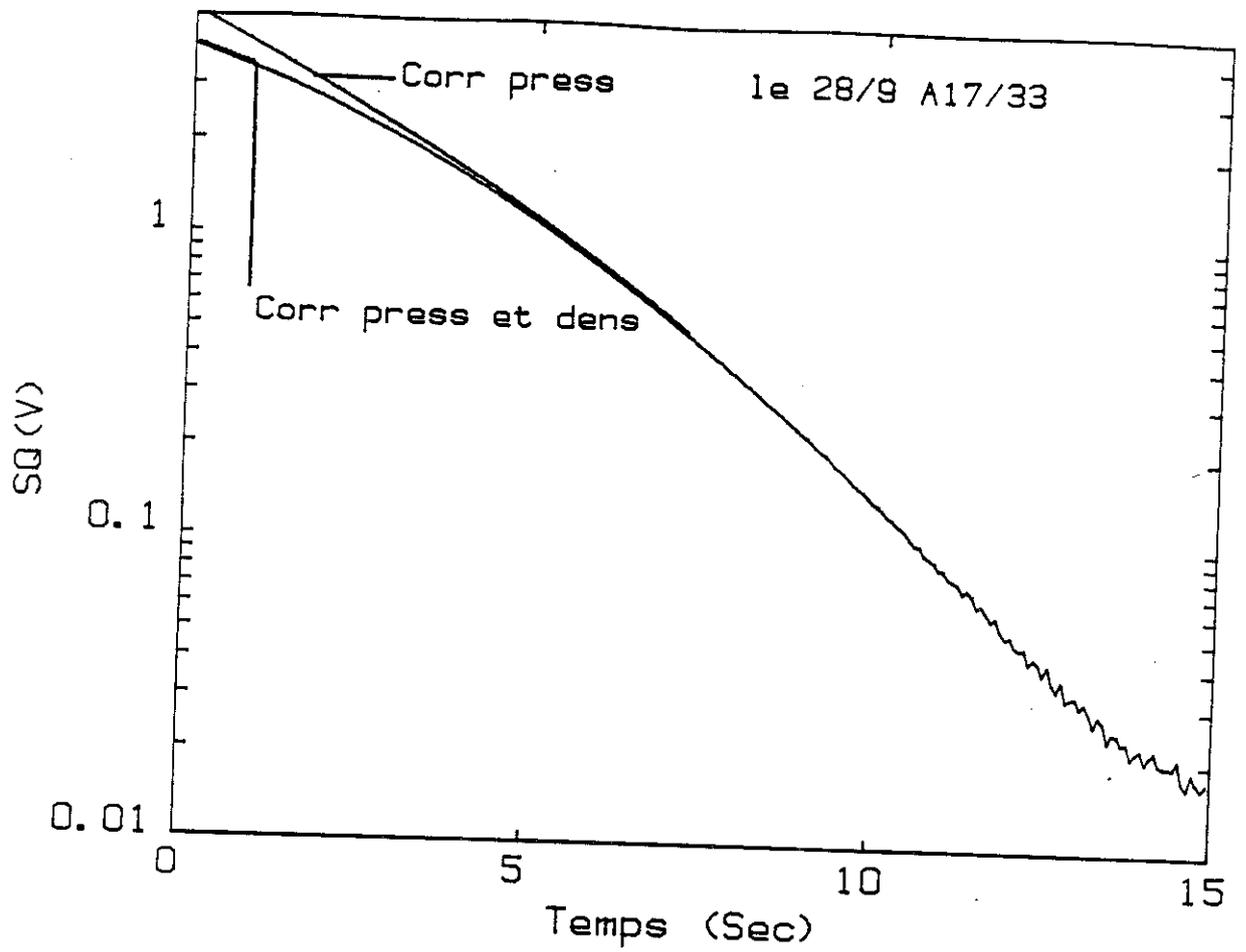


Fig a)

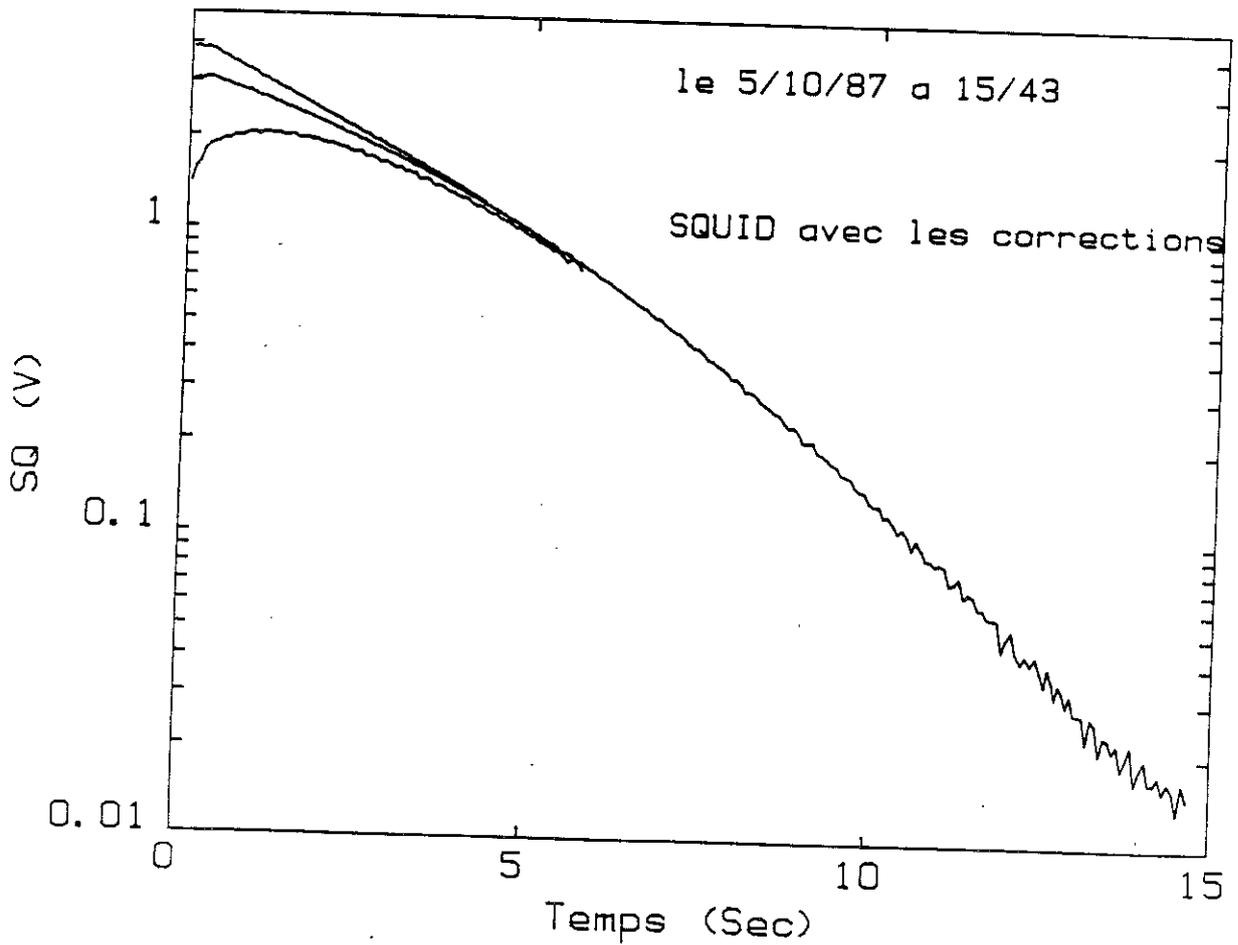


Fig b)

II - Résultats d'ensemble

1) ^3He pur

La relaxation de l'aimantation du ^3He pur dans cette poudre frittée se fait à un rythme assez rapide puisque T_1 est de l'ordre de 2,5 s à 6,3 Tesla, c'est-à-dire que 6 s sont nécessaires pour diviser l'aimantation par 10.

Un exemple caractéristique de cette relaxation est porté sur la fig. VIII-1-a), en diagramme semi logarithmique. La relaxation semble s'accélérer aux temps plus longs, nous verrons en fait que c'est un effet lié à la variation très rapide de la température lors de la relaxation.

La fig. VIII-1-b) présente dans les mêmes coordonnées, une décompression effectuée après qu'une première quantité d' ^4He ait été introduite dans la cellule. On constate facilement que l'effet de l' ^4He lors de cette première tentative a été nul. Par ailleurs, le même effet d'accélération de la relaxation aux temps plus longs apparaît clairement.

2) Avec plus d' ^4He

Nous avons introduit à nouveau du ^4He dans la cellule, à 4,2 K. Cette fois ci, l'effet sur le taux de relaxation a été très net, puisqu'une augmentation du T_1 , d'environ un facteur 5 a été obtenu : $T_1 \approx 15$ s.

Deux exemples caractéristiques de telles décompressions sont portés sur les figures VIII-2-a).

On constate encore que la relaxation n'est pas parfaitement exponentielle, mais le temps caractéristique est bien de 35 s par décade.

Le taux de relaxation varie au cours du temps, mais de fait, cet effet est lié à la dérive de la température du ^3He , qui passe de 0,35 K à $t = 0$ à 0,08 K à $t = 30$ s. Ceci est confirmé de façon indiscutable par le fait que si on empêche la cellule de se refroidir, en la chauffant avec 0,6 mW, la relaxation devient très proche d'une exponentielle. Ce point apparaît très clairement sur les figures VIII-2-b).

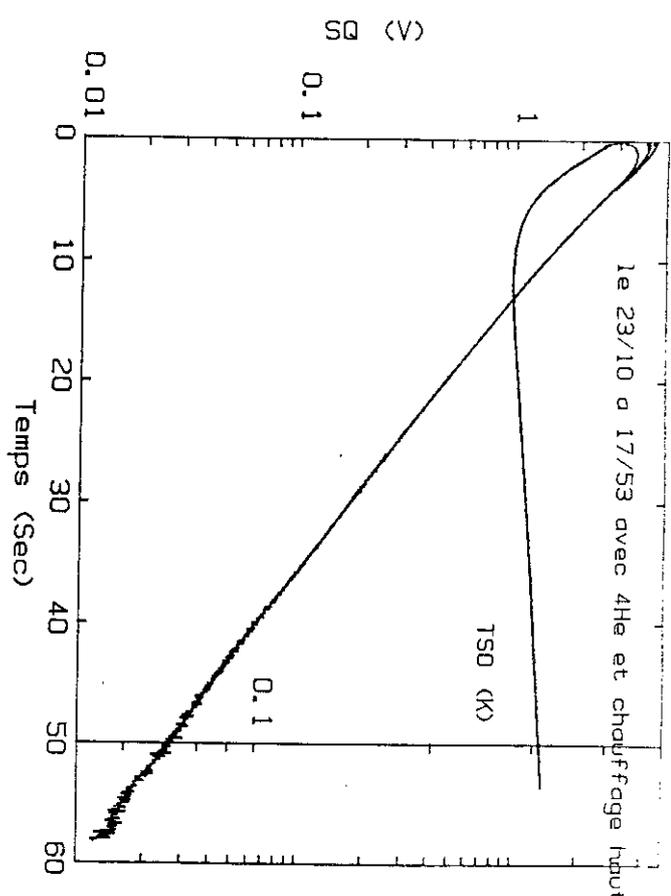
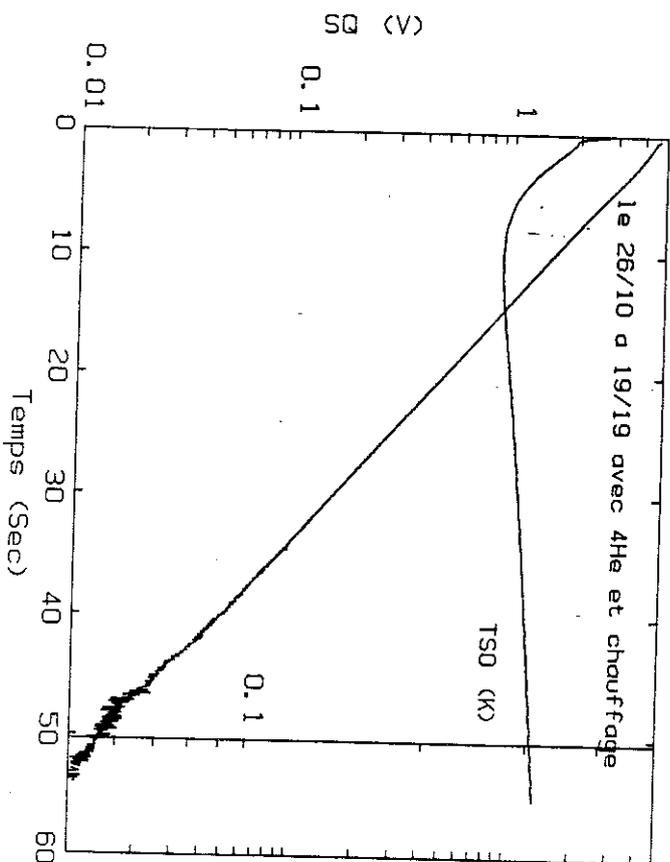
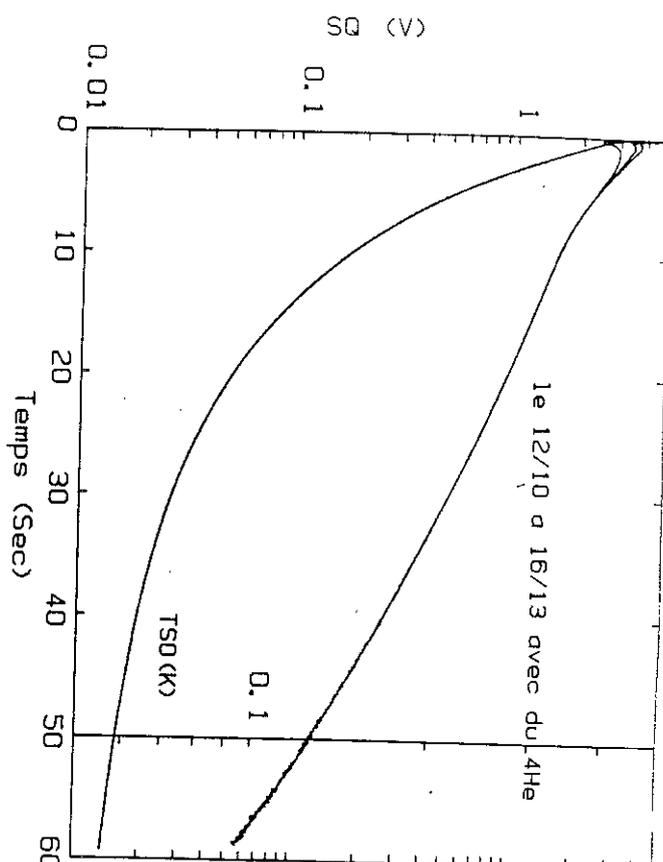
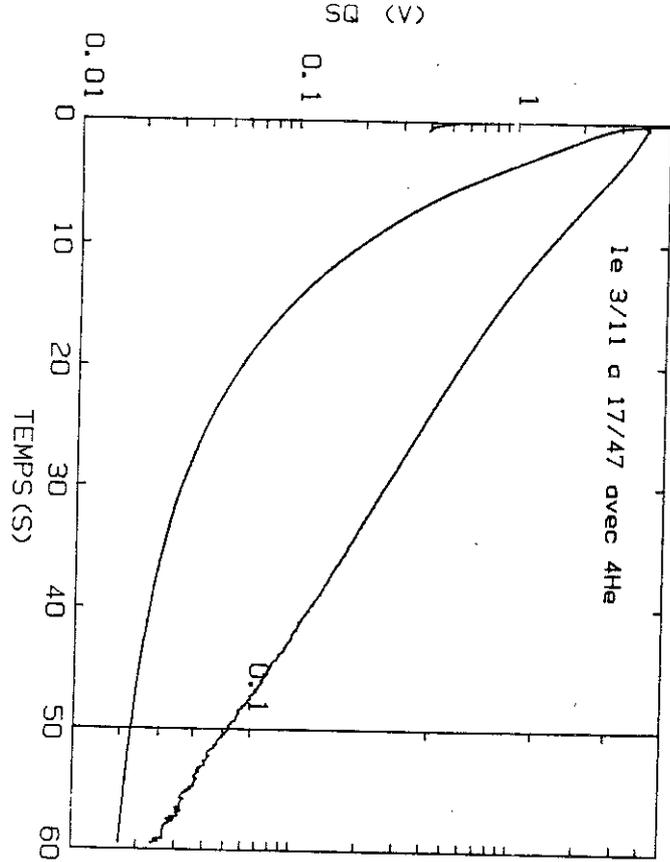


Fig VIII-2: Relaxation de la polarisation du ^3He dans le fritté en présence de ^4He (2.5 Torr) à 4.2K
 Fig a) :lorsque la température évolue librement.Fig b) lorsque on empêche le refroidissement.

3) Avec encore plus d' ^4He

Dans notre dernière tentative pour mettre du ^4He , nous avons obtenu des temps de relaxation encore beaucoup plus longs.

La figure VIII-3 présente une décompression faite avec cet ^4He . Les points importants à noter sur cette figure sont :

1) L'échelle des temps est dilatée 40 fois (!) par rapport aux figures VIII-1, et 10 fois par rapport aux figures VIII-2.

2) 80 secondes après le début de la décompression, 50 % de l'aimantation initiale est toujours présente (soit environ 15 %) et la température est inférieure à 50 mK, et rentre en équilibre avec celle de la boîte à mélange.

3) La tendance d'accélération de la relaxation vers les basses températures est encore présente.

4) Résumé

La relaxation de la polarisation du ^3He dans cette poudre d'argent de $0,1\ \mu\text{m}$ se fait, à 6,5 Tesla sur une échelle de temps variant de 2,5 à 130 secondes, suivant la quantité d' ^4He présente dans la cellule. Des temps encore plus longs ne sont pas à exclure.

Ceci nous a permis de ramener la température du liquide polarisé, en équilibre avec celle de la boîte à mélange, en gardant un taux de polarisation supérieur à 50 % de sa valeur initiale.

Cette conclusion implique un pronostic favorable pour l'étude que nous avons décidé d'entreprendre, qui est l'étude de la relaxation d'énergie dans l' ^3He liquide polarisé et refroidi au-dessous de 0,1 K.

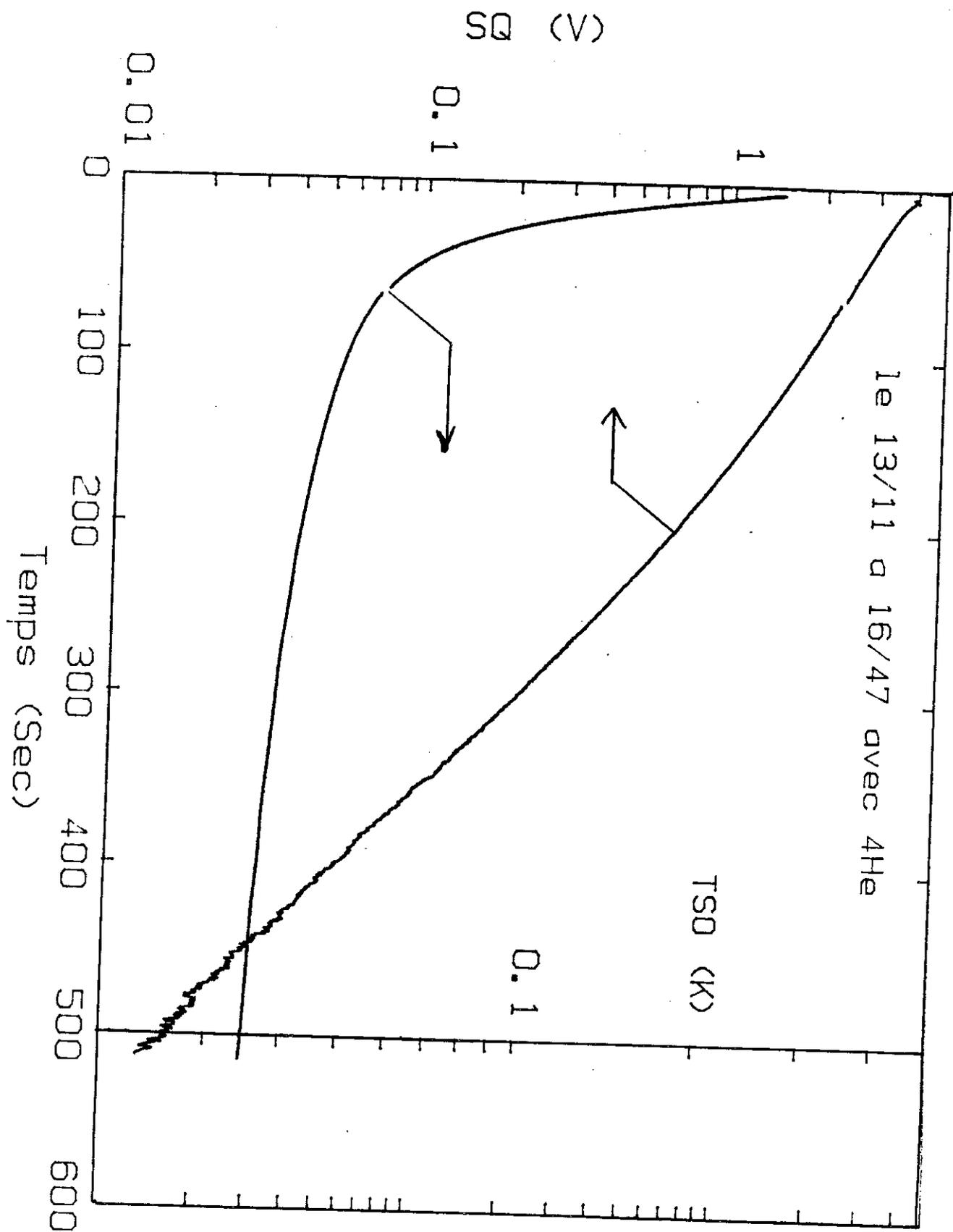


Fig VIII-3: Relaxation de la polarisation du ^3He dans le fritté en présence de plus d' ^4He (4 Torr à 4.2K)

III - Analyse plus détaillée des relaxations

Nos résultats ont indiqué une relaxation de l'aimantation du ^3He dans la poudre frittée, avec un temps caractéristique d'environ 3 s, tel qu'il est reporté sur la fig. VIII-1. Le signal en sortie du SQUID montre en fait un maximum, lié à la variation de la pression dans la cellule, comme nous l'avons introduit au chapitre VII. Le temps nécessaire à la mise en équilibre de la pression dans la cellule, avec celle imposée au sommet du cryostat étant de l'ordre de 1 s, ce signal est difficile à séparer de celui dû à la polarisation des noyaux.

Nous avons donc fait une étude assez approfondie du comportement du SQUID après des variations brutales de la pression ambiante, la cellule étant pleine de liquide non polarisé. Avant de présenter en plus grand détail les temps T_1 pour ^3He pur, il est souhaitable de décrire les diverses corrections à appliquer au signal du SQUID pour les temps courts.

1) Corrections à apporter sur la sortie du SQUID

a) Pression

Nous avons indiqué au chapitre VII qu'un signal de V_B ($\approx -0,1 \text{ bar} \pm 0,002$ à 6 Tesla) apparaît en sortie du SQUID lors de la variation de pression dans la cellule. Les variations brutales de la pression ambiante (par exemple de 25 à 2 bar) conduisent alors à une relaxation pratiquement exponentielle du SQUID avec un temps τ_p variant de 1 s à 20 bar à 1,3 s à 1 bar, avec une amplitude correspondant à la valeur de V_B , mesurée de façon statique.

Lors de décompressions du solide polarisé, ce signal parasite doit être soustrait du signal mesuré.

Les variations de τ_p avec la pression n'étant pas réellement notables, comparées aux barres d'erreurs sur τ_p , nous avons utilisé systématiquement $\tau_p = 1,2 \text{ s}$. c'est-à-dire que nous avons soustrait la tension $\Delta = V_B \times (P_f - P_i) \exp(-t/1,2 \text{ s})$ au SQUID mesuré à la date t après une décompression de P_i à P_f . Pour illustrer ce point, j'ai porté sur la figure VIII-4, 4 décompressions du liquide non polarisé, et le signal corrigé de Δ , en fonction du temps. On constate que 80 à 90 % du signal parasite est supprimé par la correction Δ .

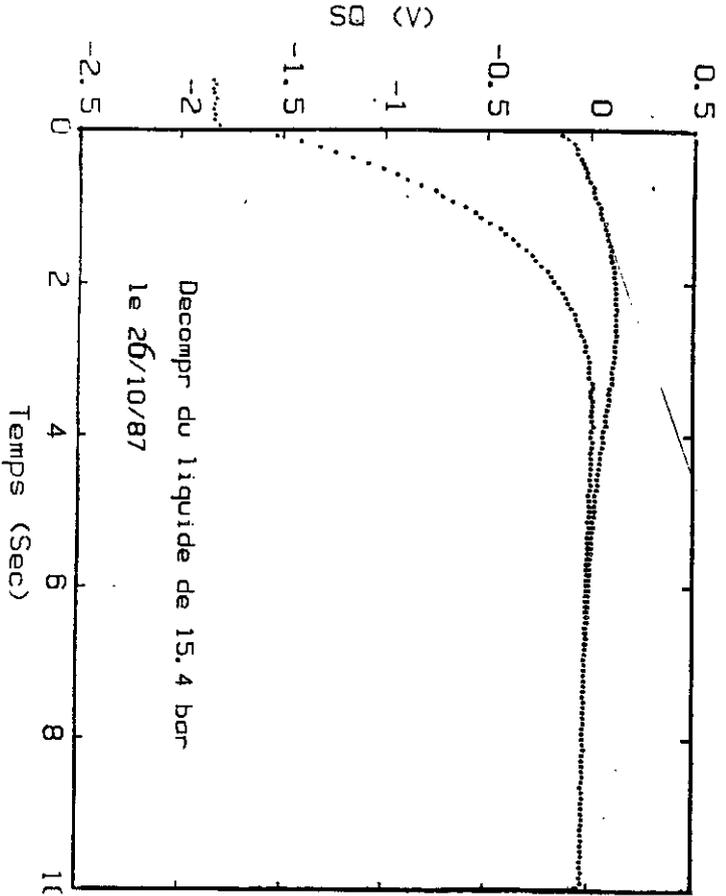
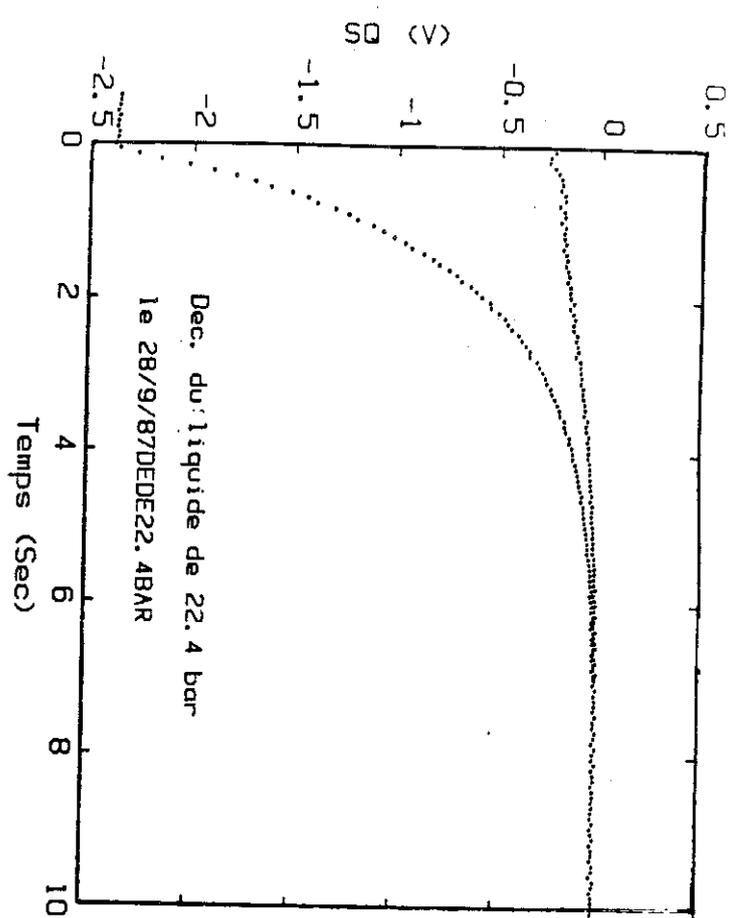


Fig VIII-4:Signal du SQUID après avoir décompressé du liquide pressurisé.Nous avons également porté le signal obtenu après avoir appliqué la correction proposée dans le texte

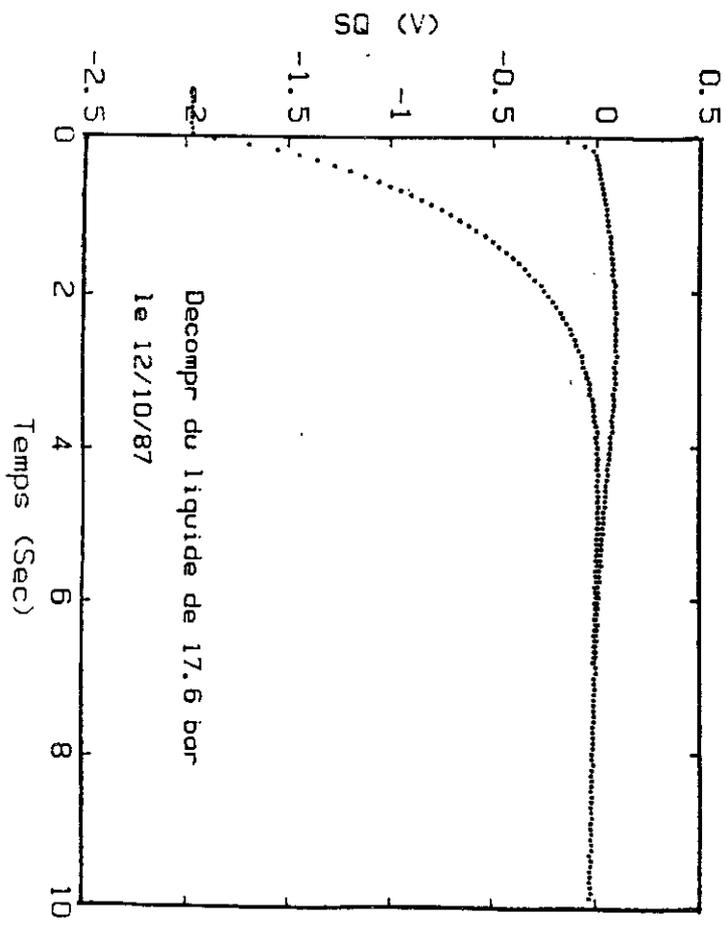
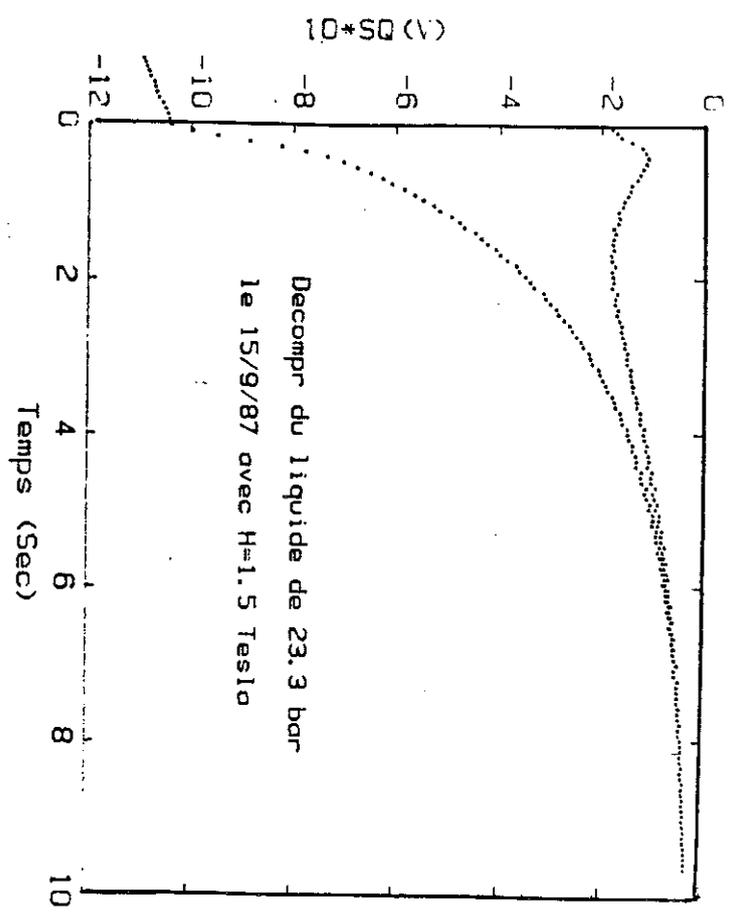
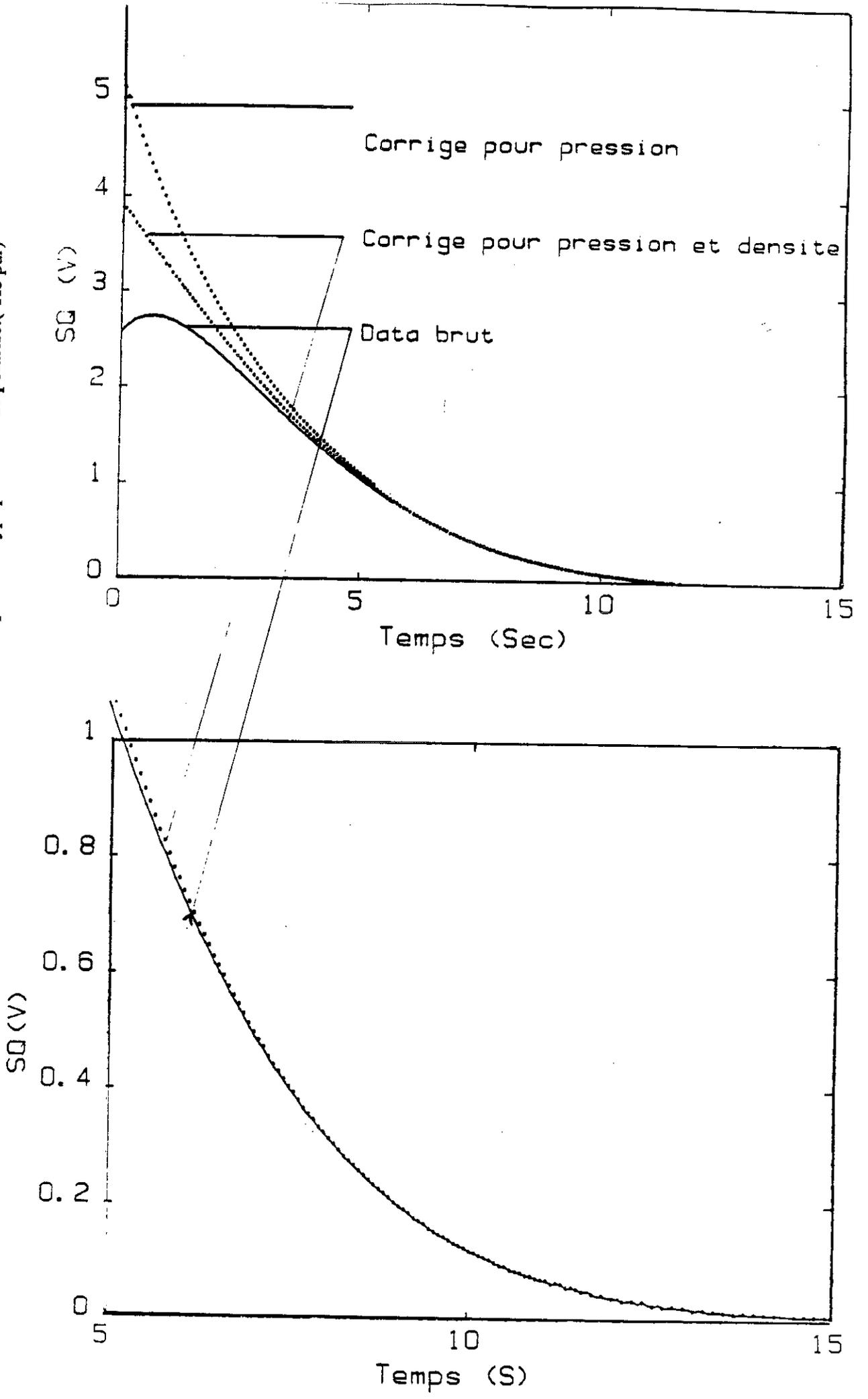


Fig VIII-5: Effet des deux corrections sur une décompression typique du solide polarisé. (^3He pur)



Lors de décompression du solide, se pose le problème du choix, de l'origine des temps, et de la pression initiale, pour le calcul effectif de la correction Δ . Nous avons choisi comme critère, que la cellule doit atteindre sa température maximale juste après la fusion, date à laquelle $P_i = 29$ bar. Le maximum de température étant bien défini (à un ou deux points de mesure près : 0,07 ou 0,14 s), nous avons ainsi un critère satisfaisant et peu ambigu. De façon assez générale, cette date correspond également au moment où on peut commencer à mesurer le SQUID. Aux temps plus courts, à cause de vibrations dues à la fusion, le SQUID n'arrive pas à "suivre" les variations du flux. Ceci semble confirmer le fait que le maximum de température correspond bien à la fin de la fusion ($P = 29$ bar).

b) Densité

Lors de la relaxation de la pression avec le temps τ_p , la densité de ^3He dans la cellule change au cours du temps : des atomes sortent de la cellule.

Si on veut ramener le signal en sortie du SQUID, en polarisation nucléaire, il faut donc corriger d'un facteur multiplicatif $\frac{V_t}{V_f}$, le signal d'aimantation où V_f est le volume molaire à $t = \infty$ et V_t celui à la date t .

Les variations de V_t sont en fait importantes : de $26,5 \text{ cm}^3$ à 29 bar à $36,7$ à 0 bar. Nous avons alors évalué systématiquement V_t/V_f au cours du temps en supposant que la pression P varie de la façon suivante : $P = P_f + (29 - P_f) \exp - t/1.2$ bar. D'où nous en avons déduit la valeur de V_t par un polynôme de degré 5 en P .

Cette correction est tout à fait importante, principalement pour le calcul de la dérivée dSQ/dt . En effet, dans les données brutes, une contribution à dSQ/dt d'environ $0,5 \text{ Volt/s}$ est due à la variation de densité du ^3He , alors que $\frac{dSQ}{dt}$ due à la relaxation de l'aimantation ne dépasse pas 1 Volt/s . Ce point est encore beaucoup plus clair lorsque des T_1 longs ($\sim 100 \text{ s}$) sont obtenues, avec de ^4He adsorbé sur la poudre. Dans ce cas en effet, la contribution à $\frac{dSQ}{dt}$ due à la variation de densité est prépondérante vers $t = 0$.

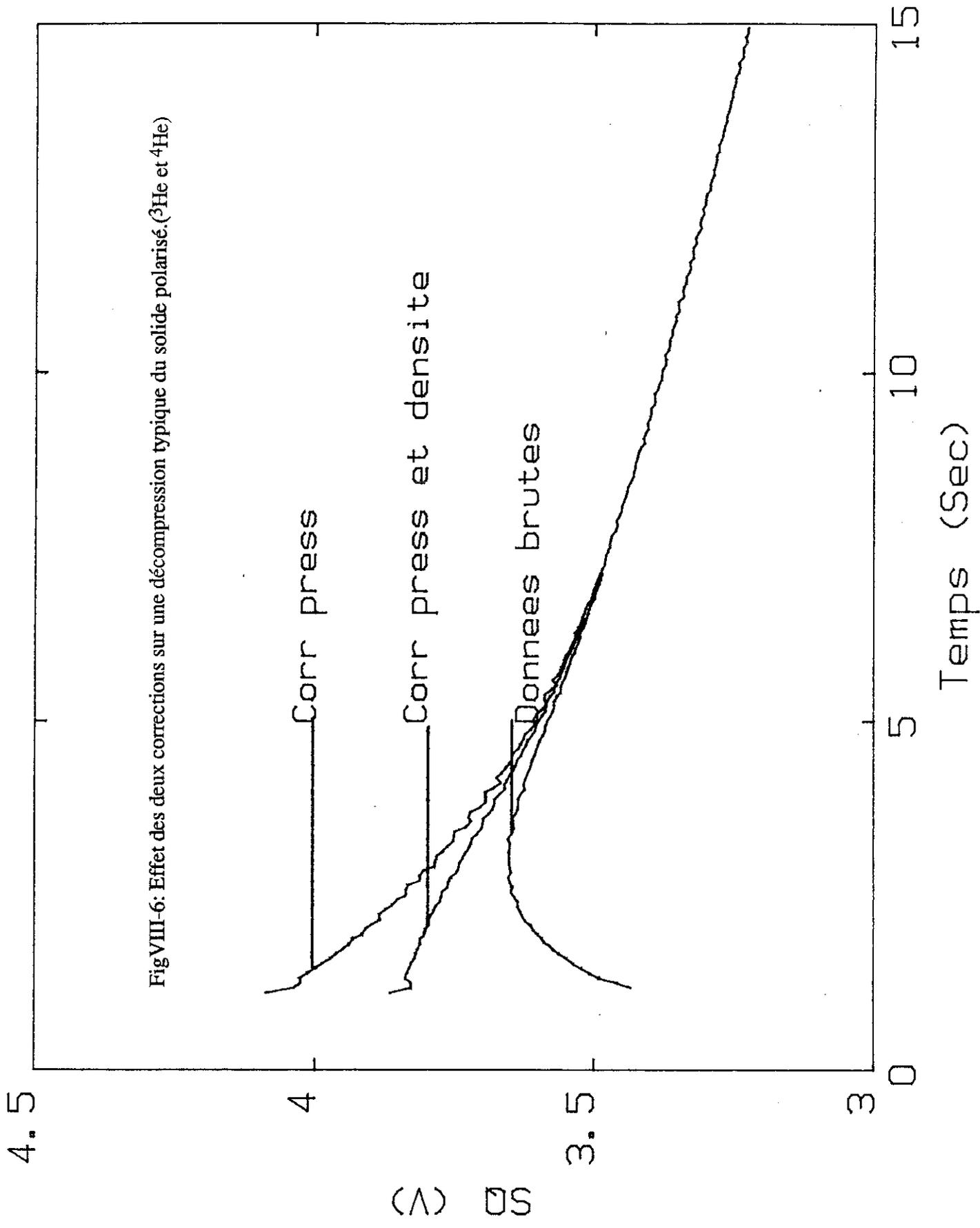


Fig VIII-6: Effet des deux corrections sur une décompression typique du solide polarisé. (^3He et ^4He)

c) Mise en pratique de ces corrections. Confirmations

Sur la fig. VIII-4 nous avons porté, en fonction du temps, pour une décompression sur ^3He pur à 6,3 Tesla, le SQUID, ainsi que les deux valeurs corrigées :

- effet de la pression,
- celui de la densité.

Les paramètres sont :

- pression finale : 2,3 bars,
- V_B : 0,100 Volt/bar
- τ_p : 1,2 s
- $t = 0$: max de $T_{S\emptyset}$

Sur la fig. VIII-4-b), on constate que l'effet de ces corrections est très petit pour $t \geq 5$ s, alors que sur la fig. VIII-4-a), il apparaît comme tout à fait important.

Sans autre confirmation, l'utilisation de telles corrections peut paraître un peu hasardeuse, mais, grâce aux expériences avec de ^4He adsorbé, ou des T_1 de l'ordre de 100 s sont obtenues, on peut tester la validité de ces corrections, même après la fusion du solide polarisé (fig. VIII-5). Voir aussi les Fig. VIII 1 et 2.

2) Analyse plus détaillée de la relaxation

a) Méthode d'analyse

Comme nous l'avons dit, la non exponentialité de la relaxation semble liée aux changements de température durant la décroissance de l'aimantation.

Si l'hypothèse est faite, selon laquelle, à température fixe, la relation est exponentielle, alors, la valeur instantanée de $\frac{-m}{\left(\frac{dm}{dt}\right)}$ doit être le temps de relaxation T_1 , de la polarisation. En pratique, si on porte $\frac{-SQ}{\left(\frac{dSQ}{dt}\right)}$ en fonction de la température du point bas

de la cellule, en principe égale à celle du ^3He polarisé, on obtient la dépendance en température du T_1 .

Une telle analyse permet de comparer nos résultats, par exemple avec ceux obtenus sur DLX 6000 [69] ou [68].

Cette approche pour évaluer les variations de T_1 avec la température est séduisante, mais il faut bien percevoir que l'évaluation de la barre d'erreur pour $\frac{dSQ}{dt}$ est largement obscurcie pour des temps inférieurs à 5 s, par les variations de pression et de densité dans la cellule.

Une certaine prudence est donc de mise. Certains points peuvent cependant être éclaircis :

Dans nos essais de décompression du liquide, en absence de polarisation, la correction que nous utilisons permet de ramener la dérivée du SQUID, systématiquement au dessous de 0,1 V/s. Par ailleurs, ces écarts à zéro disparaissent avec un temps caractéristique de l'ordre de 1,2 s. La correction sur la densité est en fait plus petite. Cette valeur de 0,1 V/s $\times e^{-t/1.2\text{ s}}$ constitue donc la barre d'erreur sur $\frac{dSQ}{dt}$, à une date t après la fin de la fusion.

Cette erreur doit être comparée à la valeur de la dérivée du signal dû aux spins nucléaires, c'est-à-dire environ $\frac{3V}{T_1} \exp - t/T_1$. La précision relative sur $\frac{dSQ}{dt}$ sera meilleure que 10 % pour les temps t tels que :

$$0,1 \times \frac{3V}{T_1} e^{-t/T_1} \geq 0,1 \text{ V/s } e^{-t/1.2\text{ s}}$$

pour $T_1 \gg 1,2\text{ s}$, ceci conduit à : $t \geq 1,2\text{ s} \times \text{Log} \frac{T_1}{3}$, soit

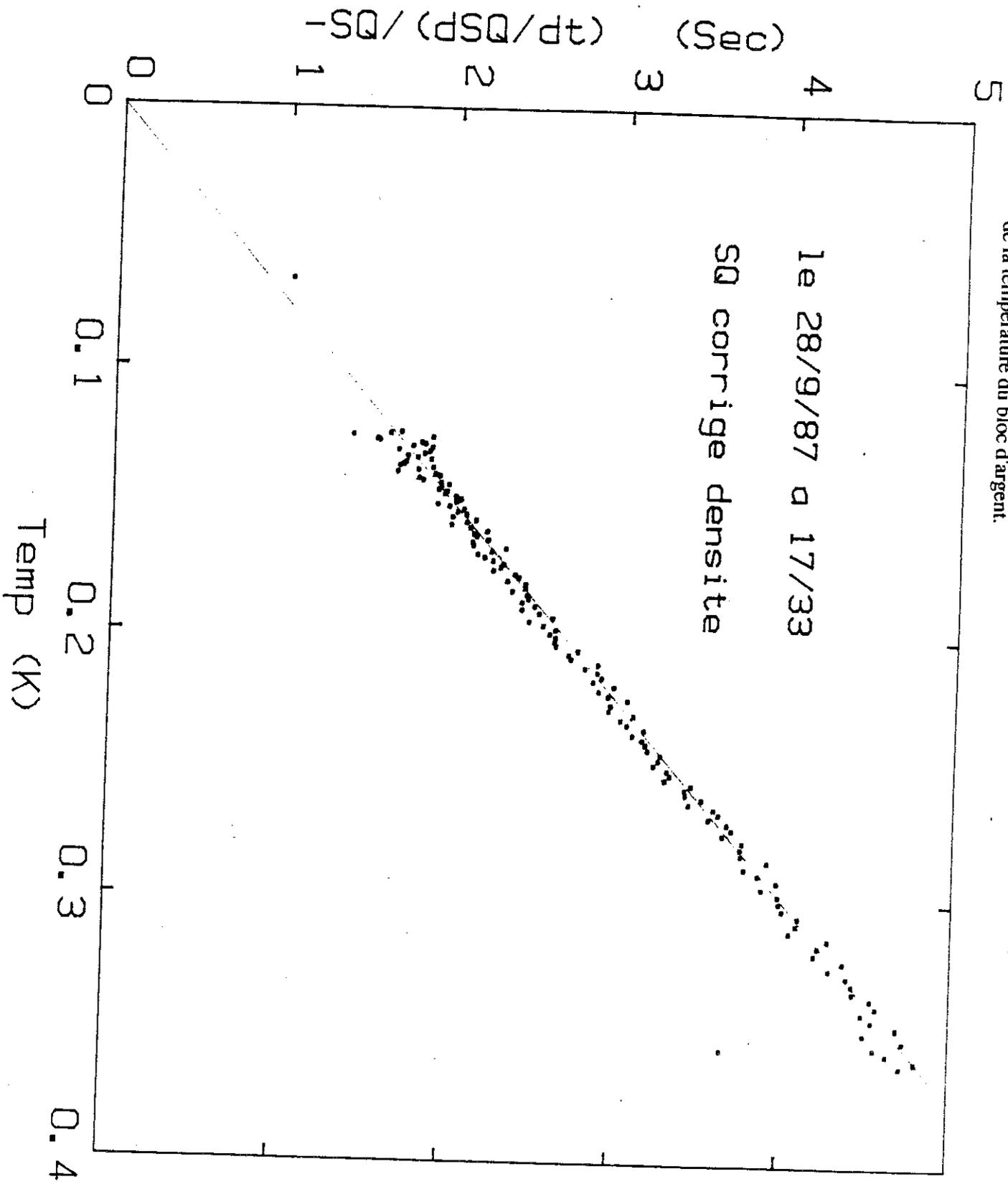
$$t \geq 1,5\text{ s} \text{ pour } T_1 = 10\text{ s}$$

$$t \geq 4,2\text{ s} \text{ pour } T_1 = 100\text{ s}$$

Pour $T_1 = 3\text{ s}$, la précision est meilleure que 10 %, dès le début de la relaxation.

La conclusion, qui est finalement satisfaisante, est que dans le cas des T_1 courts, la correction, si elle doit absolument être utilisée, doit donner des résultats corrects.

Fig VIII-7: Valeur instantanée de T_1 lors d'une décompression du solide (^3He pur), porté en fonction de la température du bloc d'argent.



Pour les T_1 plus longs, il faut être plus prudent quant à sa validité, à des temps inférieurs à 4 s. Ceci n'est de toute façon pas très grave, puisque l'essentiel de la relaxation a lieu à des dates où la correction est négligeable.

C'est cette doctrine que nous avons utilisée dans la suite :

- pour le cas ^3He pur, nous utilisons l'ensemble de la courbe $-SQ / \left(\frac{dSQ}{dt} \right)$
- en présence d' ^4He , nous ne considérons que les points où $t \geq 4,2$ s.

Avec ces précautions, la précision sur T_1 instantané doit toujours être meilleure que 10 %.

3) Relaxation dans ^3He pur

La valeur instantanée de $T_1 = \frac{-SQ}{\left(\frac{dSQ}{dt} \right)}$ pour l'expérience de la fig. VIII-1 est

portée en fonction de la température du bas de la cellule ($T_{S\emptyset}$) sur la fig. VIII-6.

Il est assez remarquable de constater cette dépendance linéaire de T_1 avec T , telle qu'elle est observée sur les autres substrats par des méthodes beaucoup plus orthodoxes.

En effet, nous obtenons avec une très bonne précision $T_1 = 13 \text{ s} \times \frac{T}{\text{K}}$ pour $0,35 \text{ K} \geq T \geq 0,12 \text{ K}$. Une telle dépendance s'explique, comme nous l'avons vu au chapitre V par le modèle de Hammel et Richardson [76]. En fait, dans la région de température dont nous parlons, le modèle de Hammel et Richardson prévoit une diminution sensible de $\frac{T_1}{T}$, due au fait que la susceptibilité du liquide commence à diminuer notablement. Qualitativement, le fait que nous notions une substantielle diminution de T_1 avec T signifie que notre méthode d'analyse, et la qualité de nos mesures sont correctes.

Pour confirmer ce point, citons encore le fait que, malgré des conditions initiales de polarisation assez différentes : 3 V au lieu de 4 V, la relaxation du 5/10, conduit à une courbe $T_1(T)$ strictement identique à celle présentée sur la fig. VIII-6.

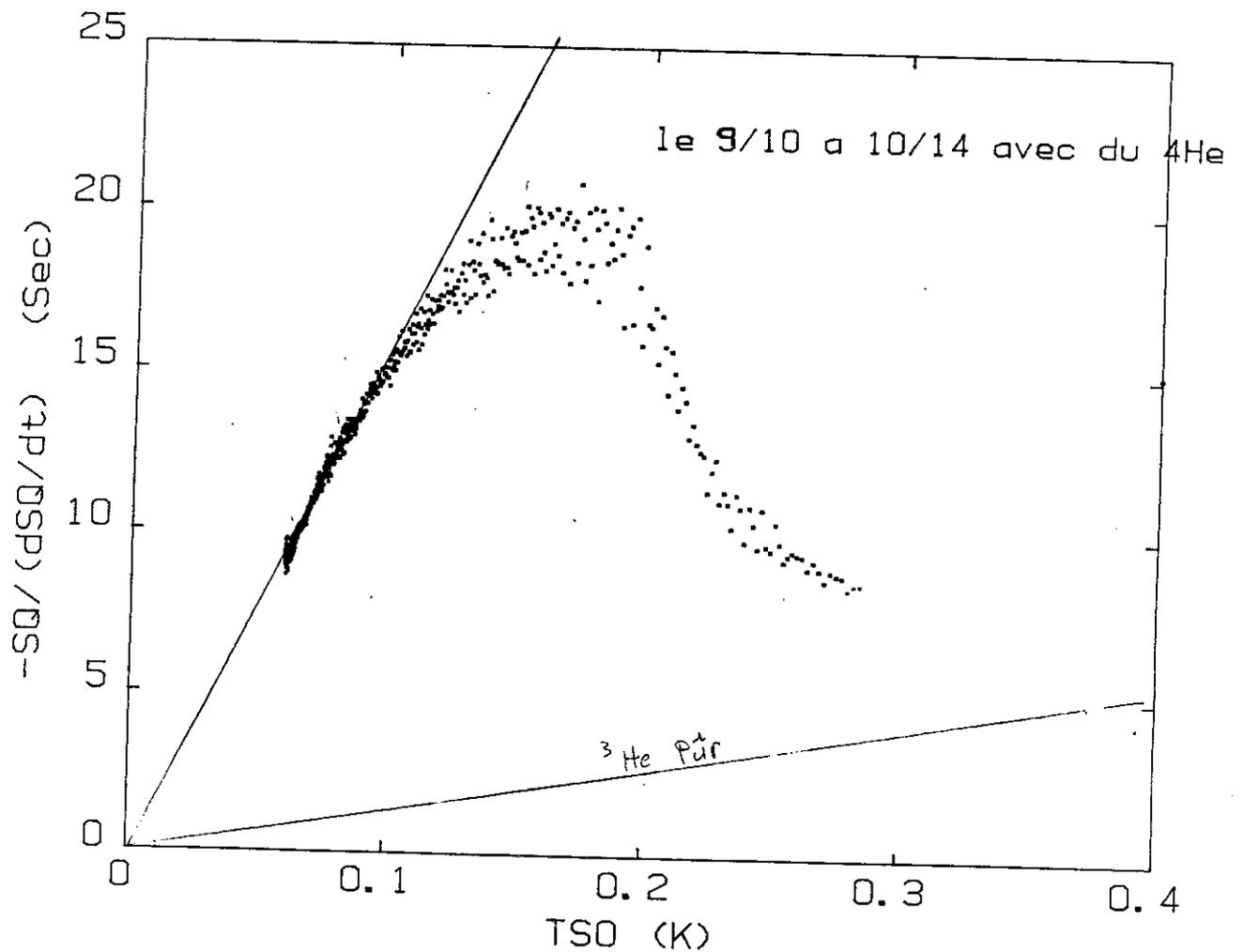
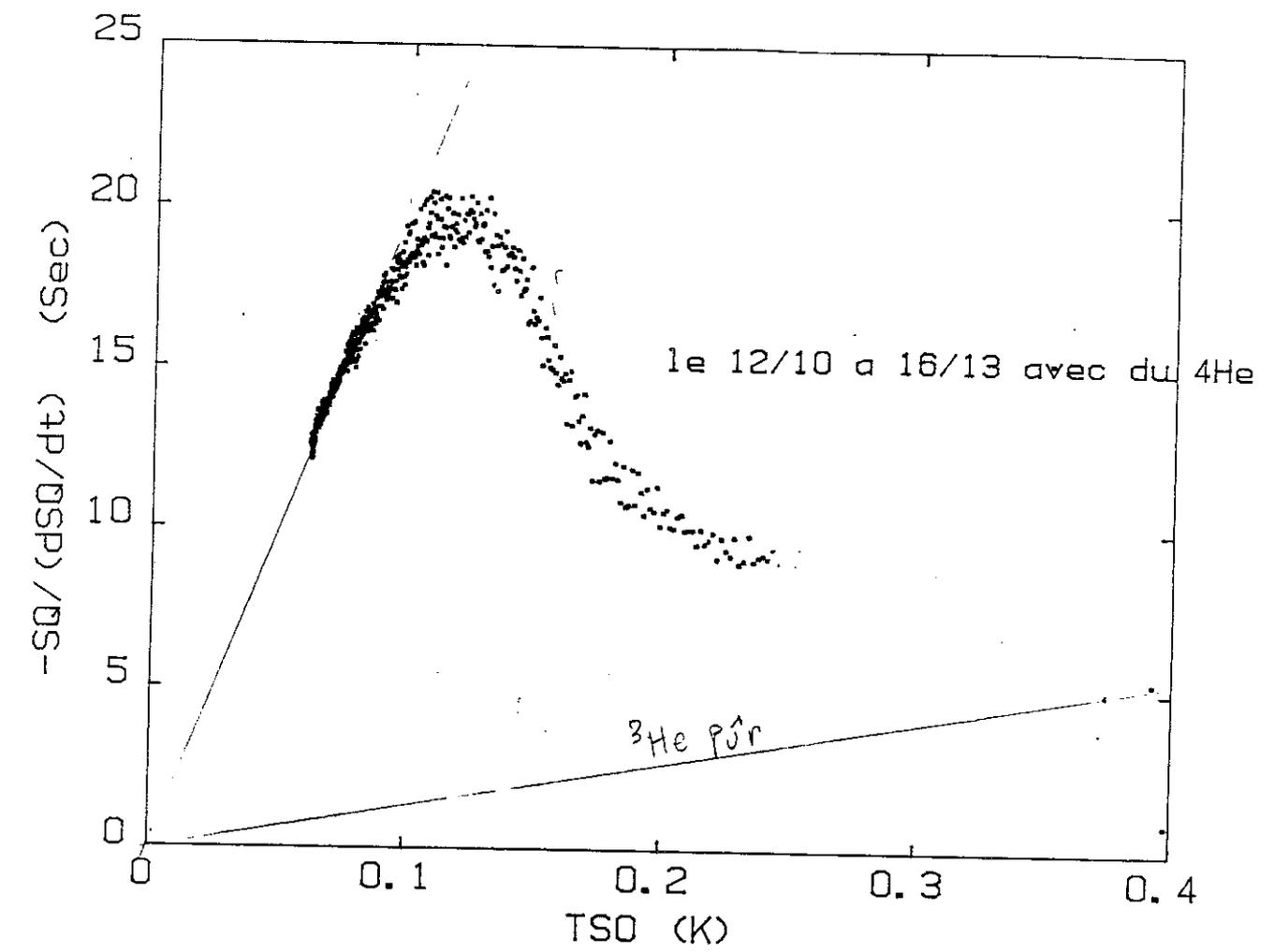


Fig VIII-8: Valeur instantanée du T_1 pour deux decompressions du solide (^3He et ^4He), porté en fonction de la température du bloc d'argent.

4) Relaxations avec du ^4He

Tout d'abord, citons les décompressions que nous avons faites en chauffant la cellule pour l'empêcher de se refroidir. Nous avons ainsi fait deux expériences où la température ne passe pas au-dessous de 0,28 K ; température atteinte environ 5 s après la fin de la fusion.

Dans ce cas, la relaxation apparaît comme purement exponentielle. Si nous évaluons la valeur instantanée de $\frac{-SQ}{\left(\frac{dSQ}{dt}\right)}$, cette quantité atteint, dès $t \approx 4$ s, une valeur

fixe, pour l'ensemble de la décompression : $T_1 = 8 \text{ s} \pm 1$. Ce fait implique plusieurs conséquences :

- l'analyse en terme de $\frac{-SQ}{\left(\frac{dSQ}{dt}\right)}$ est valable pour les temps supérieurs à 4 s,
- les variations de T_1 obtenues lorsqu'on laisse la température évoluer sont bien dues à la dépendance de T_1 avec T ,
- à température fixe (0,28 K), la relaxation est exponentielle sur toute la gamme de polarisation que nous explorons ($m \leq 0,3$).

Avec cette même couverture d' ^4He , nous avons effectué plusieurs décompressions où la température évoluait librement. Les valeurs instantanées de T_1 pour ces décompressions ont un comportement assez singulier en fonction de la température, qui est reporté sur les figures VIII-7 a) et b).

Un maximum de T_1 semble être présent autour de $T = 0,1$ K ou $T_1 = 17 \text{ s} \pm 1$.

Au-dessus de 0,1 K, T_1 diminue très notablement, pour atteindre 8 s à 0,3 K, valeur d'ailleurs obtenue lors des relaxations isothermes.

Au-dessous de 0,1 K, T_1 semble rattraper un comportement où T_1 est proportionnel à T : $\frac{T_1}{T} \approx 170 \text{ s/K}$. Cette valeur est plus de dix fois supérieure à celle obtenue avec du ^3He pur.

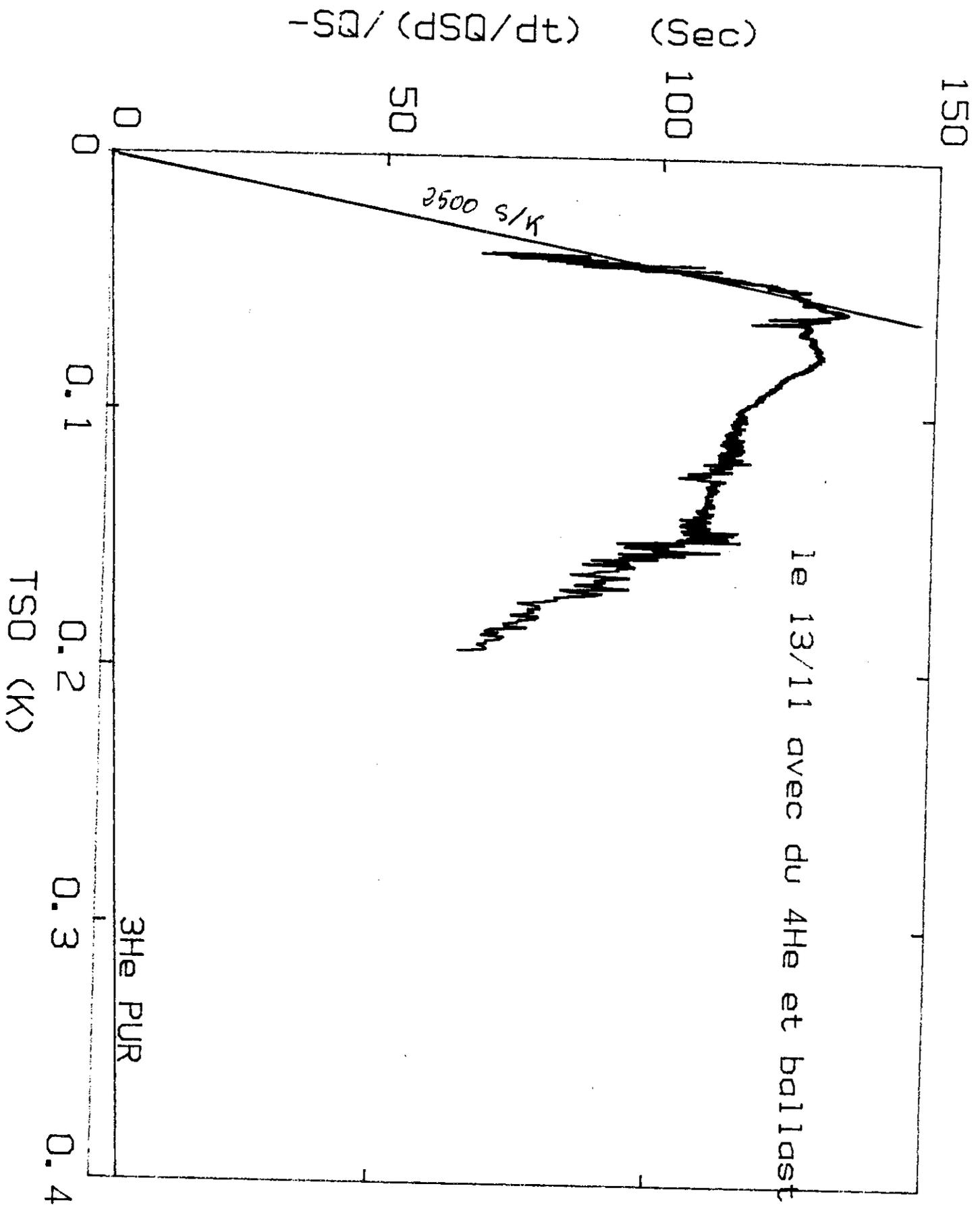


Fig VIII-9: Valeur instantanée du T_1 pour une décompression du solide (^3He et plus de ^4He).

Une fois encore, nous avons constaté que ce comportement de T_1 est tout à fait semblable à celui obtenu par Schuhl sur DLX 6000, en présence d' ^4He , et qu'il a également des caractères communs avec celui observé par Godfrin et al. sur divers substrats, bien que dans son cas, le maximum de T_1 soit rejeté beaucoup plus bas en température, aux alentours de 20 mK.

Signalons enfin, que pour cette série d'expériences, il est apparu que, au fil des jours, ou plutôt des décompressions, une tendance à l'accélération de la relaxation est apparue très nettement. Par exemple, notre dernière décompression (d'une série de 9) a conduit à des T_1 tous inférieurs à 13 s, la plus grande partie de la relaxation ayant lieu avec $T_1 \leq 10$ s. Vers les plus basses températures, les valeurs de T_1 pour cette décompression semblent vouloir se rapprocher de celles obtenues initialement :

$$\frac{T_1}{T} = 170 \text{ s/K (voir figure).}$$

Enfin, avec la dernière quantité d' ^4He adsorbée, nous avons obtenu des T_1 de l'ordre de 100 s. Dans ce cadre, la dérivée du SQUID par rapport au temps est très faible, et est donc difficile à évaluer avec une bonne précision relative, c'est-à-dire qu'un "bruit" important est présent dans la quantité $\frac{-SQ}{\left(\frac{dSQ}{dt}\right)}$.

Cependant, si on fait la même analyse que pour les autres expériences que nous avons décrites, des tendances très comparables sont obtenues pour le comportement de T_1 en fonction de T : un large maximum de T_1 se développe autour de $T = 80$ mK ou T_1 atteint des valeurs de l'ordre de 125 s.

Aux températures supérieures, T_1 diminue à environ 50 % de cette valeur, pour $T \approx 0,2$ K, voir fig. VIII-8.

Au-dessous, une rapide décroissance de T_1 semble à nouveau présente. Si on suppose que $T_1 \propto T$ pour $T \leq 80$ mK, les valeurs obtenues conduisent à $\frac{T_1}{T} = 2500$ s/K. Cette grandeur doit être comparée à $\frac{T_1}{T} = 13$ s/K pour ^3He pur, et 170 s/K pour l'autre quantité d' ^4He .

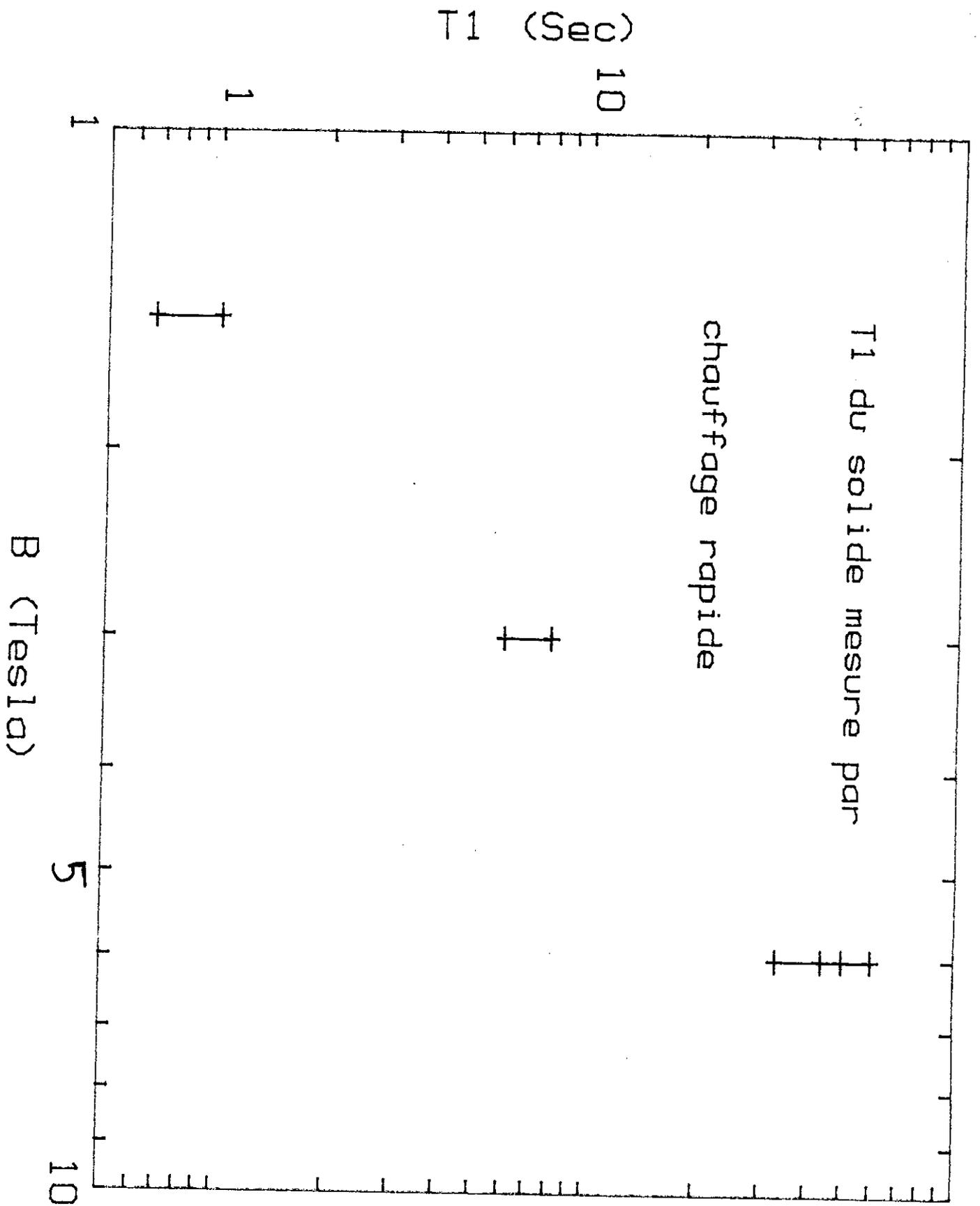


Fig VIII-10: T_1 du solide mesuré par chauffage rapide à différents champs appliqués.

5) Variations des T_1 avec le champ magnétique

Nous avons effectué des décompressions sur ^3He pur, et en présence d' ^4He à 1,5 et 3 Tesla, en plus des résultats déjà présentés à 6,5 Tesla.

Je ne souhaite pas rentrer dans une description détaillée de ces résultats. Je noterai cependant notre observation d'un net raccourcissement de T_1 pour ^3He pur : 1,8 s à 0,3 K et 3 Tesla et ≈ 1 s à 1,5 Tesla. La fiabilité de ces résultats est bien sur rendue douteuse par :

- a) le fait que T_1 devient très proche de τ_p , temps de relaxation de la pression,
- b) le T_1 dans le solide est considérablement diminué (voir figure VIII-9), puisqu'il atteint 0,7 s à 1,5 Tesla au lieu de 50 s à 6 Tesla.

En présence d' ^4He , cette tendance au raccourcissement de T_1 aux bas champs est beaucoup moins importante. Par exemple, les valeurs de T_1/T pour $T \leq 0,15$ K varient de moins de 20 % de 1,5 à 6,35 Tesla. Ce dernier point est à mon avis original, et devrait susciter une réflexion sur les résultats obtenus par Schuhl et Chapellier en présence d' ^4He .

6) Conclusions

Nos observations de la relaxation de la polarisation nucléaire dans la poudre d'argent frittée font apparaître plusieurs points très importants.

- A température fixe, la relaxation est exponentielle.

- Si le T_1 instantané est porté en fonction de la température, nous obtenons des comportements tout à fait comparables à ceux obtenus sur des substrats très différents, par des méthodes proches de l'équilibre. Cette conclusion est valable aussi bien pour l' ^3He pur, qu'en présence d' ^4He , où des augmentations de T_1 supérieures à 100 sont obtenues. En grandeur absolue, les T_1 semblent, à surface égale, nettement plus courts pour des substrats métalliques [H. Godfrin pour le Pt, et nos résultats], que pour les substrats isolants [H. Godfrin et A. Schuhl]. Les causes de ces effets particuliers aux poudres métalliques ne sont pas, à notre avis, comprises.

- Des valeurs très raisonnables de T_1 étant accessibles facilement dans les poudres, il apparaît tout à fait possible de faire des expériences sur ^3He polarisé au-dessous de 0,1 ou même 0,05 K. De notre point de vue, la mesure des relaxations d'énergie nous semble prioritaire. Les valeurs très variables des T_1 accessibles, nous semblent un point extrêmement favorable, qui peut être utilisé comme paramètre de contrôle pour vérifier la validité d'éventuels effets inattendus. Par exemple, une telle opportunité aurait été très utile lors de nos mesures sur l'abaissement de la pression de fusion du ^3He liquide polarisé.

Plusieurs points nous semble devoir encore être explorés :

* Possibilités d'utilisation de poudres d'argent mieux caractérisées du point de vue de la propreté,

* Utilisation d'autres gaz rares que ^4He pour enduire les surfaces métalliques (Argon, hydrogène) [94,36].

Ce dernier point nous semble important, si l'on veut éviter :

- le risque de désorption d' ^4He lors de la solidification, qui pourrait dégager des enthalpies de réabsorption tout à fait notables, lors de la fusion,

- la présence de mélanges $^3\text{He}/^4\text{He}$ dans les couches liquides adsorbées, dont le comportement est reconnu comme fort complexe [69] et dont l'influence sur la relaxation de la polarisation n'est certainement pas entièrement comprise.

CONCLUSIONS

Grâce à notre analyse de la morphologie de l'interface liquide solide lors de la fusion en présence de polarisation [Chapitre I], nous appuyons nos conclusions sur le comportement métamagnétique du ^3He liquide sur des bases fermes. La situation envisagée initialement par Castaing et Nozières [Castaing, Nozières, 1979] est bien celle qui est réalisée dans nos expériences sur l'abaissement de la pression de fusion.

Par ailleurs, nous avons montré [Chapitre IV] que nos résultats sur la vitesse du son dans l' ^3He liquide polarisé ne sont nullement incompatibles avec une tendance métamagnétique du liquide, contrairement à ce que nous avons conclu précédemment [Annexe III]. Nous avons alors envisagé la possibilité d'étudier le comportement magnétique du ^3He polarisé par la mesure de la relaxation d'énergie, dans la région de forte dégénérescence. Nous avons montré que ces expériences sont réalisables, puisque nous avons obtenu du ^3He liquide polarisé au dessous de 50 mK [Chapitre VIII]. Cette expérience définitive est d'ailleurs en cours de réalisation.

Dans le déroulement de ce travail, nous avons également étudié certaines propriétés magnétoélastiques de deux systèmes à fermions lourds, présentant des caractères métamagnétiques. Nous avons montré que l'ensemble de ces propriétés pouvaient être prédites par une approche phénoménologique ou intervient une unique échelle de champ magnétique, pour l'aimantation sous pression de ces composés. Cette analyse est très largement confrontée avec des résultats expérimentaux originaux qui sont présentés dans ce mémoire [Chapitre II et III].

ANNEXE I

Dans l'étude des propriétés magnétoélastiques des fermions lourds, j'ai utilisé une méthode d'optimisation de paramètres, reliant entre elles diverses quantités mesurées dans des expériences très différentes. Il s'agit essentiellement du meilleur choix, par exemple de valeurs numériques pour $\left(\frac{\partial H_c}{H_c \partial P}\right)$; $\left(\frac{\partial^2 H_c}{H_c \partial P^2}\right)$; etc...

Cette technique n'est sûrement pas originale, mais vu l'intense utilisation que j'en ai faite, il me semble utile d'en préciser le fonctionnement opératoire exact, tel qu'on peut l'utiliser en pratique.

Position du problème

Il s'agit d'une généralisation évidente de "fits" type régression polynomiale.

Soit un modèle qui indique qu'une certaine quantité Y mesurable par ailleurs, doit s'exprimer comme combinaisons linéaires de certaines fonctions $f_j(x)$ de x, paramètre extérieur (champ magnétique, pression, etc...).

Idéalement, on aurait pour des couples mesuré (x_i, y_i) :

$$y_i = \sum_1 a_j f_j(x_i)$$

* Pour une série de mesures (x_i, y_i) , on s'attend à ce que les valeurs réelles des a_j soient celles ou l'erreur quadratique moyenne

$$ER = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (y_i - a_j f_j(x_i))^2 \text{ est minimum}$$

* Par ailleurs, la barre d'erreur (hyper volume dans l'espace des a_j), est vraisemblablement de l'ordre du volume où ER est plus petit que 2 fois sa valeur minimum.

Ces deux critères définissent pour chaque série de mesure, les meilleurs nombres a_j et les barres d'erreur associées.

Les meilleurs a_j sont solutions de P équations :

$$\left(\frac{\partial ER}{\partial a_j}\right)_{a_q} = 0 = \frac{2}{N} \sum_i (\sum_k h_{ik} f_k(x_i) - y_i) f_j(x_i)$$

Soit donc $F_{ij} = \langle f_i(x_1) f_j(x_1) \rangle_1$
 et $Y_j = \langle f_j(x_1) Y_1 \rangle_1$

Les a_j sont solutions de : $Y_j = F_{ji} a_i^\circ$

Autour de ce point a°_j , on peut écrire $a_i = a_i^\circ + \delta_i$ et

$$\begin{aligned} ER &= \frac{1}{N} \sum (a_j^\circ + \delta_j) f_j^i - y_i)^2 \\ &= [Y_2 - a_j^\circ Y_j] + \delta_i \delta_j F_{ij} \\ \text{ou } Y_2 &= \frac{1}{N} \sum_i y_i^2 \\ Y_1 &= \frac{1}{N} \sum_i y_i \end{aligned}$$

On trouve donc l'erreur quadratique minimum pour $\delta_i = 0$

$$\begin{aligned} E\phi &= Y_2 - a_j^\circ Y_j \\ \text{et } ER &= E\phi + \delta_i \delta_j F_{ij} \end{aligned}$$

à ce stade, il est intéressant de définir une erreur quadratique relative minimum pour la série de mesure envisagées.

$$\rightarrow \varepsilon = \sqrt{\frac{E\phi}{Y_2 - Y_1^2}}$$

ε est la précision relative du modèle pour l'amplitude de variation de Y . Si la matrice F_{ij} est diagonalisée, on trouve pour chaque direction propre P , une barre d'erreur δ_p :

$$E\phi = F_{pp} (\delta_p)^2 ; \text{ i.e. : } \delta_p \approx \sqrt{\frac{E\phi}{F_{pp}}}$$

Pour schématiser qu'elle paraisse, cette analyse en terme de directions propres de F_{ij} est importante, car bien sûr, suivant la direction envisagée, les valeurs propres F_{pp} sont en général très différentes (en tout cas, pour tous les sujets traités au chapitre III).

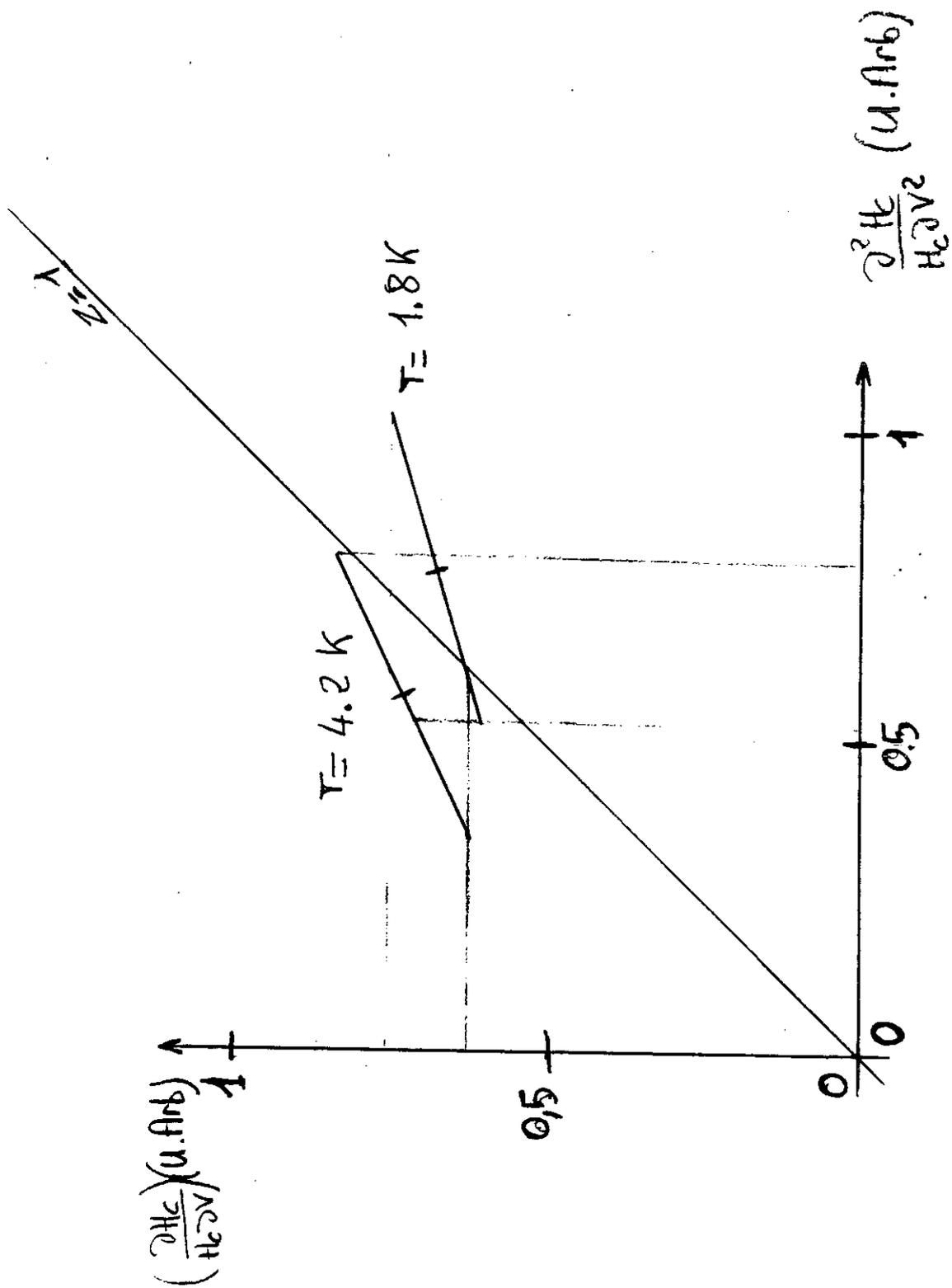


Fig AI-1: Barres d'erreur à 4.2K ET 1.8K dans le choix des paramètres reliant la magnétostriction et la vitesse du son dans UPt₃. (Voir Chap.III)

Par exemple, dans le cas de deux paramètres a_1 et a_2 , la barre d'erreur est une ellipse dans l'espace (a_1, a_2) qui peut être très allongée le long d'un de ses axes et très étroite dans l'autre. Dans un tel cas, la définition des barres d'erreurs dans les directions $(1,0)$ et $(0,1)$ est tout à fait inopérante, puisqu'en fait, une certaine valeur de $a_1 + \beta a_2$ est très bien définie, alors que les valeurs de $a_1 - \frac{a_2}{\beta}$ est très mal connue. Dans tous les cas pratiques que j'ai étudiés sur CeRu_2Si_2 et UPt_3 , ces directions n'étaient pas des directions type $(1,0)$ et $(0,1)$. Ce point est illustré sur la fig. A-I, où j'ai porté dans l'espace $\left(\frac{V^2 \partial^2 H_c}{H_c \partial V^2}, \frac{V \partial H_c}{H_c \partial V}\right)$ les valeurs et les barres d'erreurs pour les fits à 1,8 K et 4,2 K de la vitesse du son en fonction de la magnétostriction.

On constate que les ellipses d'erreurs à 1,8 K et 4,2 K n'ont aucun point commun, alors que leurs projections dans les directions simples $(1,0)$ et $(0,1)$ se chevauchent. Ceci a pour triste conséquence (!), le fait que, malgré les barres d'erreurs annoncées dans ces directions simples qui sembleraient devoir autoriser un "fit" correct des deux températures simultanément, ce fit commun est en fait impossible.

En résumé

Les opérations pratiques à effectuer sont :

$$1^\circ) \text{ Calculer } \quad Y_j = \frac{1}{N} \sum_1 g_i f_j(x_i)$$

$$F_{ij} = \frac{1}{N} \sum_1 g_i f_j(x_i) f_j(x_i)$$

$$Y_2 = \frac{1}{N} \sum_1 y_1^2$$

2°) Trouver le vecteur A_j tel que :

$$Y_i = F_{ij} A_j$$

et calculer l'erreur : $E\phi = Y_2 - Y_j A_j$

3°) * Trouver les directions propres P et les valeurs propres f_p de la forme $F_{ij} \delta_i \delta_j$

* En déduire les erreurs dans les directions P :

$$\delta_P = \sqrt{E\phi/f_P}$$

Les pas 2°) et 3°) pouvant être effectués dans l'ordre indiqué, ou bien en diagonalisant d'abord F_{ij} , ce qui évite d'inverser F_{ij} .

En conclusion

Ce type de calcul est très facile de mettre en œuvre, pour relier entre eux des résultats aussi différents que l'aimantation de CeRu_2Si_2 et la vitesse du son ou la magnétostriction et permet une comparaison très rapide entre le meilleur choix trouvé des paramètres A_j , avec des valeurs connues par ailleurs (susceptibilité sous pression).

Il ne prend tout son intérêt que si on calcule réellement les directions principales d'erreur. Dans le cas contraire, on risque de sur ou sous évaluer totalement les-dites barres d'erreurs sur les A_j .



ANNEXE II

Filtre numérique de la sortie du SQUID

Calcul de la dérivée $\frac{dS}{dt}$

La technique présentée dans cet appendice, s'est avérée très efficace, souple d'emploi, et facile à mettre en oeuvre.

Elle repose sur une régression linéaire des valeurs mesurées en fonction de la date de mesure, mais avec des poids qui vieillissent de façon exponentielle : $e^{-T_i/\tau}$.

Ses principaux avantages sont liés au fait que l'information du "passé" est entièrement contenue dans quelques produits de corrélation entre la quantité mesurée SQ et le temps T_i .

* A tout moment on peut changer la valeur de τ , sans perdre l'information déjà existante.

* L'effet de retard, associé à l'accumulation exponentielle des mesures, est en grande partie éliminé, puisque l'on évalue également la date moyenne de la mesure.

1) Principe

On veut calculer la valeur moyenne, au point N , d'une quantité q_p mesurée depuis $p = 0$. q_p peut être n'importe quel produit de corrélation entre quantités mesurées.

Soit $K = \exp - \frac{1}{\tau}$, ou τ est la constante de temps d'intégration mesurée en période de mesure (ici 0,07 s),

$$\text{soit } Q_N = \sum_{i \geq 0} K^i q_{N-i} \text{ et } W_N = \sum_{i \geq 0} K^i$$

Q_N est la somme pondérée des mesures q_p , alors que W_N est la somme des poids.

L'intérêt de ces formules est que Q_N (et W_N) ne dépend que de Q_{N-1} , K et q_N (W_{N-1} et K).

$$Q_N = K Q_{N-1} + q_N ; W_N = K W_{N-1} + 1$$

Si K n'est jamais changé, alors $W_N \rightarrow \frac{1}{1-K}$, mais l'évaluation continue de W_N autorise, sans erreur, à changer à tout moment la valeur de K, avant d'appliquer ces formules de récurrence.

2) Régression

On utilise cette méthode pour moyenniser le SQUID et évaluer sa dérivée par rapport au temps.

Pour un ensemble de points (X_i, Y_i) la meilleure droite $Y = AX + B$ est donnée par : $A = \frac{\overline{XY} - \bar{X} \cdot \bar{Y}}{\bar{X}^2 - \bar{X}\bar{X}}$; et $\bar{Y} = A\bar{X} + B$.

Ici, pour éviter les dérives numériques liées aux différences entre nombres grands, il vaut mieux évaluer X_p comme étant la date du point p par rapport au point N actuel : $X_p = (N-P)$.

On a besoin alors de calculer les quantités :

Nom	Valeur	Récurrence
$(XY)_N$	$\sum_{i \geq 0} K^i Y_{N-i}$	$K * [(XY)_{N-1} + (Y1)_{N-1}]$
$(Y1)_N$	$\sum_{i \geq 0} K^i Y_{N-i}$	$K * (Y1)_{N-1} + SQ_N$
$(X2)_N$	$\sum_{i \geq 0} K^i i^2$	$K * [(X2)_{N-1} + 2(X1)_{N-1} + (WE)_{N-1}]$
$(X1)_N$	$\sum_{i \geq 0} K^i i$	$K * [(X1)_{N-1} + (WE)_{N-1}]$
$(WE)_N$	$\sum_{i \geq 0} K^i$	$K * WE + 1$

Dans le déroulement du programme, ces opérations doivent nécessairement se présenter dans l'ordre ci-dessus.

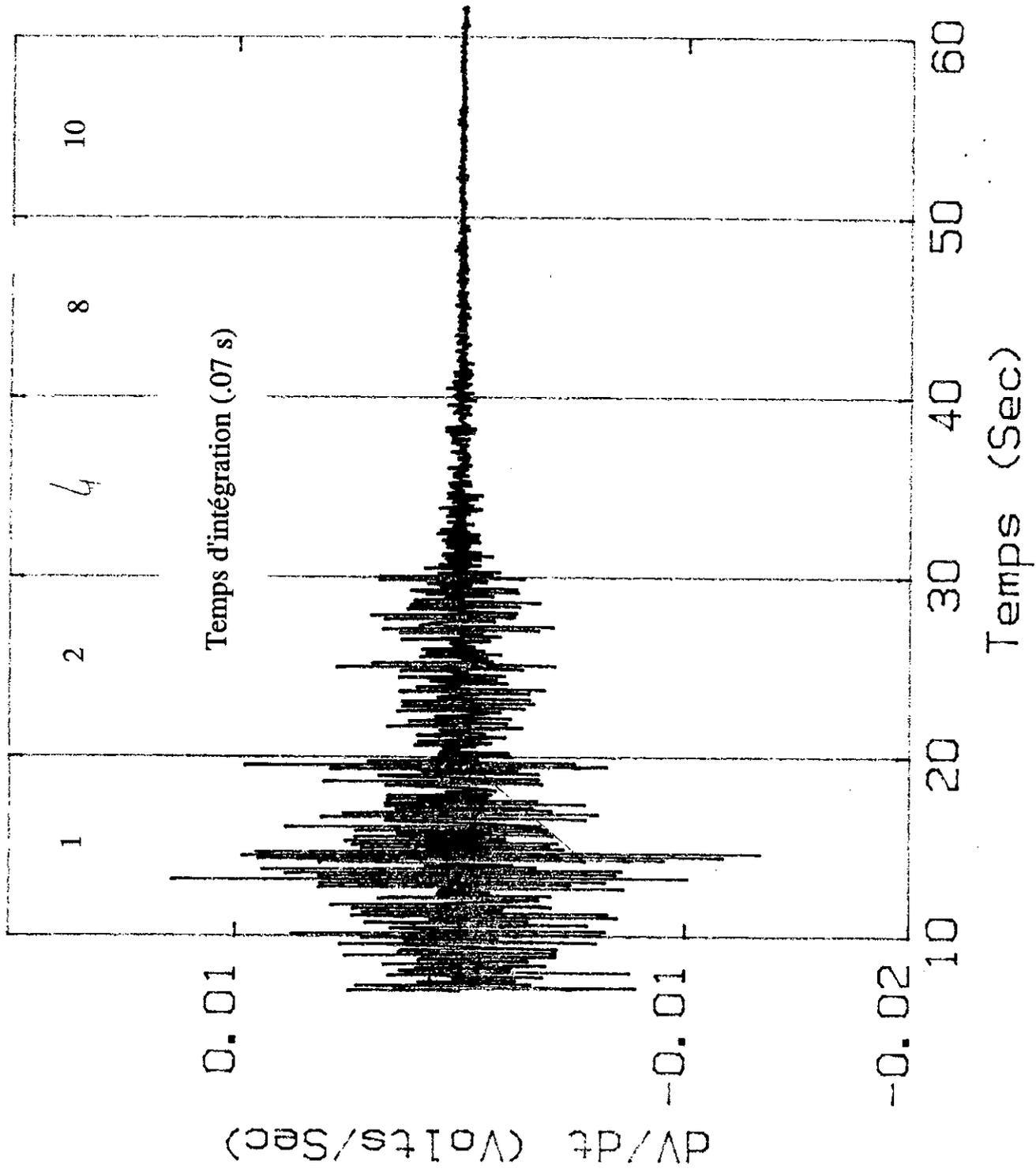


Fig AII-2: Dérivée du SQUID par rapport au temps pour divers temps d'intégration

A chaque point, on peut alors évaluer :

- la valeur du SQUID :

$$Y = \frac{Y1}{WE}$$

- la dérivée du SQUID par rapport au temps (unité (= Volt/point)) :

$$DD = \frac{(XY - \frac{X1 * Y1}{WE})}{(X2 - \frac{X1 * X1}{WE})}$$

- et la date (en unité du point de mesure) :

$$X = N - \frac{X1}{WE}$$

Sous cette forme, ce lissage est fait sur les données stockées lors de chaque décompression, au moment de faire les dessins. Seuls les datas non filtrés sont stockés sur disque.

Le temps de calcul pour chaque point est très faible, puisqu'il s'agit de 19 opérations d'arithmétique élémentaire. Avec un "Apple", pour 900 points de mesure, il est inférieur à 8 secondes. Nous ne l'avons jamais fait en temps réel, mais il faut bien noter qu'il s'y prête particulièrement bien, puisqu'il est totalement séquentiel.

Pour illustrer l'efficacité du processus de lissage, j'ai porté sur la fig. A-II, la dérivée $\frac{dV}{dt}$ au cours du temps (50 s) pour un fichier où le SQUID est stable, avec des temps de filtrage de 0,07 s ; 0,14 s ; 0,28 s ; 0,42 s ; 0,7 s ; (1 Point ; 2 ; 4 ; 8 ; 10).

Rappelons encore que 1V = 10 % de polarisation !

ANNEXE III

Sound Velocity in Highly Polarized ^3He .

G. BONFAIT, L. PUECH, W.P. HALPERIN(*) and B. CASTAING

*Centre de Recherches sur les Très Basses Températures,
Laboratoire Associé à l'Université Scientifique, Technologique et Médicale
de Grenoble, C.N.R.S., BP 166 X, 38042 Grenoble-Cédex, France*

(received 19 August 1986; accepted in final form 31 October 1986)

PACS. 67.50. – Fermi fluids; liquid helium 3-4 mixtures.

Abstract. – By rapid complete melting of polarized solid, we have obtained liquid ^3He in an effective magnetic field of 130 T. The sound velocity has been measured at various pressures in this highly polarized liquid. The main result is a linear dependence of this velocity *vs.* the square of the polarization up to 30%. We deduce an upper limit for a deviation from this law.

Following the idea of Castaing and Nozières[1] and its experimental confirmation[2], highly polarized liquid ^3He can be obtained in a transient state by rapid melting of polarized solid. The magnetization one can achieve would need, in an equilibrium situation, a magnetic field greater than 100 T.

The aim of experimental and theoretical work[1,3-7] on this unusual liquid is to determine the behaviour of the magnetization *m vs.* the magnetic field, or, as a first step, to look for a deviation from the *m*-square laws which govern the properties of liquid ^3He at low magnetic fields[1].

Recent experimental studies on this liquid, performed on the melting curve [8, 9], seem to show a metamagnetic transition[10]. However, the interpretation is based on a theoretical model for the structure of the liquid-solid interface[11, 12] and may be strongly dependent on its velocity during the melting process[12].

In this letter, we report a study of polarized liquid independent of the properties of the solid or of the interface: we melt *all* the solid. The quantity measured is the first sound velocity *c vs.* the magnetization. Although the sound velocity is not very sensitive to the spin polarization, it can be measured with extremely good resolution and furthermore has a response time very short compared to the time for relaxation of the polarization.

(*) Permanent address: Northwestern University, Dept. of Physics and Astronomy, Evanston, IL 60201, USA.

Experimental set-up.

The cell is an epoxy Pomeranchuk chamber—the same body used in previous experiments [8]. Inside we have located a capacitive pressure gauge, two heaters and two thermometers, one just below the heat exchanger, the other one at the bottom of the cell. In the middle was placed an ultrasonic device consisting of two quartz transducers ($\varnothing = 8$ mm) of fundamental frequency 10.200 MHz epoxied to a cylindrical-shaped piece of machinable ceramic [13] that served as a spacer. Its outer and inner diameters are 7 mm and 5 mm with a length of 10 mm. The diameter of the electrodes deposited on the transducers is 3 mm. To avoid mechanical strain on this device during fast decompression, two large holes were made in this spacer. The change Δc of the velocity was obtained by measuring the quality factor Q of the ultrasonic cavity with a continuous-wave method [14]. The interference that takes place in the volume between the two transducers is similar to that of a Perot-Fabry interferometer. At constant frequency, due to the rather high attenuation, the output signal of our Q -meter is a sinusoidal (under our experimental conditions) function of the number N of wave-lengths in the cavity. We worked on the fifth harmonic of the transducer ($\nu = 51.480$ MHz; $N \approx 2000$) giving a sensitivity of better than 1/10 of a period between 12 and 30 bar at 200 mK.

The sound velocity of the liquid ^3He is strongly dependent on pressure ($(1/c)(\partial c/\partial p) = 10^{-2}/\text{bar}$). Thus we need to measure it with an accuracy of 1 millibar.

This is done with three different gauges: a capacitive one in the cell and, at room temperature, a piezoresistive one and a high-precision Bourdon gauge.

To measure the magnetization, we integrate during a frequency sweep (0.6 s) the RF adsorption signal of the ^3He magnetic resonance using a saddle coil glued around the ultrasonic cavity. The absolute value was obtained by normalization to a measurement of magnetization at very low temperature (6 mK) and this was checked by comparison with the $1/T$ dependence of the solid magnetization. In the following we define m to be the relative polarization [$m = (N_{\uparrow} - N_{\downarrow}) / (N_{\uparrow} + N_{\downarrow})$].

Experimental procedure.

The polarized solid was prepared as described in a previous experiment [8] in an external magnetic field of 6.41 T (Larmor frequency $\nu_0 = 208.5$ MHz). We point out that we solidify at constant temperature to avoid possible inhomogeneity of magnetization. Before decompression, the cell is full of homogeneous polarized solid ($m \approx 40\%$).

The ^4He pressure was released to zero and the ^3He pressure decreased to its chosen final value in less than one second by opening valves at room temperature. This produced polarized liquid ($m \approx 30\%$) at around 200 mK. The relaxation time was found to be 2 min at 26 bar, increasing for lower final pressures [15]. During this relaxation we measured pressure, temperature, magnetization and change in sound velocity. When the equilibrium polarization value was reached ($m \approx 1.7\%$), we varied the pressure, recording the change of the output signal of the ultrasonic detection. With this calibration we were able to measure $(1/c)(\partial c/\partial p)$ with a relative precision of 0.5% (fig. 1). The evolution of $\Delta c/c$ with the magnetization was then obtained by subtracting from the total change of c during the relaxation that due to the pressure variations. The latter could be quite significant.

The typical behaviour of the important thermodynamic parameters *vs.* m^2 is shown in fig. 2. Our results for the change of $\Delta c/c$ at four different pressures is presented in fig. 3. The final temperature was typically 200 mK.

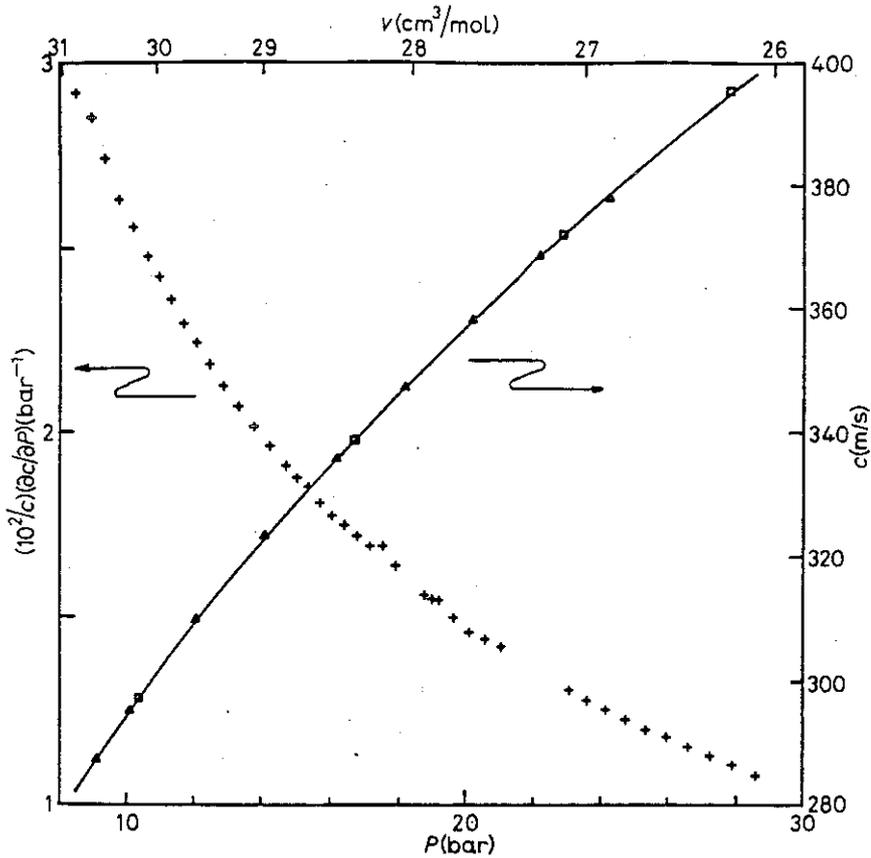


Fig. 1 – Relative change of $c(+)$ and the corresponding calculated values c (full line) vs. the pressure and the molar volume, as measured in our experiment. Δ : sound velocity measured by ABRAHAM *et al.* and \square by ROACH *et al.* [16].

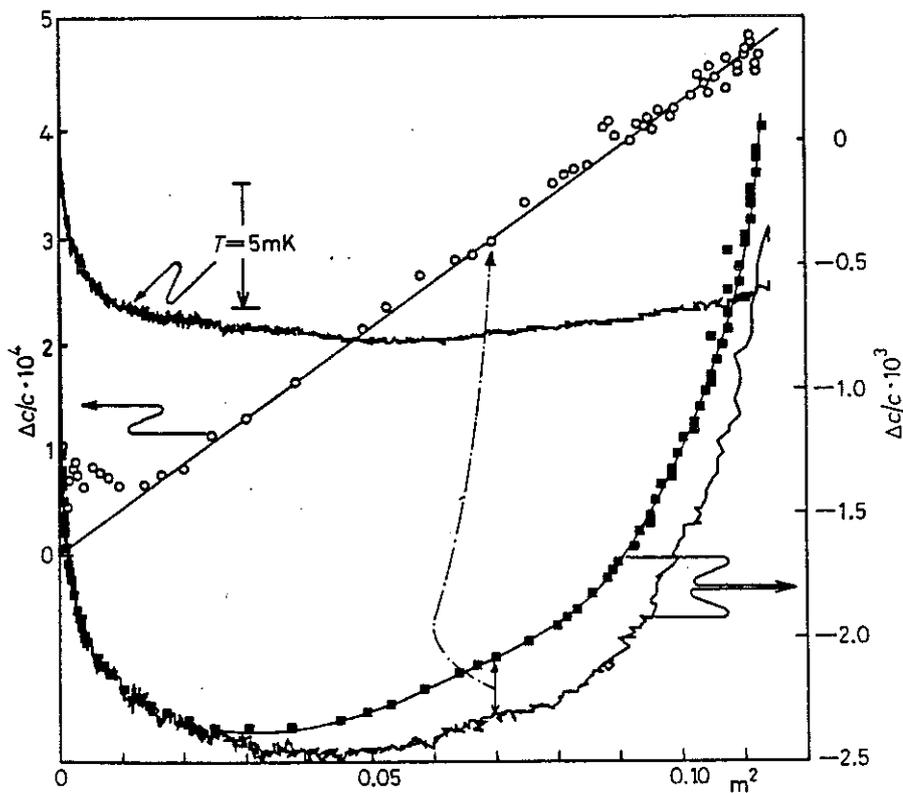


Fig. 2 – Relative change of c (\blacksquare) during the relaxation vs. m^2 and (lower solid line) the contribution due to the pressure change (right scale). \circ : contribution due to the polarization (left scale). *Upper solid line*: drift of the temperature (top thermometer). $T = 200$ mK, $P = 26.2$ bar.

One clear result, shown in fig. 3, is that the velocity c increases linearly with m^2 up to a polarization of 30%. At low polarization ($m^2 \leq 0.01$), a deviation to this law is clearly visible (see fig. 2, $P = 26.2$ bar). This effect can be attributed to a drift of 10 mK in the temperature which is very difficult to avoid after the decompression and is attributable to the extremely bad heat diffusivity in liquid ^3He at those temperatures. (The diffusion time is 10 min in the ultrasonic cavity; consequently a quantitative correction between the variables $\Delta c/c$ and T cannot be easily deduced and the data are presented in fig. 3 without correction.) To minimize this drift, we have heated the mixing chamber up to the final temperature of the cell in a period of 20 s following the decompression. We note that there is no change of $(1/c)(\partial c/\partial p)$ during such a temperature drift to within the precision of the experiment. We have made similar decompressions regulating the pressure during the relaxation to obtain directly $\Delta c/c$ due to the change of magnetization only. The results are the same but the extension in m^2 is smaller because of the loss of magnetization during the recovery time of the regulation (due to its m^2 dependence, the main change of $\Delta c/c$ occurs at high magnetization).

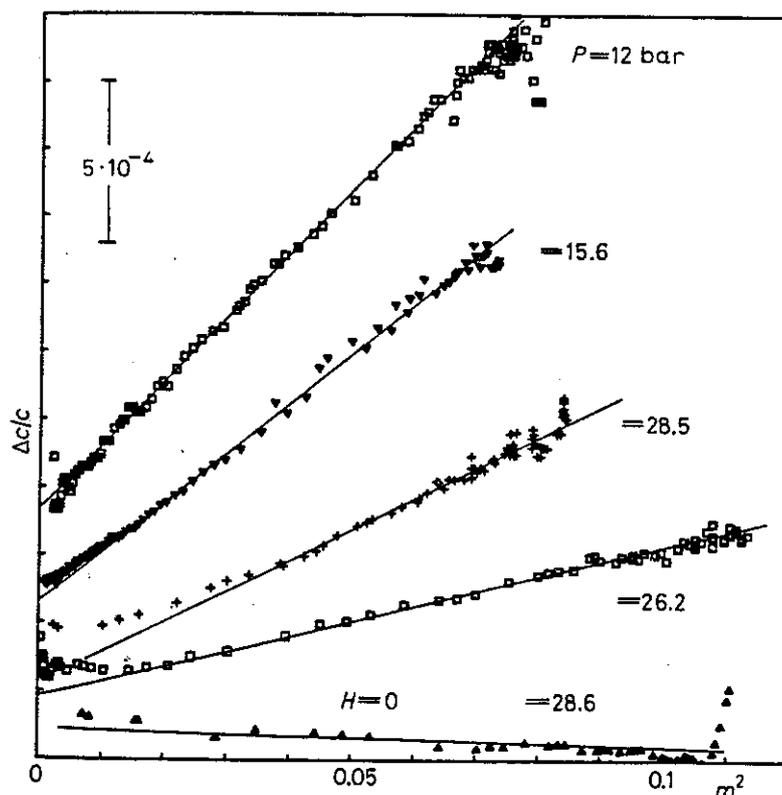


Fig. 3 - Relative variation (floating scale) of the sound velocity vs. m^2 for different pressures. Δ : decompression in zero magnetic field. In this case m^2 is to be considered as the elapsed time following decompression (see the text).

We have also performed decompressions in zero external field. The corresponding result is shown in fig. 3. The abscissa corresponds to a fictitious magnetization, expressing the elapsed time from the opening of the valves. (Then $m \approx 0.35 \exp[-t/T_1]$, $T_1 = 120$ s.) This curve checks the validity of our measurements ($\Delta c/c \approx 0$) in spite of difficult experimental conditions and possible errors at the beginning and at the end of the relaxation.

Comparison with theory

a) *Low magnetization.* In the linear regime $\partial E/\partial m^2 = RT_M/2$ ⁽¹⁾ is m independent. Using this relation and $c^2 = \partial P/\partial \rho|_s$, we obtain

$$\left. \frac{1}{c} \frac{\partial c}{\partial m^2} \right|_v = \frac{v^2}{4Mc^2} \left. \frac{\partial^2(RT_M)}{\partial v^2} \right|_s,$$

where v (or M) is the molar volume (or mass). Since we know $T_M(T)$ [17] and we measure the isentropic velocity, this second derivative must be expanded as

$$\left. \frac{1}{c} \frac{\partial c}{\partial m^2} \right|_v = \frac{v^2}{4Mc^2} \left. \frac{\partial^2(RT_M)}{\partial v^2} \right|_T + \frac{v^2}{2Mc^2} \frac{\alpha_p T}{\chi_T C v} \left. \frac{\partial}{\partial T} \right|_v \left. \frac{\partial(RT_M)}{\partial v} \right|_T + \frac{v^2}{4Mc^2} \left(\frac{\alpha_p T}{\chi_T C v} \right)^2 \left. \frac{\partial^2 RT_M}{\partial T^2} \right|_v, \quad (1)$$

where all of these values are available [16-18].

On the other hand, we measure the pressure instead of the molar volume, consequently another term arises:

$$\left. \frac{1}{c} \frac{\partial c}{\partial m^2} \right|_p = \left. \frac{1}{c} \frac{\partial c}{\partial m^2} \right|_v + \frac{1}{2} \frac{1}{c} \left. \frac{\partial c}{\partial p} \right|_T \left. \frac{\partial(RT_M)}{\partial v} \right|_T. \quad (2)$$

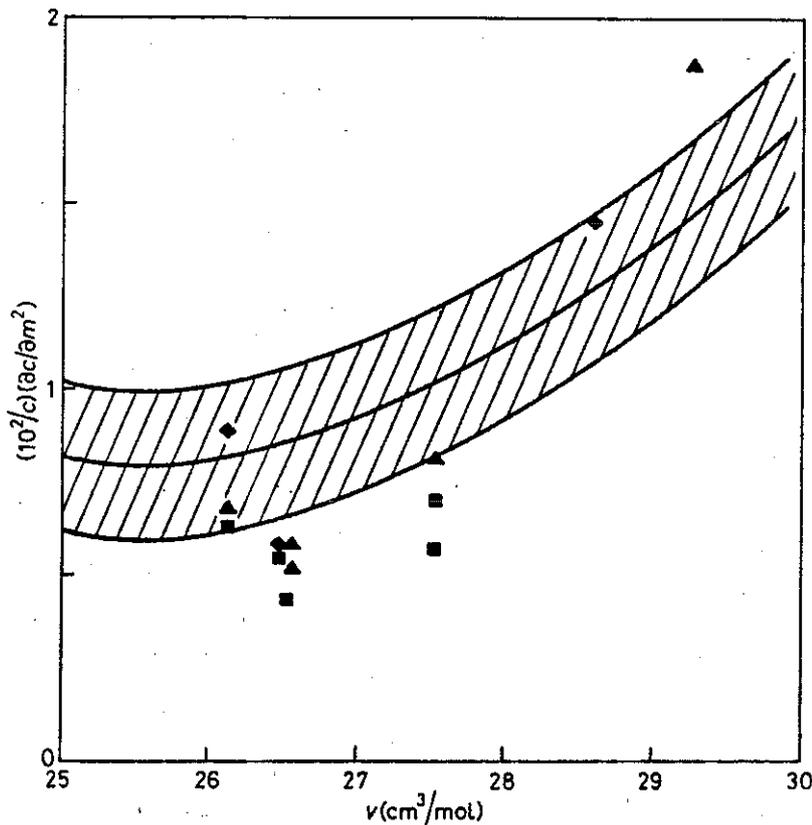


Fig. 4 - Experimental slope $(1/c) (\partial c/\partial m^2)$ vs. the molar volume: the different symbols stand for the three pressure sensors: ■ capacitive gauge, ▲ piezoresistive gauge, ◆ Bourdon gauge. The shaded area is what we estimate from the results of Ramm *et al.* [17] (see the text).

⁽¹⁾ Thereafter, T_M is defined as $\chi(T) = C/T_M$ where C is the Curie constant, $\chi(T)$ the magnetic susceptibility at T . In the units where m is dimensionless, H is expressed in units of J/mol. In the nonlinear regime RT_M must be replaced by H/m , where R is the universal gas constant.

From the magnetic-susceptibility values of Ramm *et al.* [17] there is no evidence for a second derivative of $T_M(v)$ with respect to v between 26 and 30 cm³/mol. This allows us to neglect the term proportional to this derivative in eq. (1) and we will assume as a first approximation that $T_M(v)$ is linear in v for our entire range of v .

The experimentally obtained slopes $(1/c)(dc/dm^2)|_p$ are shown in fig. 4 for different molar volumes and for the various pressure sensors. These results give an estimation for the accuracy of the measurement. It is known that the usual capacitive pressure gauge can have hysteretic behaviour for large pressure changes. This is indeed the case in our experiments in which we start from more than 34 bar and end as low as 12 bar.

In order to minimize the errors in pressure measurements, a precise comparison of the three gauges was found to be necessary. We also show in figure 4 the variation of $(1/c)(dc/dm^2)$ calculated from eq. (2) taking the second derivative to be zero (continuous line).

b) High magnetization. It is usual to expand the magnetic-field-dependent properties of ³He in a m -power series. In the case of the sound velocity, we obtain for the variation of c $(1/c)(dc/dm^2) = A + Bm^2$. Since no deviations from linearity of $\delta c/c$ vs. m^2 are detected in our results, we are able to give an upper limit for B which we believe to be systematically lower than A .

This new experimental assertion is difficult to compare with the available theories. Those in which the sound velocity was calculated from first principles or from microscopic theory [5,7] are restricted to full polarization. It is not feasible to extrapolate these predictions to our maximum polarization. BEAL-MONOD and DANIEL [3] have constructed a paramagnon development of H/m with temperature and small magnetization, but our final temperature seems much too high for the applicability of use of this expansion. In any event they predict a B -term smaller than the A -term.

Recently, a metamagnetic transition in liquid ³He was proposed by the Grenoble group [10]. As their experiment was performed at only one pressure and temperature (31 bar, 100 mK), it is not possible to deduce from those results a derivative with respect to the molar volume. In the present work no sign of a transitionlike effect appears in $(\Delta c/c)(m^2)$. This can be explained by two different arguments: i) In the metamagnetic phase where RT_M must be replaced by H/m in formula (2), the derivatives of H/m with respect to the molar volume do not change enough to be detected. For instance, this could be the case if the metamagnetism arose at constant m . ii) There could be a critical line for this (first order) transition and the present results might be in a region of the phase diagram where no metamagnetism appears.

Although it is not related to the specific study of polarized ³He, there is a problem with the second derivative of T_M with respect to the molar volume as was mentioned earlier. From the measurements of Ramm *et al.* [18], taking into account their errors bars, it is difficult to derive an unambiguous value of $\partial^2 T_M / \partial v^2$ at each molar volume. This is so much so that it is possible that its sign may change for smaller molar volumes although it is certainly negative at high molar volumes. Such a behaviour is used by STRINGARI [6] for calculations of the magnetic properties of liquid ³He and seems consistent with the microscopic calculations of Manousakis *et al.*: $|c(m=1) - c(m=0)|$ changes sign for $v \approx 29$ cm³/mol [5].

Our experimental results, in spite of rather large inaccuracy in $(1/c)(dc/dm^2)$, show a positive $\partial^2 T_M / \partial v^2$ near 29 cm³/mol and for smaller molar volumes a non-monotonic behaviour. The shaded area in fig. 4 is our estimation of the incertitude in $(1/c)(dc/dm^2)$ due to the possible second derivative of the susceptibility with respect to volume [17].

Conclusion.

We have measured the sound velocity in liquid ^3He polarized to more than 30%. This is the first direct measurement of a bulk thermodynamic property of this transient state. The good agreement of the low magnetization results with the susceptibility measurements experimentally confirms the validity of this method of polarization. We have obtained an upper bound for the deviation from the m^2 -law.

In our opinion, further progress in the study of polarized ^3He will require lower temperatures than those achieved in experiments performed to date.

* * *

One of us (WPH) would like to acknowledge support from the NSF DMR-83/8414.

REFERENCES

- [1] CASTAING B. and NOZIERES P., *J. Phys. (Paris)*, **40** (1979) 239.
- [2] SCHUMACHER G., THOULOZE D., CASTAING B., CHABRE Y., SEGRANSAN P. and JOFFRIN J., *J. Phys. (Paris) Lett.*, **40** (1979) L143; M. CHAPPELLIER, G. FROSSATI and F.B. RASMUSSEN, *Phys. Rev. Lett.*, **42** (1979) 904.
- [3] BEAL-MONOD M. T. and DANIEL E., *Phys. Rev. B*, **27**(7) (1983) 4467; BEAL-MONOD M. T., *Physica B*, **109-110** (1982) 1837.
- [4] VOLLHARDT D., *Rev. Mod. Phys.*, **56** (1) (1984) 99; BEDELL K. S. and SANCHEZ-CASTRO C., *Phys. Rev. Lett.*, **57** (1986) 859; QUADER K. F. and BEDELL K. S., *J. Low Temp. Phys.*, **58** (No. 11/2) (1985) 89; BEDELL K. S. and QUADER K. F., *Phys. Lett. A*, **96** (2) (1983) 91.
- [5] MANOUSAKIS E., FANTONI S. and PANDHARIPANDE U. R. and USMANI Q. N., *Phys. Rev. B*, **28** (7) (1983) 3770.
- [6] STRINGARI S., *Europhys. Lett.*, **2** (8) (1986) 639.
- [7] GLYDE H. R. and HERNANDI S.I., *Quantum Fluids and Solids Proceedings*, edited by E. D. ADAMS and G. G. IHAS (1983).
- [8] BONFAIT G., PUECH L., GREENBERG A. S., ESKA G., CASTAING G. and THOULOZE D., *Phys. Rev. Lett.* **53** (1984) 1092.
- [9] DUTTA A. and ARCHIE C. N., *Phys. Rev. Lett.* **55** (1985) 2949.
- [10] BONFAIT G., PUECH L., CASTAING B. and THOULOZE D., *Europhys. Lett.*, **1** (1986) 521.
- [11] BONFAIT G., CASTAING B., SCHUHL A. and CHAPPELLIER M., *J. Phys. Lett. (Paris)*, **46** (1985) L1073.
- [12] PUECH L., BONFAIT G. and CASTAING B., *J. Phys. (Paris)*, **47** (1986) 723.
- [13] MINNESOTA Rubber France, 5 rue Laure Fist, 92602 Asnières-Cédex, France.
- [14] SHIVARAM B. S., MEISEL M. W., SARMA B. L., HALPERIN W. P. and KETTERSON J. B., *J. Low Temp. Phys.*, **63**, 57 (1986); MEISEL M. W., Thesis Northwestern University, Evanston, IL (1983), unpublished.
- [15] THOULOZE D., BONFAIT G. and CHABRE Y., *J. Phys. (Paris) C7*, **41**, 111 (1980).
- [16] ABRAHAM B. M. and OSBORNE D. W., *J. Low Temp. Phys.*, **5**, 335 (1971); ROACH P. R., ECKSTEIN Y., MEISEL M. W. and ANIOLA-JEDRZEJEK L., *J. Low Temp. Phys.*, **52**, 433 (1983).
- [17] RAMM H., PEDRONI P., THOMSON J. R. and MEYER H., *J. Low Temp. Phys.*, **2**, 539 (1970).
- [18] GREYWALL D. S., *Phys. Rev. B*, **27** (5), 2747 (1983).

REFERENCES

^3He Normal

- [1] Wheatley J., Helium Liquids Academic Press (1975)
- [2] Greywall D.S., Busch P.A., J.L.T.P. **46**, 451 (1982)
- [3] Greywall D.S., Phys. Rev., **B27**, 2747 (1983)
- [4] Greywall D.S., Phys. Rev., **B29**, 4933 (1984)
- [5] Ramm H., Pedroni P., Thomson J.R., Meyer H., J.L.T.P., **2**, 359 (1970)
- [6] Abraham B.M., Osborne D.W., J.L.T.P., **5**, 335 (1979) Susceptibilité élastique

Superfluide

- [7] Osheroff D., Richardson R.C, Lee M.D., PRL **28**, 885 (1972)
Osheroff D., Gully W.J., Richardson R.C., Lee M.D., PRL **29**, 920 (1972)
- [8] Lawson D.T., Gully W.J., Goldstein S., Richardson R.C., Lee M.D., PRL **30**, 540 (1973)
- [9] Alvesalo T.A., Amfrigev Yu.D., Collan H.K., Loumasmaa O.V., Wennerström, PRL **30**, 962 (1973)
- [10] Paulson D.N., Johnson R.V. and Wheatley J.C., PRL **30**, 829 (1973) et Ref. 1
- [11] Anderson et Brinkman, Helium Liquids, Academic Press, (1975), Edité par Armitay JOM et Farquahr I.E.
- [12] Varoquaux, Avenel O., Varoquaux E., PRL **60**, 416 (1988)

^3He Normal et polarisé

- [13] Berk N.F., Schrieffer J.R., PRL **17**, 433 (1966)
- [14] Doniach S., Engelsberg S., PRL **17**, 750 (1966)
- [15] Beal Menod M.J., MA S.K., Fredkin D., PRL **20**, 929 (1968)
Beal Menod M.J., MAKI K., PRL **34**, 1461 (1975)
- [16] Beal Monod M.J., PRL **35**, 123 (1979)
- [17] Hubbard J., Proc. R. Soc. London, Ser **A276**, 238 (1963)
- [18] Gützviller M.C., PRL **10**, 159 (1963), Phys. Rev., **137** (1965)
- [19] Volhardt D., Rev. Mod. Phys., **56**, 99 (1984)
- [20] Volhardt D., Wölf P., Anderson P.W., Phys. Rev. B, **35**, 6703 (1987)
- [21] Bouchaud J.P., Lhuillier C., Jap. J. App. Phys., **26**, 221 (1987) [LT18] et à paraître

Schuhl, Chapellier, Vermeulen -

- [22] Lhuillier C., Lalöe F., J. de Physique, **40**, 239 (1979)
- [23] Castaing B., Nozières Ph., J. de Physique, **40**, 257 (1979)
- [24] Chapellier M., Frossati G., Rasmussen R.B., PRL **42**, 904 (1979)
- [25] Schuhmacher G., Thoulouze D., Castaing B., Chabre Y., Segramson P., Joffrin J., J. Phys. Lett. (Paris), **40**, 143 (1979)
- [26] Bonfait G., Puech L., Greenberg A.S., Eska G., Castaing B., Thoulouze D., PRL **53**, 1092 (1984)
- [27] Frossati G., LT18, Jap. J. App. Phys., **26-3** (1987)
- [28] Vermeulen G.A., Wiegers S.A.J., Kronembury C.C., Jochensen R. and Frossati G., can J. Phys., in press
- [29] Dutta A., Archie C.N., PRL **53**, 2949 (1985), courbe de fusion
- [31] Bonfait G., Castaing B., Schuhl A., Chapellier M., J. Physique Lett., **46**, L1073 (1985), "Scenario"
- [32] Puech L., Bonfait G. and Castaing B., J. de Phys. (Paris), **47**, 723 (1986)
- [33] Bonfait G., Puech L., Castaing B., Thoulouze D., Europhys. Lett., **1**, 521 (1986)
- [34] Nacher P.J., Leduc M., Trenec G., Laloë F., J. Physique Lett., **43**, L525 (1982)
- [35] Himbert M., Lefèvre-Sequin V., Nacher P.J., Dupont Roc, Leduc M., Lalöe F., J. Phys. Lett., **44**, L253 (1983)
- [36] Lefèvre-Sequin V., Nacher P.J., Brosssel J., Hardy W.N. et Lalöe F., J. Physique, **46**, 179 (1985)
- [37] Nacher P.J., Tastevin G., Leduc M., Crampton S.B. and Lalöe F., J. Phys. Lett., **45**, L441 (1984) LT 17 (1984)
- [38] Leduc M., Nacher P.J., Metts, Daniels, Tastevin G., Lalöe F., Europhysics Lett., **4**, 59 (1987)
- [39] Stringari S., Barranco M., Polls A., Nacher P.J., Lalöe F., J. de Physique, **48**, 1337 (1987)
- [40] Nacher P.J., Leduc M., Tastevin G., Wiesenfeld L. and Lalöe F., LT18, Jap. J. App. Phys., **26**, 205 (1987)
- [41] Bonfait G., Puech L., Halperin W.P., Castaing B., Europhys. Lett., **3**, 490 (1987)
- [43] Kopietz P., Dutta A., Archie C.N., PRL, **57**, 1231 (1986)

Fermions lourds

- [44] Stewart R., Rev. Mod. Phys., **56**, 755 (1984)
- [45] Fisk Z., Ott H.R., Rice T.M., Smith J.L., Nature, **320**, (1986)
- [46] Fisk Z., Ott H.R., Smith J.L., J. Less Common Metals (1972)
- [47] Petrick C.J., Pines D., Festschrift for V.L. Ginzburg on the occasion on his sevenieth birthday

- [48] Benoît A., Berton A., Chaussy J., Flouquet J., Lasjaunias J.C., Odin J., Palleau J., Peyrard J., Ribault M., Valence fluctuation in solids, edit. Folicov, Honke et Maple, North Holland (1981)
- [49] Besnus M.J., Kappler J.P., Lehman P. and Meyer A., Solid State Comm., **55**, 779 (1985)
- [50] Flouquet J., Haen P., Marcenat C., Lejay P., Amato A., Jaccero D., Wodlser E., J.M.M.M., **52**, 85 (1985)
- [51] Rice T.M., Ueda K., Ott H.R., J.M.M.M., **54-57**, 317 (1986)
- [52] Anderson P.W., Phys. Rev., **B30**, 1549 (1984)
- [53] Brinkman W.F., Rice T.M., Phys. Rev. **B2**, 4302 (1970)
- [54] Mac Laughin D.E. et al., PRL, **53**, 1833 (1986)
- [55] Ott H.R. et al., PRL, **52**, 1915 (1984)
- [56] Bishop et al., PRL, **53**, 1009 (1984)
- [57] Golding et al., PRL, **55**, 2479 (1985)
- [58] Franse J.J., Frings P.H., De Visser A., Menovsky T.T., Palstra M., Kes P.H., Mydosh J.A., Physica, **126B**, 116 (1984)
- [59] De Visser A., Menovsky T.T., Franse J.J.M., Physica, **147B**, 82 (1987) et De Visser A., Thèse Amsterdam, 1986
- [60] Haen P., Flouquet J., Lapierre F., Lejay P., Remenyi G., J.L.T.P., **67**, 391 (1987)
- [61] Haen P., Flouquet J., Lapierre F., Lejay P., Mignot J.M., Ponchet A., Voiron J., J.M.M.M., **63-64**, 320 (12987)
- [62] Marcenat C., Mignot J.M., Haen P., Communication privée et à paraître
- [63] Kouroudis I., Weber D., Yoshizawa M., Lüthi B., Puech L., Haen P., Flouquet J., Bruls A., Franse J.J.M., Menovsky A., Welp U., Bucher E., Hufnagel I., PRL, **58**, 820 (1987)
- [64] Thalmaier P., Fulde P., Euro Phys. Lett., **1**, 367 (1986)
- [65] De Visser A., Puech L., Joss W., Menovsky A.A., Franse J.J.M., LT 18 Jap. J. Appl. Phys., **26**, (1988)

³He polarisé et froid - Surfaces

- [66] Frossati G., Bedell K.S., Wiegers S.A.J. and Vermeulen G.A., PRL **57**, 1032 (1986)
- [67] Vermeulen G.A., Schuhl A., Rasmussen F.B., Joffrin J., Chapellier M., Preprint, à paraître (1988)

- [68] Goffrin H., Frossati G., Hebral B., Thoulouze D., *J. Physique (Paris) C7*, **41**, 275 (1980) LT15 et
Godfrin H., Thèse d'Etat, Grenoble (1981)
- [69] Schuhl A., Thèse d'Etat, Orsay (1987) et à paraître dans *Phys. Rev. B*
- [70] Franco H., Bossy J., Godfrin H., *Cryogenics*, Sept. 1984
- [71] Kelly J.F., Richardson R.C., LT13, Plenum Press (1974) 1, 167
- [72] Nacher P.J., Thèse de troisième cycle
Lefèbvre-Seguín V., Thèse d'Etat
- [73] Friedman L.J., Gronilla T.J., Richardson R.C., *J.L.T.P.*, **55**, 83 (1984)
- [74] Albers R.C., Wilkins J.M., *J.L.T.P.*, **34**, 105 (1979)
- [75] Béal Monod M.T., Mills D.L., *J.L.T.P.*, **30**, 289 (1978)
- [76] Hammel P.C., Richardson R.C., *P.R.L.*, **52**, 1441 (1984)
- [77] Friedmann et al., *P.R.L.*, **47**, 1078 (1981)
- [78] Lerner E., Daunt J.G., *J.L.T.P.*, **10**, 299 (1973)
- [79] Vermeulen G.A., Thèse Université Leiden, (1986)
- [80] Reinstein L.E., Gerber J.A., LT13, Plenum Press, (1973)
- [81] Lounasmaa O.V., *Experimental Principles and Methods Below 1 K*, Ac. Press., London (1974)
- [82] Dutta A., Thèse Stony Brook, (1986)
- [83] Osterman D.P., Williamson S.J., *Rev. Sci. Inst.*, **54**, 1380, (1983)
- [84] Thomasson J.W., Ginsberg D.M., *Rev. Sci. Inst.*, **47**, 387, (1976)
- [87] Haebel E.W., Witzeling W., *Cryogenics*, 02/1977
- [88] Schmitt C., *Rev. Sci. Inst.*, **50**, 454 (1979)
- [89] Pelizzone M.F., Thèse Université de Genève, 1982
- [90] Brunauer S., Emmet P.H., Teller E., *J. Am. Chem. Soc.*, **60** (1938)
- [91] Steele W.A., *Interaction of gases with Solid Surfaces* Chap. 3, *INT. ENCY. Phys. Chem. and Chem. Phys.*, édité par Everett D.H., Pergamon Press (1974)
- [92] Pollack G.C., *Rev. Mod. Phys.*, **41**, 48 (1969)
- [93] Daunt J.C., Lerner E., *JLTP* **8**, (1972)
- [94] Mc Cormick W.D.F., Goodstein D.L., Dash J.C., *PR* **168**, 249 (1968)
- [95] Holsen J.P., *Com. J. Phys.*, **37**, 300 (1959)
et Steele W.A., *JLTP* **3**, 257 (1970)
- [96] Van Sciver S.W., Wilches O.E., *PRB* **18**, 285 (1978)
- [97] Laheurte J.P., Noiray J.C., Romagnan J.C., *J. Phys. Lett.*, **52**, p.35 (1981)
Laheurte J.P., Noiray J.C., Romagnan J.C., Sornette D., *Journal de Physique*, **47**, 39 (1986)

AUTORISATION DE SOULENANCE

DOCTORAT D'ETAT

Vu les dispositions de l'Article 5 de l'Arrêté du 16 avril 1974,

Vu les rapports de M. Castaing B.

M. Frossati G.

Lajzerowicz J.
M.

M. Puech Laurent est autorisé à
présenter une thèse en soutenance pour l'obtention du grade de
DOCTEUR D'ETAT ES SCIENCES.

Fait à Grenoble, le 16 MARS 1988

Le Président de l'I.N.P.G.

Georges LESPINARD
Président
de l'Institut National Polytechnique
de Grenoble

P.O. le Vice-Président



Le Président de l'U.S.T.M.G.



J.J. PAYAN



