

# THÈSE

présentée par

Olivier PLANTEVIN

pour obtenir le titre de

Docteur de l'Université Joseph Fourier – Grenoble 1

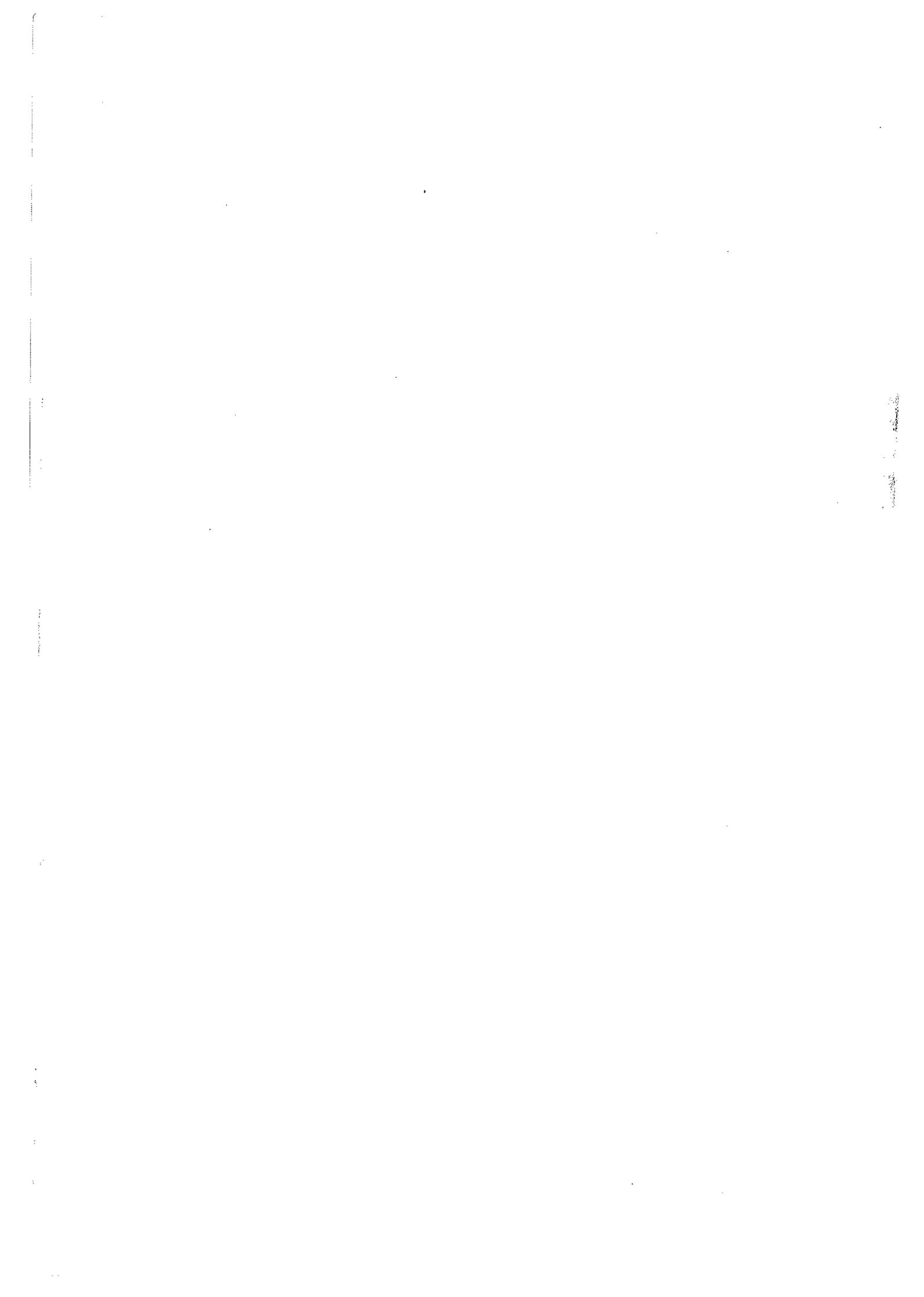
Spécialité physique

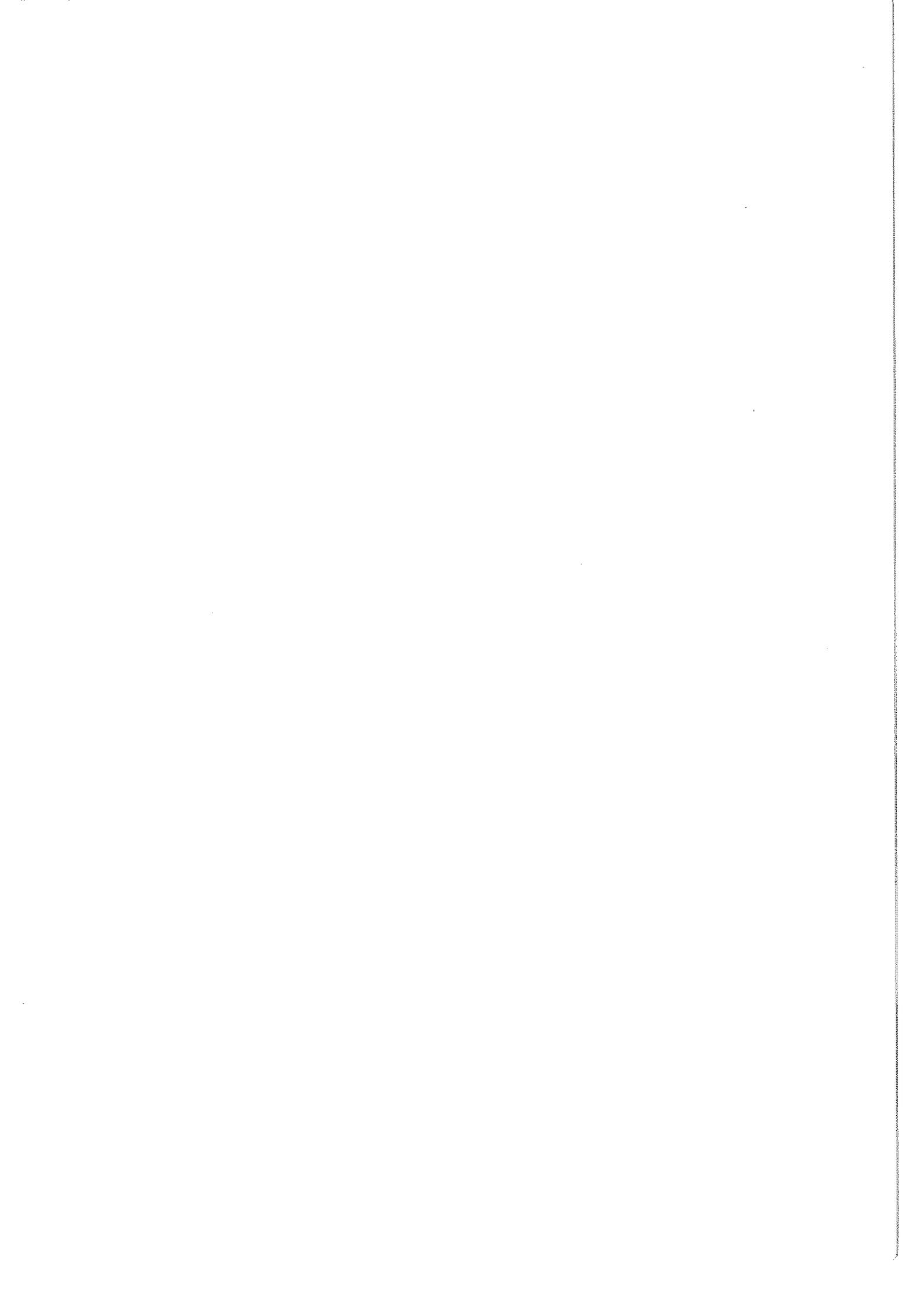
## Étude des excitations de l' $^4\text{He}$ liquide dans des milieux poreux par diffusion inélastique de neutrons

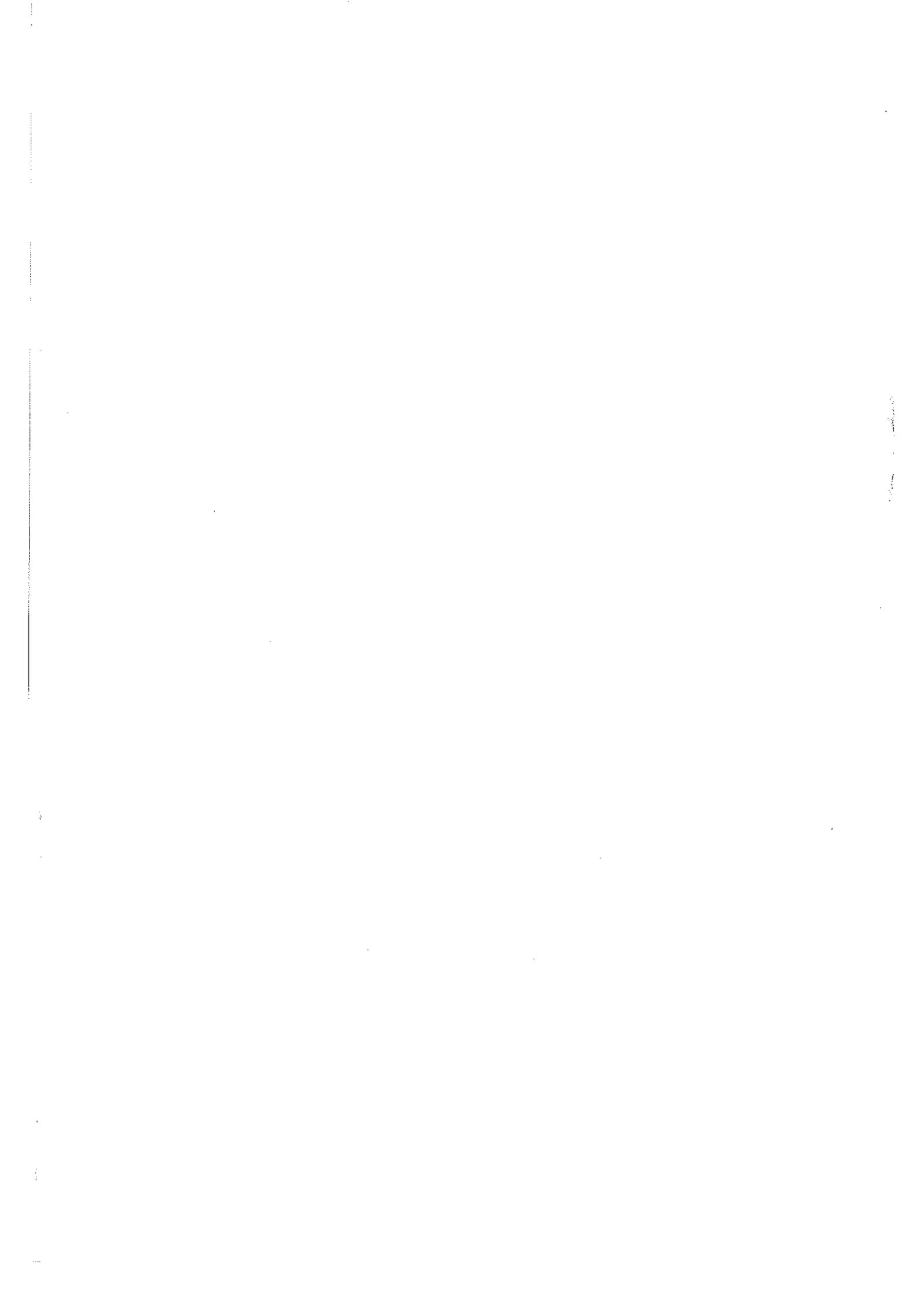
soutenue publiquement le 19 octobre 1999

### Composition du jury

*Président* : M. BÉE  
*Rapporteurs* : G. CODDENS  
W. G. STIRLING  
*Examineurs* : B. FÅK  
H. GODFRIN







## Remerciements

Le travail de thèse présenté dans ce mémoire a été effectué au sein du laboratoire de Magnétisme et Diffraction Neutronique (MDN) du Service de Physique Statistique, Magnétisme et Supraconductivité (SPSMS), du Département de Recherche Fondamentale sur la Matière Condensée (DRFMC), au CEA-Grenoble. Je remercie M. Jacques Flouquet pour m'avoir accueilli au SPSMS durant ces trois années, ainsi que pour m'avoir permis de suivre la formation européenne à l'utilisation des grands instruments HERCULES (Higher European Research Course for Users of Large Experimental Systems). Je tiens aussi à remercier M. Henri Godfrin d'avoir assumé la responsabilité de la direction officielle de cette thèse auprès de l'Université Joseph Fourier.

Mon guide tout au long de ce travail expérimental fut M. Björn Fåk. Il sut, tout en me laissant une grande liberté, m'apprendre la rigueur nécessaire à un travail de recherche. Son professionnalisme, sa grande clarté et sa constante disponibilité me furent d'une grande aide et je tiens ici à le remercier chaleureusement.

Ce travail s'est trouvé enrichi de mes divers échanges et collaborations avec Jacques Bossy, Henry Glyde, Ken Andersen, Charlotte Anderson, Niels van Dijk et Fabio Pistolesi. Qu'ils en soient remerciés.

Norbert Mulders et John Beamish ont élaboré des échantillons d'aérogel spécifiquement pour cette étude. Je les en remercie.

Je remercie M. Marc Bée pour l'honneur qu'il me fait en présidant ce jury de thèse. J'adresse ma profonde reconnaissance à M. Gerrit Coddens, avec qui j'eus le plaisir de travailler lors de mes séjours à Saclay, pour avoir accepté de rédiger un rapport sur ce mémoire. J'exprime ma gratitude à M. William G. Stirling qui a bien voulu aussi rédiger un rapport sur cette étude.

J'ai bénéficié au cours de cette thèse d'une aide technique de grande qualité et je tiens à remercier vivement tout ceux qui ont permis la réalisation de cette étude. Je pense en particulier à Jacques Previtali, Bruno Vettard, Serge Pujol, Maurice De Palma, Frédéric Thomas, Helmut Schober pour leur aide à l'ILL, ainsi qu'à Philippe Boutrouille du LLB.

Je remercie aussi Michelle Dominiak, l'âme du laboratoire MDN, ainsi que Marielle Perrier pour leur aide précieuse face aux aléas du quotidien.

Je tiens aussi à remercier ceux dont la compagnie enrichit agréablement ce travail :  
Erwan Adam, Panāgiotis Dervenagas, Paul Canfield, Alessandro Bombardi.

## Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre 1. L'<sup>4</sup>He superfluide et les milieux poreux</b>	
1.1 L' <sup>4</sup> He superfluide	3
1.2 Diffusion inélastique des neutrons et <sup>4</sup> He superfluide	7
1.3 Les milieux poreux	11
1.4 L' <sup>4</sup> He superfluide et les milieux poreux	13
1.5 Plan de la thèse	15
<b>Chapitre 2. La diffusion inélastique des neutrons : principe et utilisation</b>	
2.1 Le facteur de structure dynamique	17
2.2 Spectromètre à trois-axes	21
2.2.1 Description du fonctionnement	21
2.2.2 <sup>4</sup> He liquide dans l'aerogel de Beamish (B95)	24
2.2.3 Étude du roton à haute résolution ( <sup>4</sup> He en volume)	27
2.2.4 <sup>4</sup> He liquide dans l'aerogel de Mulders (M87.2)	30
2.3 Spectromètres à temps de vol	32
2.3.1 Description du fonctionnement	32
2.3.2 Expériences sur IN6	36
2.3.3 Expériences sur Mibemol	46
<b>Chapitre 3. Étude du roton dans l'<sup>4</sup>He en volume</b>	
3.1 Théorie	49
3.2 Résultats expérimentaux et analyse	54
3.3 Conclusion	56
<b>Chapitre 4. Caractérisation des échantillons</b>	
4.1 Les quantités mesurées	57

---

4.2 Détails expérimentaux	60
4.3 Résultats et interprétation	63
4.4 Conclusion	69
<b>Chapitre 5. <math>^4\text{He}</math> dans les milieux poreux : méthodes d'analyse</b>	
5.1 La diffusion multiple	71
5.2 Méthodes d'analyse des données	74
5.2.1 Méthode de soustraction simple (SS)	75
5.2.2 Méthode de Woods et Svensson (WS)	78
5.3 Les multiphonons	81
<b>Chapitre 6. <math>^4\text{He}</math> dans des milieux poreux complètement remplis</b>	
6.1 Caractéristiques générales du facteur de structure dynamique	87
6.2 Intensité supplémentaire	92
6.3 Les excitations phonon-roton	101
6.3.1 Comparaison avec l' $^4\text{He}$ en volume à basse température	101
6.3.2 Dépendance en température des excitations	103
6.4 Conclusion	108
<b>Chapitre 7. Dépendance en remplissage</b>	
7.1 Introduction à l'étude de films d' $^4\text{He}$ liquide	109
7.2 Aerogel M87.2	111
7.3 Gel-Tek	116
7.3.1 Contribution "normale"	119
7.3.2 Excitation principale à basse température	120
7.3.3 Excitation 2D	124
7.3.4 Dépendance en température	126
7.4 Conclusion	129
<b>Conclusion</b>	<b>131</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>133</b>

## INTRODUCTION

L'hélium tient son nom du grec helios, qui signifie le soleil. Cet élément a en effet été découvert lors de l'observation d'une éclipse du soleil en 1868. Il a été découvert par la suite sur Terre en 1895 par Ramsay. C'est le dernier des gaz que l'on a réussi à liquéfier. Cette liquéfaction a été réalisée par Kamerlingh Onnes en 1908 et marque la naissance de la physique des basses températures.

L'hélium existe sous deux formes isotopiques stables ( $^3\text{He}$  et  $^4\text{He}$ ). L'hélium, sous ces deux formes, constitue un système modèle pour l'étude des propriétés quantiques de la matière à basse température. Les interactions inter-atomiques sont simples et bien connues et l'hélium est la substance que l'on peut obtenir au plus haut degré de pureté. L'hélium sous ses deux formes isotopiques reste liquide sous sa pression de vapeur saturante jusqu'à des températures tendant vers le zéro absolu, du fait des importantes fluctuations de point-zéro et de la faible interaction inter-atomique. C'est la raison pour laquelle on dénomme l' $^3\text{He}$  et l' $^4\text{He}$  à basse température sous le terme générique de liquides quantiques. Les atomes d' $^3\text{He}$  et d' $^4\text{He}$  sont respectivement des fermions et des bosons et suivent donc, à basse température, une statistique quantique radicalement différente.

L' $^4\text{He}$  est le plus courant des deux isotopes. Il est largement utilisé dans les techniques cryogéniques par la communauté des physiciens des basses températures. L' $^4\text{He}$  présente une transition de phase à  $T_\lambda = 2.17$  K (sous sa pression de vapeur saturante) vers un état superfluide, découvert en 1938 indépendamment par Kapitza et par Allen et Misener. Il présente dans cette phase superfluide diverses propriétés spectaculaires. Il est maintenant bien admis que la superfluidité est reliée à la condensation de Bose-Einstein, consistant en l'occupation par un nombre macroscopique d'atomes de l'état quantique fondamental, de

moment zéro. Il n'existe toutefois pas de théorie microscopique de l' $^4\text{He}$  superfluide et, en particulier, le lien entre la superfluidité, la condensation de Bose-Einstein et les excitations élémentaires de l' $^4\text{He}$  superfluide n'est pas encore clair [Glyde 1994, Griffin 1993].

La condensation de Bose-Einstein représente actuellement un champ de recherche d'une intense activité théorique et expérimentale. Ce phénomène a été mis en évidence récemment dans des gaz d'atomes alcalins dilués [Townsend 1997] et dans l'hydrogène atomique polarisé [Fried 1998] refroidis à des températures extrêmement basses. Ces réalisations expérimentales de gaz de Bose ouvrent le champ à l'étude d'un nouvel état de la matière. L' $^4\text{He}$  constitue à basse température un liquide de Bose et l'étude de son comportement microscopique devrait permettre d'enrichir notre compréhension de la condensation de Bose-Einstein.

L'étude de l' $^4\text{He}$  superfluide dans les milieux poreux (Vycor et aerogel) a renouvelé depuis une dizaine d'années l'intérêt des physiciens des basses températures pour ce système [Chan 1996]. Le confinement et le désordre introduits par ces milieux poreux induisent des modifications du comportement critique de l'hélium à la transition superfluide. À plus basse température ils affectent la fraction superfluide de la densité. Il est donc probable que le comportement dynamique du superfluide dans les milieux poreux soit aussi affecté. Son étude s'inscrit dans le cadre plus général de celui de l'impact du désordre et du confinement sur un système de bosons et les résultats obtenus avec l' $^4\text{He}$  peuvent être étendus à d'autres systèmes physiques comme par exemple les métaux granulaires.

La diffusion inélastique des neutrons permet de sonder directement les fluctuations de densité à l'échelle microscopique. Cette technique est la plus adaptée à l'étude des excitations de l'hélium liquide. Elle s'est déjà montrée très riche et a permis d'approfondir la compréhension des liquides quantiques [Glyde 1994]. Nous allons présenter dans ce travail l'application de cette technique à l'étude de l' $^4\text{He}$  liquide dans différents milieux poreux (Vycor, aerogel et Gel-Tek).

## CHAPITRE 1

### L'<sup>4</sup>He superfluide et les milieux poreux

On introduit tout d'abord dans ce chapitre la phase superfluide de l'<sup>4</sup>He liquide à basse température ainsi que les différentes idées qui ont vu le jour afin d'expliquer ses propriétés, notamment celle d'excitation élémentaire. On présente ensuite l'apport de la diffusion inélastique des neutrons à la compréhension du comportement microscopique de l'<sup>4</sup>He liquide. Les deux principaux milieux poreux (aérogel et Vycor) utilisés pour confiner l'<sup>4</sup>He liquide sont présentés. Ceux-ci ont un impact différent et incompris sur les caractéristiques de la transition superfluide. Il est donc probable que le comportement dynamique de l'<sup>4</sup>He superfluide soit modifié dans ces milieux poreux. L'étude de ce comportement constituera l'objet de notre travail.

#### 1.1 L'<sup>4</sup>He superfluide

L'atome d'<sup>4</sup>He est le plus petit atome ayant sa couche électronique extérieure pleine. Il présente une symétrie sphérique et la seule force attractive entre atomes est la force de Van der Waals, très faible. D'autre part, les atomes d'<sup>4</sup>He étant très légers, ceux-ci présentent d'importantes oscillations de point-zéro et le liquide ne se solidifie pas sous sa pression de vapeur saturante jusqu'aux plus basses températures. Les points critiques ( $T=5.2$  K) et

d'ébullition ( $T=4.2$  K) de  ${}^4\text{He}$  sont, après ceux de  ${}^3\text{He}$ , les plus bas qui existent. On a représenté sur la figure 1.1 le diagramme de phases de  ${}^4\text{He}$ . A suffisamment basse température, la longueur d'onde de de Broglie devient de l'ordre de la distance inter-atomique et il y a recouvrement des fonctions d'onde atomiques.  ${}^4\text{He}$  liquide est alors vu comme un système de bosons fortement corrélés.

Pour des températures inférieures à  $T_\lambda=2.172$  K,  ${}^4\text{He}$  liquide présente de nombreuses propriétés inhabituelles [Wilks 1967, 1987]. Il s'écoule à travers des capillaires très fins avec une viscosité très faible (environ  $10^{11}$  fois plus faible que dans  ${}^4\text{He}$  normal). Sa conductivité thermique devient très grande (environ  $10^3$  fois plus grande que celle du cuivre pur par exemple), et les variations de température ne se propagent plus à travers le liquide selon l'équation de Fourier mais comme une onde, appelée le second son.  ${}^4\text{He}$  liquide manifeste aussi alors différents effets inattendus (comme l'effet thermo-mécanique ou effet fontaine). À la température  $T_\lambda$ , on observe une divergence de la chaleur spécifique indiquant une transition de phase du second ordre (la transition lambda). On distingue  ${}^4\text{He}$  dans ces deux phases en l'appelant respectivement He I et He II au-dessus et au-dessous de la température critique de transition.

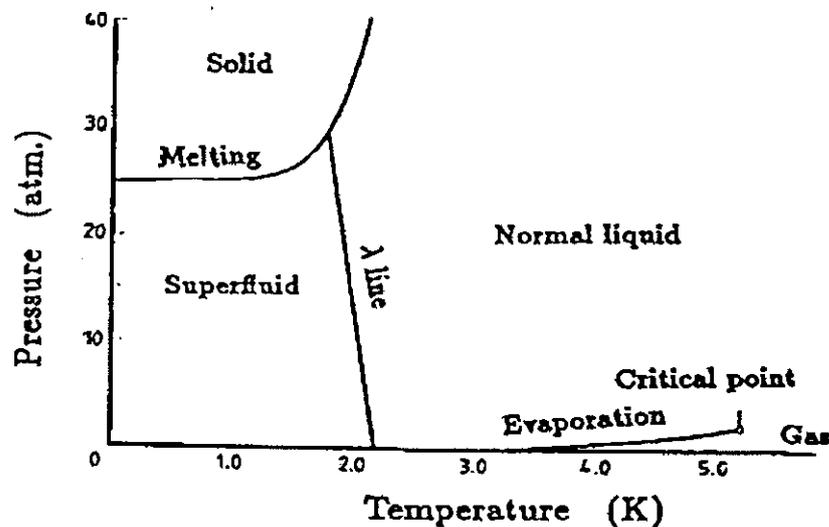


Figure 1.1 : Diagramme de phase de  ${}^4\text{He}$  (tiré de [London 1954]).

### Le modèle des deux-fluides

Indépendamment, Tisza et Landau développèrent le modèle des deux-fluides pour décrire les propriétés de l'He II [Galasiewicz 1971]. Ce modèle suppose que l'He II est constitué de deux fluides intimement mélangés, et sans interaction mutuelle. Ces deux fluides sont le fluide normal, de densité  $\rho_n$  et de vitesse  $\vec{v}_n$ , et le superfluide, de densité  $\rho_s$  et de

vitesse  $\vec{v}_s$ . La densité totale du liquide s'écrit comme la somme des densités normale et superfluide :

$$\rho = \rho_n + \rho_s \quad (1.1)$$

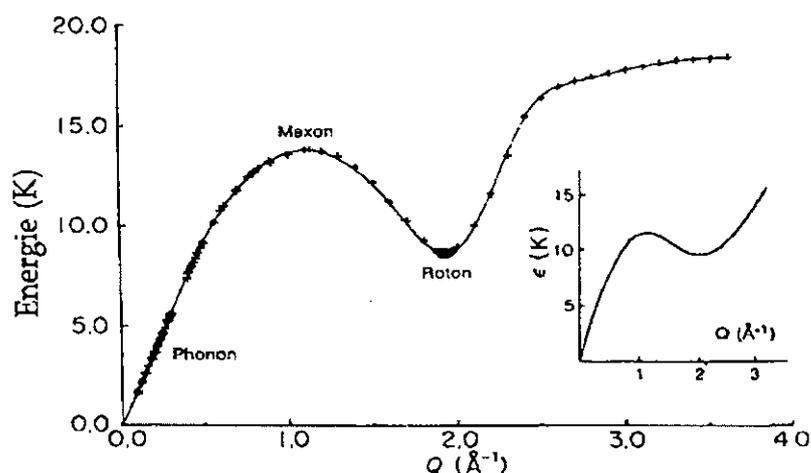
A  $T=0$  K, tout le liquide est superfluide et la densité normale est nulle. Celle-ci augmente avec la température jusqu'à  $T_\lambda$ , où tout le liquide est normal. Le superfluide ne transporte pas d'entropie, et n'a pas de viscosité. Au-contre, le fluide normal transporte toute l'entropie du liquide et présente une certaine viscosité. La dérivation des équations du mouvement des deux fluides permet une bonne description du comportement de l'He II.

Tisza et Landau développèrent toutefois ce modèle sur des bases différentes. Tisza utilisa l'idée de London, qui proposa d'associer la transition lambda à la condensation de Bose-Einstein. Dans un gaz de Bose idéal (où les particules sont sans interaction), une transition de phase apparaît à une température  $T_c$  ( $T_c=3.13$  K pour un système de particules de masse atomique 4, à la densité de l'<sup>4</sup>He liquide). En-dessous de cette température, un nombre macroscopique d'atomes occupe l'état fondamental (de moment zéro), et à  $T=0$  K, tous les atomes se trouvent dans l'état fondamental. Tisza associa la densité superfluide du modèle des deux-fluides aux atomes présents dans le condensat de Bose. La densité normale correspond alors aux atomes au-dessus du condensat.

### Excitations élémentaires

Au contraire de Tisza, Landau ne fait aucune référence à la condensation de Bose. Il considère l'He II comme un système de particules en forte interaction, pour lequel on ne peut plus considérer les mouvements atomiques individuels. Il considère que la division des particules du liquide en terme de particules superfluides et de particules normales n'a pas de sens, mais qu'il faut plutôt considérer que différents types de mouvements peuvent exister dans le système, chacun étant associé à une masse effective particulière. Il développe alors une quantification des mouvements internes du liquide et introduit la notion d'excitation élémentaire [Landau 1941, 1947]. Ces excitations élémentaires (ou quasi-particules) correspondent aux premiers états excités du liquide. Il a proposé pour ces excitations la courbe de dispersion phonon-roton représentée dans l'insert de la figure 1.2, et qui se trouve être en bon accord avec les résultats issus des mesures de diffusion inélastique de neutrons. Ces excitations correspondent à des fluctuations de densité respectivement de grande longueur d'onde (phonons) et de courte longueur d'onde (maxon-roton). Les termes génériques de maxon et de roton sont utilisés pour désigner respectivement le maximum et le minimum de la courbe

de dispersion. Dans le cadre de cette description, la densité normale du modèle des deux-fluides correspond au gaz d'excitations élémentaires en faible interaction. Cette interprétation en terme de quasi-particules a permis de dériver très précisément la plupart des propriétés thermodynamiques de l'He II [Brooks 1977]. On présentera plus en détail la théorie de Landau des excitations élémentaires dans la partie 3.1.



**Figure 1.2** : Courbe de dispersion phonon-maxon-roton des excitations de l' $^4\text{He}$  liquide obtenue à partir des résultats de plusieurs expériences de diffusion inélastique des neutrons [Donnelly 1981]. La ligne est un guide pour les yeux. L'insert représente la courbe de dispersion proposée par Landau [Landau 1947] (tiré de [Glyde 1994]).

Par la suite, Feynman développa une base microscopique au modèle de Landau [Feynman 1954, Wilks 1967, Galasiewicz 1971]. Il calcula par une méthode variationnelle les fonctions d'onde des états excités d'un liquide de Bose. Il trouva que ces états excités correspondent à des fluctuations de densité de vecteur d'onde  $Q$  et d'énergie :

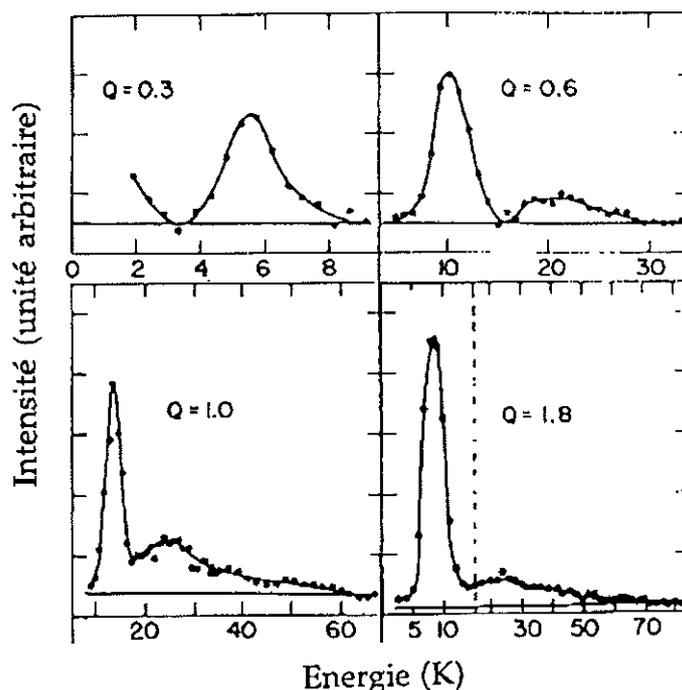
$$\hbar\omega_Q = \frac{\hbar^2 Q^2}{2m_4 S(Q)} \quad (1.2)$$

où  $m_4$  est la masse d'un atome d' $^4\text{He}$  et  $S(Q)$  est le facteur de structure statique du liquide (celui-ci sera défini dans la partie 2.1). La courbe de dispersion ainsi obtenue est en bon accord qualitatif avec la dispersion obtenue expérimentalement, mais l'énergie du roton est sur-estimée d'environ un facteur deux. Cette approche a été améliorée par la suite afin de tenir compte des rétro-courants associés à la propagation des excitations [Feynman 1956]. Elle constitue à ce jour la théorie qui reproduit le plus précisément la courbe de dispersion des

excitations à basse température. Cette théorie ne fait aucune référence à une possible condensation de Bose.

## 1.2 Diffusion inélastique des neutrons et <sup>4</sup>He superfluide

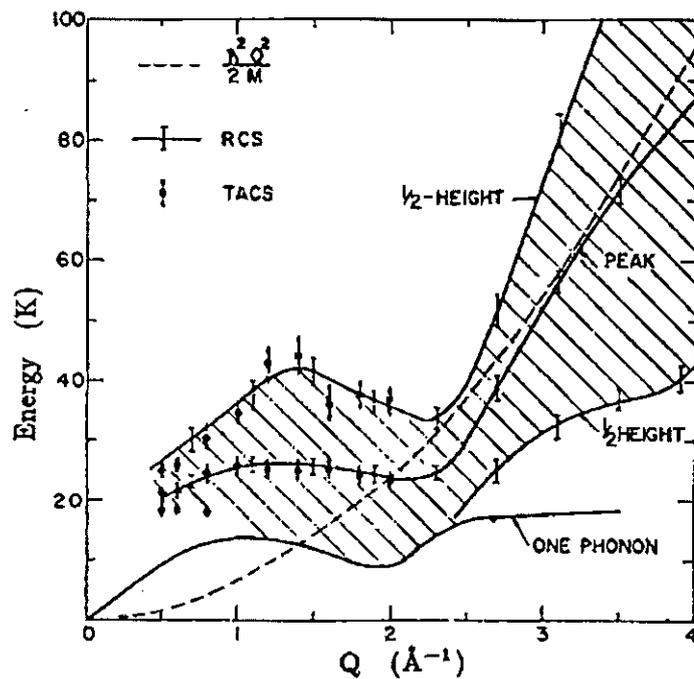
### À basse température



**Figure 1.3a** : Spectres typiques de diffusion inélastique des neutrons par l'<sup>4</sup>He liquide à basse température (T=1.1 K) à différentes valeurs de vecteur d'onde Q (en Å<sup>-1</sup>) [Cowley 1971]. On observe le pic aigu caractéristique de l'excitation phonon-roton. La diffusion large à plus haute énergie est la contribution des multiphons.

La diffusion inélastique des neutrons par l'<sup>4</sup>He liquide a une longue histoire puisque les premières mesures effectuées remontent à la fin des années 1950 [Glyde 1987, 1994]. Ces mesures ont permis de vérifier l'existence d'excitations bien définies dans l'<sup>4</sup>He superfluide à basse température, suivant une dispersion de la forme prévue par Landau [Landau 1947]. Ces excitations apparaissent comme des pics aigus du facteur de structure dynamique (voir partie 2.1). La figure 1.3a représente des spectres typiques de diffusion de neutrons obtenus le long de la courbe de dispersion [Cowley 1971]. Les résultats de ces spectres sont

rassemblés sur la figure 1.3b. Au-dessus de la courbe de dispersion des excitations (marquée «one phonon») est représentée la large bande correspondant à la contribution des multiphonons. Elle correspond à la création de plusieurs excitations en un seul évènement de diffusion. Cette contribution est centrée sur une énergie un peu au-dessus de deux fois l'énergie du minimum du roton jusqu'à environ  $Q=2.3 \text{ \AA}^{-1}$ . Son énergie augmente au-delà de ce vecteur d'onde, et devient assez proche de la relation de dispersion pour des atomes d' $^4\text{He}$  libres représentée par la ligne pointillée.

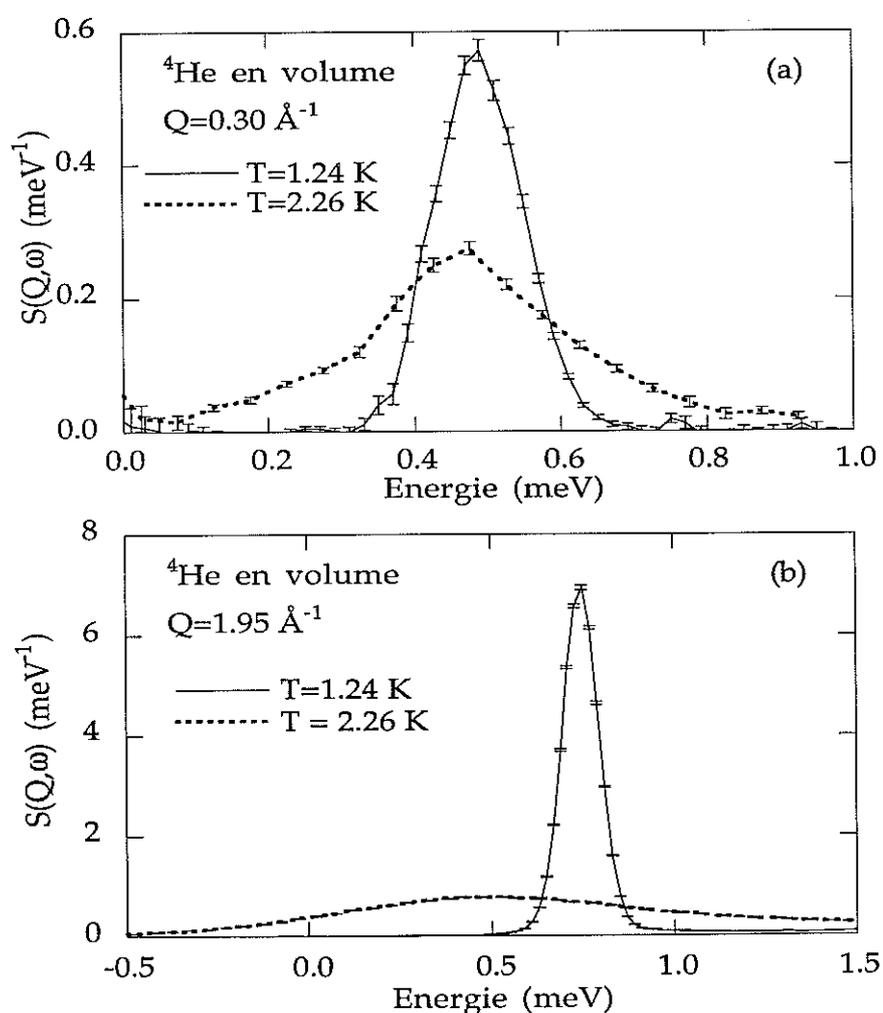


**Figure 1.3b** : Présentation synthétique de la diffusion des neutrons par l' $^4\text{He}$  liquide à basse température ( $T=1.1 \text{ K}$ ) [Cowley 1971]. Au-dessus de la courbe de dispersion phonon-roton (marquée "ONE PHONON") est représenté en hachuré la contribution des multiphonons. Trois lignes continues représentent respectivement les positions des mi-hauteurs et de l'énergie moyenne des multiphonons. La ligne en tirets représente la dispersion pour des atomes d' $^4\text{He}$  libres. Les différents symboles (RCS et TACS) indiquent des mesures réalisées sur différents spectromètres.

### Dépendance en température

En 1978, Woods et Svensson [Woods 1978] présentèrent des mesures de la dépendance en température du facteur de structure dynamique au niveau du maxon à  $Q=1.13 \text{ \AA}^{-1}$ . Le pic aigu caractéristique de l'excitation s'élargit et semble diminuer en intensité quand la température augmente. Celui-ci semble disparaître des spectres à  $T=T_\lambda$ . On observe alors dans les spectres une composante large. Woods et Svensson interprétèrent leur mesures en

supposant que l'intensité du pic de l'excitation est proportionnel à la densité superfluide  $\rho_s(T)$ . Ce résultat fut confirmé par Talbot et collaborateurs [Talbot 1988] dans l'<sup>4</sup>He liquide sous une pression de 20 bars. Stirling et Glyde [Stirling 1990] puis Andersen et collaborateurs [Andersen 1994a,b] montrèrent que la dépendance en température du facteur de structure dynamique est différente dans la région des phonons ( $Q < 0.7 \text{ \AA}^{-1}$ ) et dans la région maxon-roton de la courbe de dispersion. En effet, dans la région des phonons l'excitation s'élargit avec la température, mais celle-ci ne semble pas affectée par la transition superfluide. Au-delà de  $T_\lambda$ , une excitation bien définie est encore présente dans les spectres de diffusion. On a représenté ces deux comportements différents dans la région des phonons et au niveau du roton sur la figure 1.4.



**Figure 1.4 :** Facteur de structure dynamique de l'<sup>4</sup>He déterminé dans la région des phonons (a) et au niveau du roton (b) pour deux températures, dans la phase superfluide ( $T=1.24 \text{ K}$ ) et dans la phase normale ( $T=2.26 \text{ K}$ ) (données de Ken Andersen et collaborateurs [Andersen 1991,1994]).

Ces résultats conduisirent à une nouvelle interprétation des excitations dans l'<sup>4</sup>He superfluide [Glyde 1990, 1992a,b, 1993, 1994, Griffin 1987, 1993]. Dans cette interprétation, le condensat de Bose joue un rôle explicite et c'est sa disparition à  $T_\lambda$  qui entraînerait un changement qualitatif des spectres de diffusion inélastique de neutrons. Dans la région des phonons, l'excitation est interprétée comme un mode de propagation du son, similaire à celui observé dans les autres liquides simples [Copley 1975]. A plus grand  $Q$ , le pic observé dans la phase superfluide est interprété comme une fluctuation de densité associée à l'excitation d'un atome hors du condensat de Bose. On observerait alors directement l'excitation d'une quasi-particule (au sens de la théorie des champs, c'est à dire un pôle de la fonction de Green  $G(Q, \omega)$ ) dans le spectre des fluctuations de densité. Le couplage entre le spectre des quasi-particules et le spectre des fluctuations de densité se ferait via le condensat de Bose, conduisant ainsi à une courbe de dispersion phonon-roton continue. Ce couplage diminuerait quand la température augmente et disparaîtrait à  $T=T_\lambda$  avec le condensat. On n'observerait plus alors les pics associés à l'excitation de quasi-particules. Cette théorie permet une bonne description du comportement observé mais la difficulté de son formalisme ne permet pas d'obtenir de description quantitative du facteur de structure dynamique ou de la courbe de dispersion.

### À grand $Q$

Le facteur de structure dynamique déterminé par diffusion inélastique de neutrons à grand  $Q$  ( $Q > 8 \text{ \AA}^{-1}$ ) reflète la distribution en moment des atomes  $n(\vec{p})$  [Glyde 1987, 1994, Griffin 1993]. Une analyse détaillée des résultats de mesures effectuées sur l'<sup>4</sup>He liquide à basse température a conduit à une estimation de la fraction des atomes condensés dans l'état de moment zéro de l'ordre de 10 %.

Une autre preuve expérimentale de la présence d'un condensat de Bose dans l'<sup>4</sup>He superfluide a été donnée récemment [Wyatt 1998]. Wyatt et collaborateurs ont mesuré la distribution angulaire des atomes évaporés à la surface de l'<sup>4</sup>He superfluide par un faisceau de phonons. La distribution angulaire mesurée correspond à celle calculée pour des atomes ayant un moment zéro parallèlement à la surface. Ces atomes doivent donc provenir du condensat de Bose.

### 1.3 Les milieux poreux

Les propriétés de l'<sup>4</sup>He liquide confiné dans des milieux poreux ont été essentiellement étudiées dans trois matériaux poreux à base de silice amorphe : les aerogels, les xerogels et le Vycor. Ces trois matériaux poreux ont en commun une structure tri-dimensionnelle de pores microscopiques interconnectés, de tailles comprises entre environ 10 et 5000 Å. Ils présentent de très grandes surfaces internes, typiquement de l'ordre de plusieurs centaines de m<sup>2</sup>/cm<sup>3</sup>. Nous présentons ici les caractéristiques principales de ces matériaux. Dans le chapitre quatre, nous présenterons une étude de caractérisation des échantillons que nous avons utilisés.

#### Vycor

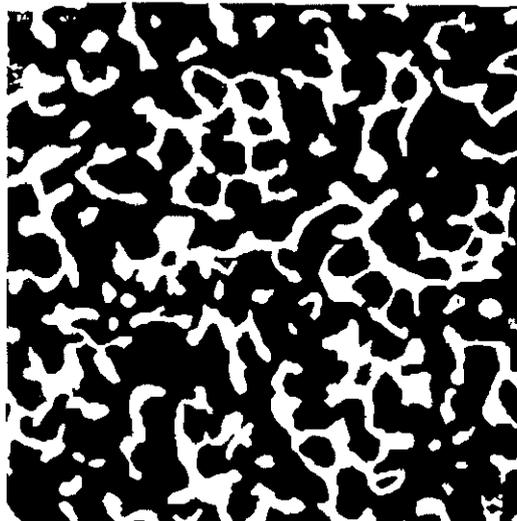


Figure 1.5 : Image de microscopie électronique en transmission digitalisée d'une fine tranche (350 Å) de Vycor remplie de résine (tiré de [Wong 1993]). L'espace vide est représenté en blanc. L'échelle horizontale est 8000 Å.

Le Vycor est un verre poreux issu d'un processus à deux étapes [Courstens 1997]. Dans un premier temps, on induit une séparation de phases dans un verre de borosilicate par un traitement thermique ; ensuite on dissout par un procédé chimique la phase riche en bore de manière à obtenir une éponge complexe riche en silice (96% SiO<sub>2</sub> et 3% B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>). Ce matériau a été largement étudié par microscopie électronique en transmission, par diffusion aux petits angles de rayons X et de neutrons, et en utilisant des méthodes d'adsorption [Benham 1989, Levitz 1991]. Il ressort de ces études que le Vycor se présente comme un réseau de canaux interconnectés de diamètre assez bien calibré (typiquement 70 Å). Ce matériau pré-

sente une distribution de masse homogène et un volume ouvert (une porosité) d'environ 30% du volume total. On a reporté sur la figure 1.5 une image d'une fine tranche de Vycor obtenue par microscopie électronique en transmission.

### Aerogels et Xerogels

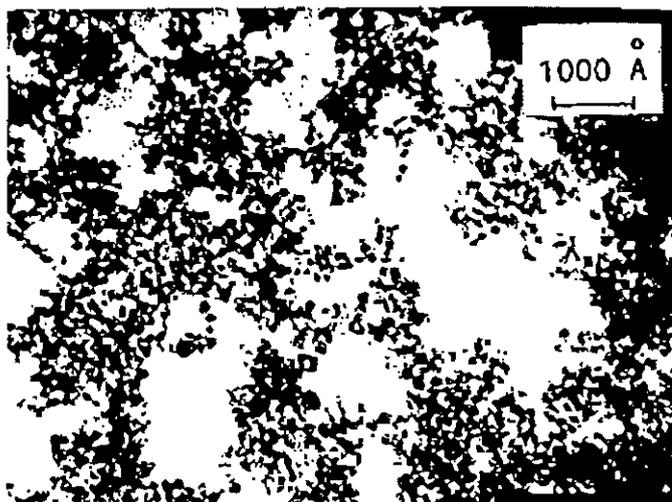


Figure 1.6 : Image de microscopie électronique en transmission d'un aerogel de silice colloïdal de densité  $\rho=0.1 \text{ g/cm}^3$  (tiré de [Leverrier-Foret 1992]).

Les aerogels et xerogels sont issus d'un procédé sol-gel [Brinker 1990]. La formation des gels se fait par agrégation diffusive de structures polymérisées, conduisant à une structure hautement ramifiée. De ce fait, les gels, par opposition au Vycor, présentent des corrélations de densité à longue distance.

Les échantillons de xerogel sont obtenus par séchage à l'air et traitement thermique du gel [Shafer 1987]. Ce procédé résulte en un effondrement et une réorganisation de la structure du gel. On obtient finalement une structure poreuse typique d'une porosité d'environ 60% et avec une distribution de tailles de pores restreinte à une gamme étroite autour de 100 Å. On peut, en contrôlant les conditions de synthèse de manière spécifique, obtenir un xerogel particulier, le Gel-Tek [Miyamoto 1996], dont le diamètre des pores est d'environ 25 Å et la porosité d'environ 50%.

Les aerogels sont préparés selon un processus de séchage hypercritique qui permet de conserver la structure fine du gel. On obtient alors un matériau très peu dense, de porosité comprise entre environ 85% et 99.8%, présentant une géométrie très ouverte. Les mesures de diffusion de neutrons et de rayons X aux petits angles [Schaefer 1986, Vacher 1988] montrent que les aérogels présentent une structure auto-similaire (fractale) sur des dimen-

sions pouvant aller d'environ 10 à 5000 Å pour les aerogels les moins denses. La structure des aerogels est bien reproduite par des modèles d'agrégation limitée par la diffusion [Hasmy 1993, 1994]. Une image d'aerogel obtenue par microscopie électronique en transmission est reportée sur la figure 1.6.

## 1.4 L'<sup>4</sup>He superfluide dans les milieux poreux

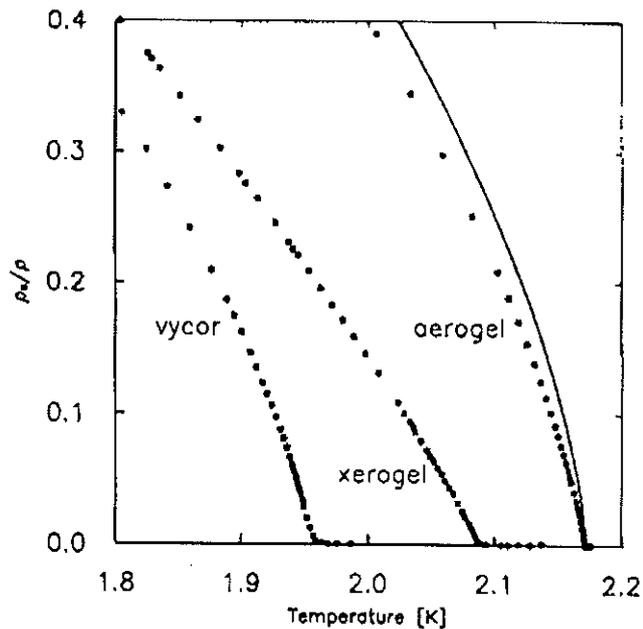
L'<sup>4</sup>He superfluide dans les milieux poreux constitue un système modèle pour l'étude de l'influence du confinement et du désordre sur un système de bosons fortement corrélés. L'influence d'une géométrie restreinte sur les propriétés de l'<sup>4</sup>He est particulièrement intéressante car, en théorie, la condensation de Bose-Einstein ne peut avoir lieu dans un système de dimensionnalité réduite (une ou deux dimensions) [Eggington 1974]. On observe toutefois, aussi bien pour des films d'hélium que pour des milieux poreux complètement remplis, une transition vers une phase superfluide à basse température [Reppy 1992]. La transition apparaît à une température d'autant plus basse que la taille des pores ou l'épaisseur des films étudiés est petite [Brewer 1974]. On observe aussi dans ces systèmes une réduction de la fraction superfluide de la densité par rapport à l'<sup>4</sup>He en volume. En particulier, les valeurs extrapolées à T=0 K sont inférieures à un, indiquant qu'aux plus basses températures une fraction du liquide reste normale.

L'effet toutefois le plus surprenant a été attribué au désordre et concerne la nature de la transition de phase superfluide [Reppy 1992, Chan 1988, 1996, Wong 1990, 1993]. On peut en effet considérer que la structure du milieu poreux, quand celui-ci est complètement rempli, constitue un désordre statique pour l'<sup>4</sup>He (par opposition au désordre dynamique lié à l'introduction d'impuretés d'<sup>3</sup>He dans l'<sup>4</sup>He). Dans le cas du Vycor, la température critique d'apparition de la superfluidité est réduite à T<sub>c</sub>=1.952 K, mais l'exposant critique ζ décrivant le comportement de la fraction superfluide de la densité n'est pas modifié par rapport à l'<sup>4</sup>He en volume, où ζ=0.67. Cet exposant critique est défini comme :

$$\frac{\rho_s}{\rho} \propto \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^\zeta \text{ pour } T \rightarrow T_c^- \quad (1.3)$$

Par contre, dans le cas des aerogels, beaucoup moins denses que le Vycor, la température critique d'apparition de la superfluidité est beaucoup moins réduite (T<sub>c</sub>=2.167 K), mais l'exposant critique de la fraction superfluide est différent, ζ=0.81. Ces deux comportements dif-

férents sont représentés sur la figure 1.7. De plus, on observe dans le cas des aerogels un maximum de chaleur spécifique à  $T_c$ , indiquant que cette température correspond à une véritable transition de phase. Cette transition a été interprétée comme étant d'un type différent de celle de  $^4\text{He}$  en volume. Le type de désordre introduit dans  $^4\text{He}$  a donc une profonde influence sur son comportement critique à la transition superfluide. La transition superfluide de films d' $^4\text{He}$  dans ces milieux poreux présente aussi un comportement étonnant. Nous présenterons ce comportement au chapitre sept.



**Figure 1.7** : Dépendance en fonction de la température de la fraction superfluide de la densité de  $^4\text{He}$  contenu dans trois différents milieux poreux (tiré de [Chan 1988]). La ligne continue représente la dépendance en température de la fraction superfluide de la densité de  $^4\text{He}$  en volume.

Ces différents effets nous suggèrent que le confinement et le désordre puissent affecter le spectre des excitations élémentaires. Différentes études théoriques de l'effet du désordre sur un système de bosons, le plus souvent en deux dimensions, ont été menées. Ces études prévoient la présence de nouvelles excitations de basse énergie [Makivic 1993], une localisation possible des excitations par le désordre [Ma 1986, 1993, Fisher 1989], une diminution de la vitesse du son [Lee 1992, Zhang 1993], ainsi qu'une déplétion du condensat de Bose [Huang 1992]. Il est aussi possible que les énergies et les durées de vie des excitations phonon-roton soient affectées par le désordre ou(et) le confinement. Dans ce cas, ces changements pourraient nous fournir une indication afin de mieux comprendre les modifications du comportement de  $^4\text{He}$  liquide dans les milieux poreux. On pourrait ainsi approfondir notre compréhension de la superfluidité et de son lien avec la condensation de Bose.

## 1.5 Plan de la thèse

Le travail présenté dans cette thèse est motivé par les considérations reportées dans la partie 1.4. Notre but est de déterminer les changements possibles du spectre des excitations de l'<sup>4</sup>He liquide dans différents milieux poreux. Nous avons dans cette optique déterminé le facteur de structure dynamique de l'<sup>4</sup>He liquide dans divers matériaux poreux (Vycor, aéro-gel et Gel-Tek) par diffusion inélastique de neutrons.

Nous présenterons dans le chapitre deux le principe de la diffusion inélastique des neutrons ainsi que sa mise en pratique pour nos expériences. On présentera aussi dans ce chapitre les procédures mises en oeuvre pour transformer les données brutes issues des expériences en données exploitables.

Dans le chapitre trois, on décrira une étude du roton dans l'<sup>4</sup>He en volume à basse température. Dans le cadre de cette étude on introduira la théorie cinétique de Landau ainsi que ses développements ultérieurs.

Dans le chapitre quatre, nous discuterons les résultats de mesures de diffusion de neutrons à petit angle réalisées afin de caractériser les différents milieux poreux utilisés.

Le chapitre cinq sera dédié à une première approche de nos résultats de mesures sur l'<sup>4</sup>He liquide dans des milieux poreux. On y expliquera comment nous avons pu soustraire des spectres une contribution parasite de diffusion multiple. On présentera aussi dans ce chapitre la structure mesurée des multiphonons dans l'<sup>4</sup>He en volume à basse température.

On présentera enfin les résultats de nos mesures sur l'<sup>4</sup>He liquide dans des milieux poreux complètement remplis dans le chapitre six.

Le chapitre sept concernera une étude de la dépendance en remplissage du facteur de structure dynamique de l'<sup>4</sup>He liquide dans des échantillons d'aéro-gel et de Gel-Tek.



## CHAPITRE 2

### La diffusion inélastique des neutrons : principe et utilisation

Nous présentons dans ce chapitre le principe de la diffusion inélastique des neutrons ainsi que sa mise en oeuvre par deux techniques différentes : le spectromètre à trois axes et le spectromètre à temps de vol. Pour chacune de ces techniques, nous particularisons les configurations que nous avons utilisées pour nos expériences, ainsi que les traitements que nous avons dû appliquer aux données brutes afin de les transformer en résultats interprétables.

#### 2.1 Le facteur de structure dynamique

De façon générale, une expérience de diffusion inélastique de rayonnement (photons, électrons, neutrons) consiste à envoyer un faisceau incident de vecteur d'onde et d'énergie bien définis sur le système à étudier et à mesurer l'intensité du rayonnement diffusé par unité d'angle solide par unité d'énergie et par unité de flux incident. La quantité mesurée ainsi définie est la section efficace différentielle partielle et s'écrit dans le cadre de l'approximation de Born pour une diffusion de neutrons comme [Van Hove 1954, Marshall 1971, Squires 1978] :

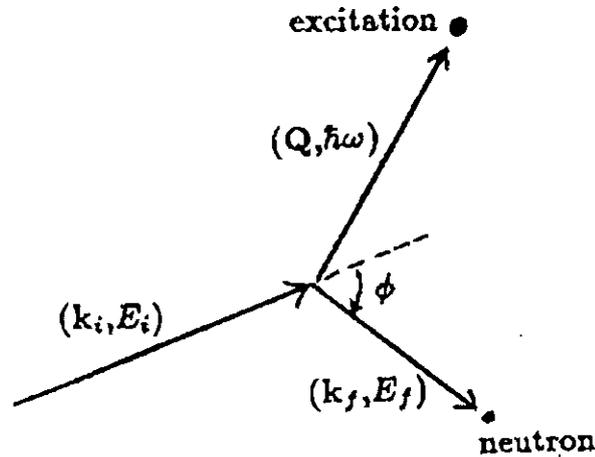
$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = N \frac{\sigma}{4\pi} \frac{k_f}{k_i} S(\vec{Q}, \omega) \quad (2.1)$$

où  $N$  est le nombre d'atomes dans le système étudié,  $\sigma$  est la section efficace totale de diffusion par atome et  $S(\vec{Q}, \omega)$  est le facteur de structure dynamique. Les amplitudes des vecteurs d'onde des neutrons respectivement incidents et diffusés (finaux) sont représentées par  $k_i$  et  $k_f$ .  $\hbar\vec{Q}$  est la quantité de mouvement transférée du neutron à l'échantillon dans le processus de diffusion, et  $\hbar\omega$  représente l'énergie transférée. Les équations de conservation de l'énergie et du moment pour un processus de diffusion de neutron s'expriment comme :

$$\vec{Q} = \vec{k}_i - \vec{k}_f \quad (2.2)$$

$$\hbar\omega = E_i - E_f = \frac{\hbar^2}{2m}(k_i^2 - k_f^2) \quad (2.3)$$

où les énergies cinétiques des neutrons respectivement incidents et diffusés sont représentées par  $E_i$  et  $E_f$  et où  $m$  représente la masse du neutron. Les équations (2.2) et (2.3) sont représentées graphiquement sur la figure 2.1.



**Figure 2.1 :** Représentation graphique de la conservation du moment et de l'énergie lors d'un processus de diffusion de neutrons.

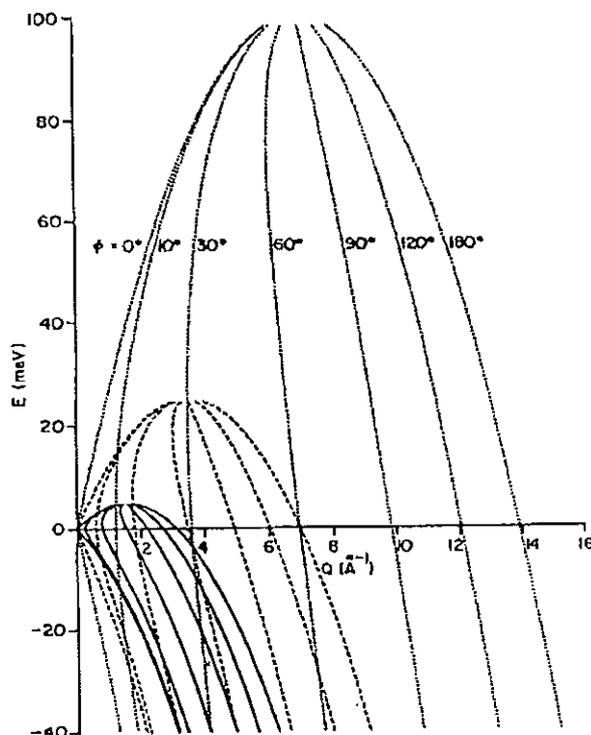
On peut réécrire l'équation (2.2) comme :

$$Q^2 = k_i^2 + k_f^2 - 2k_i k_f \cos \phi \quad (2.4)$$

ou :

$$\frac{\hbar^2}{2m} Q^2 = 2E_i - \hbar\omega - 2\sqrt{E_i(E_i - \hbar\omega)} \cos\phi \quad (2.5)$$

où  $\phi$  est l'angle de diffusion défini sur la figure 2.1.



**Figure 2.2 :** Domaines de transfert d'énergie et de vecteur d'onde  $Q$  accessibles par diffusion de neutrons d'énergies incidentes respectivement  $E_i = 5$  meV (lignes continues),  $E_i = 25$  meV (lignes en tirets) et  $E_i = 100$  meV (lignes pointillées) (tiré de [Price 1987]). Pour chaque énergie incidente les différentes lignes sont calculées pour des angles de diffusion  $\phi$  différents.

La relation (2.5) impose une contrainte cinématique sur les points accessibles dans le plan  $(Q, \hbar\omega)$  pour une énergie incidente et un angle de diffusion donnés. Cette contrainte cinématique est représentée sur la figure 2.2. On voit que les gammes en  $Q$  et  $\hbar\omega$  accessibles augmentent quand l'énergie incidente augmente. Toutefois les résolutions en vecteur d'onde et en énergie se dégradent généralement quand  $E_i$  augmente. Il faut donc choisir judicieusement la valeur de  $E_i$  en fonction du phénomène que l'on veut étudier. Dans notre cas les énergies mises en jeu sont de l'ordre de 1 meV et la gamme des vecteurs d'onde étudiés s'étend jusqu'à environ  $2 \text{ \AA}^{-1}$ , les neutrons froids ( $E_i \sim 5$  meV) sont donc les plus adaptés.

Comme dans l' $^4\text{He}$  liquide les noyaux sont tous identiques et sans spin, la diffusion des neutrons est entièrement cohérente. La section efficace de diffusion est de 1.34 barn (1 barn =  $10^{-24} \text{ cm}^2$ ) et l'absorption des neutrons froids par les noyaux d' $^4\text{He}$  est négligeable

[Sears 1984]. Le facteur de structure dynamique s'écrit alors comme la transformée de Fourier spatio-temporelle de la fonction de corrélation de paires dépendant du temps  $G(\vec{r}, t)$  :

$$S(\vec{Q}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int G(\vec{r}, t) \exp\{i(\vec{Q} \cdot \vec{r} - \omega t)\} d\vec{r} dt \quad (2.6)$$

$$G(\vec{r}, t) = \frac{1}{N} \int_{\text{échantillon}} \langle \rho(\vec{r}', 0) \rho(\vec{r}' + \vec{r}, t) \rangle d\vec{r}' \quad (2.7)$$

$$\rho(\vec{r}, t) = \sum_{i=1}^N \delta\{\vec{r} - \vec{R}_i(t)\} \quad (2.8)$$

$\rho(\vec{r}, t)$  est l'opérateur densité de particules et  $\vec{R}_i(t)$  est la position de l'atome numéro  $i$  au temps  $t$ .

Ces formules mettent en évidence que le facteur de structure dynamique est une quantité indépendante des propriétés du neutron et de son interaction avec le système. C'est une propriété du système diffuseur qui ne dépend que des positions et mouvements relatifs des particules du système et nous renseigne donc directement sur la nature des fluctuations de densité. Ainsi, si le système supporte des excitations collectives, comme c'est le cas dans l' $^4\text{He}$  liquide,  $S(\vec{Q}, \omega)$  traduira la probabilité qu'un neutron crée (ou détruit) une telle excitation de vecteur d'onde  $\vec{Q}$  et de fréquence  $\omega$  lors d'un processus de diffusion. Dans ce cas,  $S(\vec{Q}, \omega)$  est une mesure directe de la faculté qu'a le système de supporter une excitation d'un type donné.

Le principe de la balance détaillée exprime la relation de proportionnalité entre la probabilité de créer une excitation à un  $\vec{Q}$  donné (transfert d'énergie positif) et la probabilité de détruire cette même excitation (transfert d'énergie négatif) [Squires 1978] :

$$S(\vec{Q}, -\omega) = \exp(-\beta\hbar\omega) S(\vec{Q}, \omega) \quad (2.9)$$

où  $\beta = 1/k_B T$ , avec  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température de l'échantillon en Kelvin.

Étant donné que l' $^4\text{He}$  liquide est un système isotrope, la direction de  $\vec{Q}$  n'a pas d'importance, et on utilisera désormais indifféremment le module  $|\vec{Q}| = Q$  et le vecteur  $\vec{Q}$  pour désigner le vecteur d'onde.

Le facteur de structure dynamique vérifie des règles de somme, très utiles pour la normalisation des données expérimentales [Glyde 1994] :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} S(Q, \omega) d\omega = S(Q) \quad (2.10)$$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \hbar\omega S(Q, \omega) d\omega = \frac{\hbar^2 Q^2}{2m_4} \quad (2.11)$$

où  $S(Q)$  est le facteur de structure statique du liquide, qui est directement obtenu par diffusion de rayons X. La relation (2.11) est le premier moment, qui est valable pour tout système pour lequel les forces inter-atomiques ne dépendent pas des vitesses des particules. Dans cette expression  $m_4$  représente la masse d'un atome d' $^4\text{He}$  et  $\hbar^2 Q^2 / 2m_4$  représente l'énergie de recul d'un atome d' $^4\text{He}$ .

## 2.2 Spectromètre à trois axes

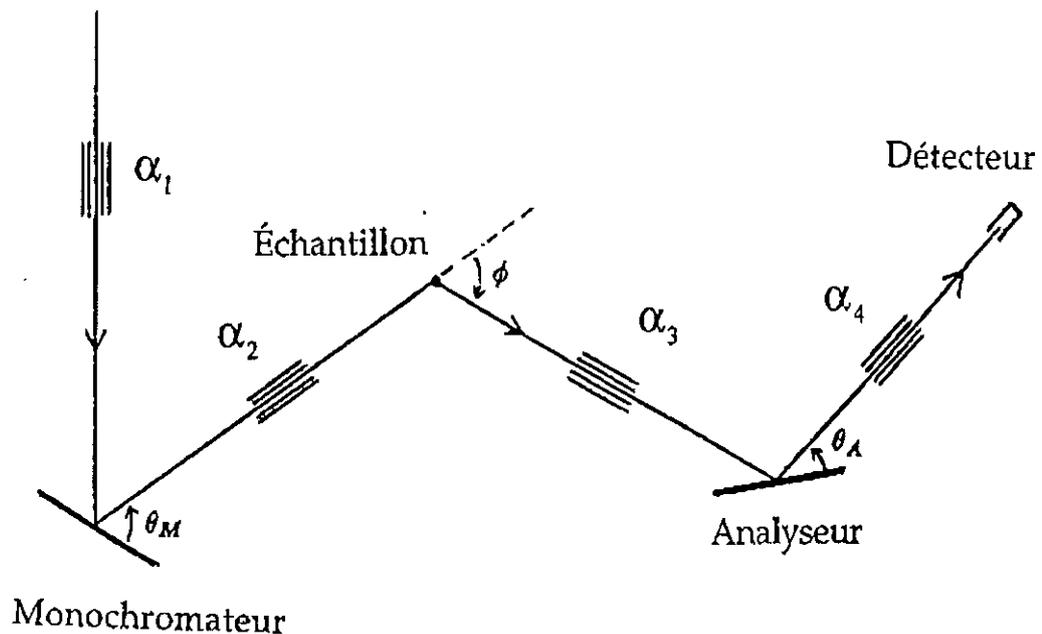
### 2.2.1 Description du fonctionnement

Pour réaliser une expérience de diffusion inélastique de neutrons, il faut être capable de produire un faisceau incident monochromatique de neutrons et de mesurer l'énergie du faisceau diffusé dans une direction donnée. Dans le cas du spectromètre à trois axes, les énergies des faisceaux de neutrons incident et diffusé sont déterminées par réflexion de Bragg sur les cristaux respectivement monochromateur et analyseur comme représenté sur la figure 2.3. Pour nos expériences sur le spectromètre IN12, situé sur un guide froid au Réacteur à Haut-Flux (RHF) de l'Institut Laue-Langevin (ILL), nous avons utilisé la réflexion du plan (0 0 2) de cristaux de graphite pyrolytique (de distance inter-réticulaire  $d=3.355 \text{ \AA}$ ).

On change de vecteur d'onde en faisant tourner le monochromateur sur lui-même, c'est le premier axe de rotation. On sélectionne ainsi des neutrons incidents de longueur d'onde, énergie et vecteur d'onde dans les intervalles :

$$\begin{aligned} 2.4 \text{ \AA} &< \lambda < 6.0 \text{ \AA} \\ 2.3 \text{ meV} &< E_i < 14 \text{ meV} \\ 1.05 \text{ \AA}^{-1} &< k_i < 2.6 \text{ \AA}^{-1} \end{aligned}$$

Du fait de la sélection d'une longueur d'onde par la loi de Bragg ( $\lambda = 2d \sin \theta_M$ ), on extrait également du faisceau incident les harmoniques  $\lambda/n$  existant dans le spectre du guide de neutrons. Ces neutrons sont susceptibles d'échanger moment et énergie avec l'échantillon et d'introduire des phénomènes parasites dans les résultats. Afin d'atténuer la contribution de ces neutrons, nous avons utilisé lorsque cela était possible un filtre de beryllium (Be) polycristallin refroidi à l'azote (N<sub>2</sub>) liquide de 10 cm d'épaisseur. Ce type de filtre permet d'éliminer les neutrons de vecteur d'onde :  $k_i > 1.57 \text{ \AA}^{-1}$ .



**Figure 2.3 :** Représentation schématique d'un spectromètre à trois axes dans la configuration W (ou 1 -1 1). Les symboles  $\alpha_i$  représentent les différents collimateurs.

Afin de déterminer la section efficace partielle de diffusion, on sélectionne un vecteur d'onde de neutrons final par le choix d'une direction de diffusion (rotation d'un angle  $\phi$  par rapport au faisceau incident de l'ensemble analyseur-détecteur, cela définit le deuxième axe de rotation) et d'une énergie finale (par rotation du cristal analyseur sur lui-même ( $\theta_A$ ) et du détecteur d'un angle double autour de l'analyseur ( $2\theta_A$ ), c'est le troisième axe de rotation).

La détection des neutrons se fait dans un compteur proportionnel à gaz (à <sup>3</sup>He sur IN12). Les neutrons sont absorbés par les noyaux du système détecteur, qui ensuite se désintègrent en générant des particules ionisantes (du tritium et des protons dans le cas de l'<sup>3</sup>He). Les électrons alors créés par ionisation du gaz sont multipliés puis détectés sur le fil de l'anode maintenu sous haute tension (typiquement 1-4 kV). Ainsi chaque neutron absorbé crée un "pulse" de courant. Un système électronique permet de compter les pulses, et donc le

nombre de neutrons absorbés dans le détecteur. On enregistre ainsi l'intensité diffusée en un point  $(\hbar\omega, \vec{Q})$  pendant un certain temps (typiquement entre une seconde et trente minutes). Étant donné que le flux de neutrons incidents peut varier au cours du temps, la durée de chaque mesure est déterminée pour un nombre constant de neutrons incidents. Ceux-ci sont comptés par un détecteur de faible efficacité (le moniteur) placé sur le faisceau incident. Sur le trajet des neutrons on dispose aussi des collimateurs (ici des fentes de Sollers constituées d'un grand nombre de feuilles absorbantes parallèles) pour limiter la divergence horizontale des faisceaux de neutrons afin d'améliorer la résolution et de diminuer le bruit de fond.

Du fait des imperfections de l'appareil, au lieu de définir un point de mesure  $(\vec{Q}_0, \omega_0)$ , on définit un volume (un ellipsoïde selon l'approximation de Cooper et Nathans [Cooper 1967]) dans l'espace  $(\vec{Q}, \omega)$  centré sur  $(\vec{Q}_0, \omega_0)$ , et décrit par la fonction de résolution. Celle-ci est une fonction des divergences horizontales et verticales et des mosaïcités des cristaux monochromateur et analyseur [Hennion 1974]. Le signal observé est alors proportionnel à la convolution à quatre dimensions de la fonction de diffusion  $S(\vec{Q}, \omega)$  et de la fonction de résolution  $R(\vec{Q}, \omega)$ :

$$I(\vec{Q}_0, \omega_0) \propto \int R(\vec{Q} - \vec{Q}_0, \omega - \omega_0) S(\vec{Q}, \omega) d\vec{Q} d\omega \quad (2.12)$$

Dans l' $^4\text{He}$  superfluide à basse température ( $T < 1.2$  K), on peut décrire le pic aigu de la fonction de diffusion par une fonction de Dirac suivant la courbe de dispersion phonon-roton. En effet, Andersen et collaborateurs [Andersen 1996] ont mesuré la largeur de ce pic au vecteur d'onde du roton ( $Q_r = 1.925 \text{ \AA}^{-1}$ ) avec une très bonne résolution ( $< 1 \text{ \mu eV}$ ) en utilisant une technique de rétrodiffusion de neutrons. Ils trouvent que pour une température d'environ 0.83 K, la largeur du pic (FWHM) est de  $1.5 \pm 0.6 \text{ \mu eV}$ , confirmant ainsi le résultat obtenu par Mezei [Mezei 1980] avec une technique d'écho de spin de neutrons. Cette largeur intrinsèque est très inférieure aux largeurs mesurées à basse température dans notre étude (entre 30 et 120  $\text{\mu eV}$ ), résultant de la convolution du pic de  $S(Q, \omega)$  avec la fonction de résolution. Par conséquent les pics observés à basse température peuvent être considérés comme une mesure directe de la fonction de résolution  $R(Q, \omega)$  pour les différentes valeurs de  $Q$  étudiées. La connaissance de la fonction de résolution nous permettra par la suite d'obtenir les paramètres intrinsèques permettant de décrire  $S(Q, \omega)$ .

Le spectromètre trois-axes est un appareil dont le principe est relativement simple mais dont l'utilisation se montre délicate du fait du grand nombre de paramètres sur lesquels il faut faire un choix. De ces choix dépendra la qualité des résultats et donc chaque configu-

ration expérimentale est à adapter en fonction du phénomène physique étudié. Pour cela, il est très utile de simuler le comportement du spectromètre avant de commencer toute mesure (avec les logiciels SIM et RESCAL sur IN12). On présentera dans la suite trois configurations expérimentales spécifiques que nous avons utilisées et que nous avons essayé d'optimiser.

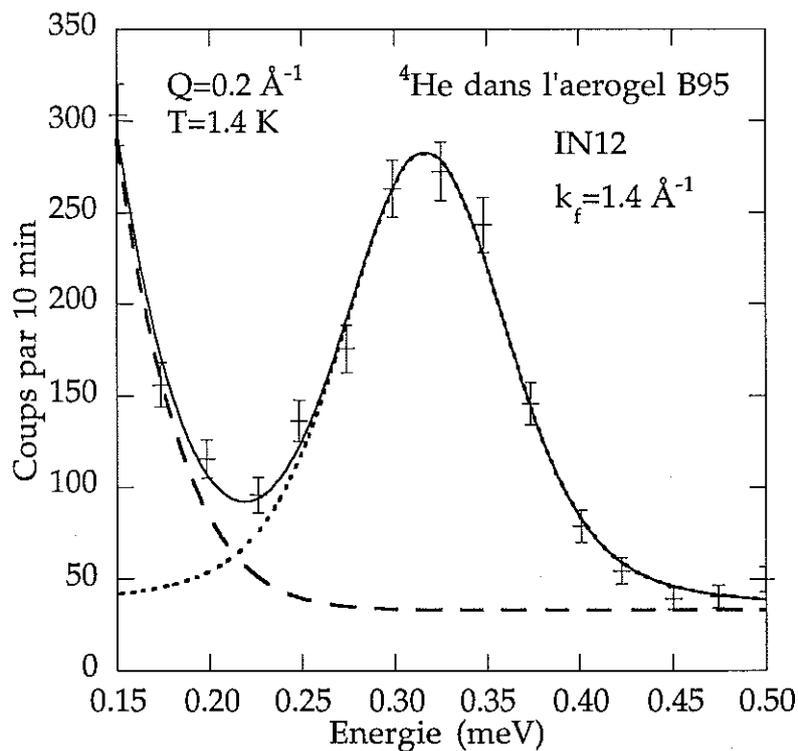
### 2.2.2 $^4\text{He}$ liquide dans l'aérogel de Beamish (B95)

#### Configuration expérimentale

Le but de cette expérience était de déterminer la dépendance en température des excitations de l' $^4\text{He}$  sous sa pression de vapeur saturante dans un aérogel d'environ 95% de porosité complètement rempli pour différentes valeurs caractéristiques de  $Q$  (dans la région des phonons pour le vecteur d'onde minimum accessible à  $0.2 \text{ \AA}^{-1}$ , au maxon à  $1.1 \text{ \AA}^{-1}$ , au roton à  $1.92 \text{ \AA}^{-1}$  et après le roton à  $2.4 \text{ \AA}^{-1}$ ). L'échantillon utilisé est décrit dans le chapitre 4 (échantillon d'aérogel B95). Il a été synthétisé par John Beamish et collaborateurs (University of Alberta, Canada) directement dans la cellule utilisée pour la diffusion inélastique de neutrons de façon à ne pas laisser d'espace vide entre l'échantillon et la paroi. La cellule en acier inoxydable est cylindrique (diamètre interne=13.6 mm, épaisseur des parois=0.2 mm et hauteur=52 mm). Celle-ci peut contenir un volume d' $^4\text{He}$  liquide :  $V_l=7.2 \text{ cm}^3$ . Elle est surmontée d'un bouchon en cuivre maintenu serré sur la cellule au moyen d'une bride en inox. L'étanchéité est réalisée au moyen d'un joint en indium. Le capillaire de l'injection d'hélium a un diamètre interne de 0.2 mm. La cellule est montée dans un cryostat à circulation d' $^3\text{He}$ .

Pour réaliser les balayages en énergie à  $Q$  constant, on a choisi de fixer la valeur de  $k_f$  en maintenant l'orientation de l'analyseur ( $\theta_A$ ) constante. A cause de problèmes de configuration spatiale du spectromètre (collision avec les murs), on utilise la configuration 1 1 -1 (diffusion à gauche) de façon à pouvoir atteindre  $Q=2.4 \text{ \AA}^{-1}$ . La valeur de  $k_f=1.4 \text{ \AA}^{-1}$  est déterminée de manière à pouvoir mesurer pour des transferts d'énergie suffisamment faibles à  $Q=2.4 \text{ \AA}^{-1}$ . Le monochromateur est utilisé en position focalisante dans le plan vertical afin de renforcer le flux au niveau de l'échantillon. Au cours des balayages, on fait varier  $\phi$  et  $k_i$  simultanément de façon à conserver la même valeur de  $Q$ . Pour augmenter le transfert d'énergie  $\hbar\omega$ , selon la relation (2.3) il faut augmenter  $k_i$ . Si on veut accéder à des transferts d'énergie supérieurs à 0.9 meV, il faut augmenter  $k_i$  au-delà de  $1.55 \text{ \AA}^{-1}$ , on ne peut dès lors plus utiliser le filtre Be sur le faisceau incident. On détecte alors dans le moniteur les neutrons issus des diffusions de Bragg d'ordre supérieur provenant du monochromateur. Cette contamination varie avec  $k_i$  et il faudra en tenir compte en appliquant une correction aux don-

nées obtenues. On utilise toutefois le filtre Be en le plaçant sur le faisceau diffusé, de façon à ne pas détecter de neutrons avec  $k_f > 1.57 \text{ \AA}^{-1}$ . En augmentant  $k_i$ , on a accès à un plus grand volume de l'espace des phases et par conséquent la résolution se détériore en même temps qu'augmente l'intensité disponible pour la diffusion. Cette situation correspond bien au type de spectre que l'on veut mesurer : un pic aigu à basse énergie (où on a besoin d'une bonne résolution) et une composante plus faible à plus haute énergie (pour laquelle on a besoin d'amplifier le signal). Les collimateurs du monochromateur au détecteur sont  $38'$ ,  $38'$  et  $60'$ . On les a choisis de façon à trouver un bon compromis entre la résolution et le flux de neutrons. Les différents paramètres de la configuration expérimentale utilisée sont rassemblés dans le tableau 2.1. Le plus petit vecteur d'onde accessible est  $Q=0.2 \text{ \AA}^{-1}$ . On a représenté l'intensité mesurée à ce vecteur d'onde sur la figure 2.4. En-dessous de cette valeur de  $Q$  le pic du phonon est trop proche du pic élastique (provenant de la diffusion par l'aerogel, la cellule porte-échantillon et le cryostat) pour être résolu.



**Figure 2.4** : Intensité diffusée dans la région des phonons pour  $Q=0.2 \text{ \AA}^{-1}$  par l'<sup>4</sup>He dans l'aerogel de Beamish (B95). Le bruit de fond n'a pas été soustrait. La ligne en tirets représente la queue du pic élastique.

On a collecté des données dans cette configuration aux différents vecteurs d'onde cités ( $0.2, 1.1, 1.92$  et  $2.4 \text{ \AA}^{-1}$ ) pour six températures allant de  $0.5 \text{ K}$  dans la phase superfluide à  $2.25 \text{ K}$  dans la phase normale. La température, mesurée avec une résistance calibrée

d'oxyde de ruthenium ( $\text{RuO}_2$ ), était stable dans un intervalle d'environ 5 mK. On a mesuré la diffusion par la cellule vide (aerogel seul) à basse température (0.5 K). Dans la même configuration on a aussi mesuré la diffusion par  $^4\text{He}$  bulk à basse température (0.5 K) dans une cellule en aluminium de dimensions identiques à celle contenant l'aerogel. De cette façon, on dispose d'une part d'une mesure de la résolution en énergie et d'autre part d'une mesure de référence à laquelle on peut comparer les résultats obtenus pour  $^4\text{He}$  dans l'aerogel. En particulier, pour déterminer un éventuel décalage du pic de  $S(Q, \omega)$  on s'affranchit d'une calibration absolue en énergie du spectromètre. La résolution en énergie pour une diffusion élastique est donnée par ailleurs par le pic de diffusion incohérente d'un échantillon de vanadium. On trouve que la fonction de résolution est bien décrite par une gaussienne dont la largeur à mi-hauteur est à peu près indépendante du transfert d'énergie. Celle-ci (largeur totale) est comprise entre 110  $\mu\text{eV}$  pour une diffusion élastique et 120  $\mu\text{eV}$  au niveau du maxon. L'intensité mesurée au maximum du pic du roton est d'environ 4.3 coups par seconde.

#### Traitement des données

Afin d'obtenir la fonction de diffusion (convoluée avec la résolution), on a appliqué aux données brutes un certain nombre d'opérations détaillées ci-dessous.

- Soustraction du bruit de fond.

Pour déterminer le bruit de fond, on utilise la diffusion par la cellule vide mesurée à basse température pour chaque vecteur d'onde. Celle-ci est constitué d'un pic élastique et d'un bruit de fond à peu près constant. On choisit d'appliquer une soustraction point par point sur le pic élastique ( $|\omega| < 0.2 \text{ meV}$ ) et de soustraire un bruit de fond constant (4.2 coups par minute) au-delà.

- Correction de la contamination du moniteur.

Comme expliqué plus haut, on détecte dans le moniteur les neutrons issus des réflexions d'ordre supérieur par le monochromateur. Sur IN12, le rapport entre la contribution de tous les neutrons diffusés dans une direction donnée par le monochromateur ( $nk_i$ ) et la contribution des neutrons de premier ordre ( $k_i$ ) diffusés dans la même direction est ajusté avec la fonction déterminée expérimentalement :

$$R_C(k_i) = 1 + 137.5 \exp(-6.1k_i) \quad (2.13)$$

Pour corriger les valeurs mesurées de cet effet, on divise les valeurs du moniteur par le rapport de contamination  $R_C(k_i)$ .

- Normalisation des données par rapport au moniteur.

Etant donné que le moniteur a une efficacité proportionnelle à  $1/k_i$ , et que  $k_f$  est constant, la normalisation au moniteur conduit à une intensité directement proportionnelle au facteur de structure dynamique (cf. (2.1)) :

$$I \propto k_i \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} \propto S(Q, \omega) \quad (2.14)$$

- Normalisation absolue des données.

Il est possible de calculer le facteur de normalisation directement à partir d'une mesure de diffusion par une quantité de matière maîtrisée (V,  $^4\text{He}$ ,...). Une méthode alternative consiste à calculer  $S(Q)$  (cf. (2.10)) à partir de nos données et à ajuster le facteur de normalisation de façon à retrouver les valeurs issues des mesures de rayon X. Malheureusement, nos intervalles de mesure en énergie ne sont pas assez étendus pour intégrer toute l'intensité diffusée. On se limite alors à une normalisation par rapport à d'anciennes données absolues, en calculant l'intensité intégrée diffusée sur de mêmes intervalles en énergie. Pour cela, on utilise les données de Ken Andersen [Andersen 1991, 1994].

### 2.2.3 Etude du roton à haute résolution ( $^4\text{He}$ en volume)

#### Configuration expérimentale

À basse température ( $T < 1.2$  K), Ken Andersen et collaborateurs [Andersen 1996] ont montré que l'énergie du roton ( $Q = 1.925 \text{ \AA}^{-1}$ ) varie plus lentement que ce qui est prévu théoriquement [Landau 1949, Bedell 1984]. Le but de notre expérience consistait à vérifier ce comportement dans une gamme de température intermédiaire (entre 1.2 et 1.5 K) où l'énergie du roton change de régime. Dans cette gamme l'énergie varie seulement de quelques  $\mu\text{eV}$  et nous avons donc voulu obtenir la meilleure résolution en énergie possible sur une région de transfert en énergie suffisamment large pour nous permettre une analyse de la dépendance en température de la forme de raie.

Pour cela nous avons utilisé une cellule en aluminium de diamètre interne  $\phi = 25$  mm et de hauteur 57 mm, montée sur le même cryostat à circulation d' $^3\text{He}$  que dans l'expérience décrite précédemment. Le volume d' $^4\text{He}$  liquide contenu par la cellule était donc d'environ  $28 \text{ cm}^3$ . Des disques de cadmium régulièrement espacés (à environ 11 mm les uns des autres) étaient disposés dans la cellule afin de réduire la diffusion multiple (processus corres-

pendant ici à la création de plusieurs excitations par un même neutron subissant plusieurs processus de diffusion consécutifs).

Afin de réduire les incertitudes dans la détermination de l'énergie dues à des erreurs de positionnement du spectromètre, nous avons choisi de déplacer le moins possible ses différents éléments. Pour cela nous avons étudié l'intensité diffusée à un angle constant ( $\phi = -124.38^\circ$ ), en utilisant un vecteur d'onde incident constant  $k_i = 1.176 \text{ \AA}^{-1}$ . De cette façon, on a réalisé les balayages en énergie en déplaçant uniquement l'analyseur et le détecteur. Dans ce cas, la résolution en énergie change en fonction de la position de l'analyseur et l'intensité mesurée est de la forme :

$$I \propto \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\theta_A} \quad (2.15)$$

Ce que l'on peut écrire en utilisant la loi de Bragg ( $\pi/k_f = d \sin \theta_A$ ) et (2.1) :

$$I \propto k_f^3 \cot(\theta_A) S(Q, \omega) \quad (2.16)$$

Pour être tout à fait rigoureux il faut aussi considérer la variation avec  $k_f$  de la réflectivité de l'analyseur et de l'efficacité du détecteur. Mais, dans notre cas  $k_f$  varie relativement peu lors des balayages en énergie (typiquement entre  $0.99$  et  $1.045 \text{ \AA}^{-1}$ ) et on négligera ces corrections. De façon générale, dans ce type de mesure à  $k_i$  constant la largeur de la résolution en énergie et le volume de l'espace des phases décroissent en fonction du transfert en énergie. Cette configuration est donc plus adaptée à une situation où on a besoin de meilleures résolutions à grande énergie et de meilleurs taux de comptage à basse énergie.

Etant donné que  $k_f$  varie alors que  $k_i$  et  $\phi$  sont constants, on voit d'après (2.4) que  $Q$  varie lors des balayages en énergie. Typiquement  $Q$  varie de  $1.955 \text{ \AA}^{-1}$  pour  $\hbar\omega = 0.6 \text{ meV}$  à  $1.915 \text{ \AA}^{-1}$  pour  $\hbar\omega = 0.8 \text{ meV}$ . Cet effet peut contribuer à un élargissement artificiel du pic du roton. Toutefois, étant donné que la correction jacobienne à appliquer aux largeurs de raies observées dépend de la pente de la courbe de dispersion [Waller 1952], qui est nulle au roton, on la considère comme négligeable.

Pour cette mesure on a utilisé le monochromateur en position focalisante dans le plan vertical et des collimations de  $20'$  entre chaque élément du spectromètre. On s'est placé en configuration W. Les différents paramètres expérimentaux sont rassemblés dans le tableau 2.1. La mesure à la plus basse température atteinte ( $\approx 0.5 \text{ K}$ ) nous donne, comme expliqué plus haut, la résolution instrumentale. On trouve que celle-ci a une forme quasi-gaussienne

avec un peu d'intensité dans les ailes, de largeur totale à mi-hauteur  $29 \mu\text{eV}$ . L'intensité mesurée au maximum du roton à 0.5 K est d'environ 1 coup par seconde. On a mesuré dans ces conditions l'intensité diffusée au niveau du roton pour dix températures entre 0.5 K dans la phase superfluide et 2.2 K dans la phase normale. On a aussi enregistré l'intensité diffusée par la cellule vide à basse température pour avoir une mesure du bruit de fond.

On a régulé la température au moyen d'une résistance en oxyde de ruthenium ( $R_3$ , différente de celle utilisée dans l'expérience décrite ci-dessus). Etant donné que le but de l'expérience était de détecter un effet fin sur la dépendance en température de l'énergie du roton, nous avons, après l'expérience, vérifié la calibration de la résistance  $R_3$ . Pour cela, nous avons fait plusieurs séries de mesures de la pression de vapeur saturante de  $^3\text{He}$  liquide dans la même cellule que celle utilisée pendant l'expérience, sans avoir démonté le cryostat. On a fait ces mesures avec des détecteurs de pression très sensibles (deux baratrons "1000 torr" et un baratron "10 torr" pour les plus basses températures ( $<1 \text{ K}$ )). On a évalué les corrections à appliquer à nos mesures du fait des effets thermo-moléculaires (le diamètre du capillaire utilisé est 2 mm) et de l'effet de la gravité et on a trouvé que celles-ci sont négligeables. On a ainsi obtenu une mesure de la température absolue au niveau de la cellule avec une précision d'environ 10 mK, ce qui nous a permis de corriger notre échelle de température suivant l'expression :

$$T = 1.087T_3 - 0.067.$$

### Traitement des données

Comme plus haut, on effectue un certain nombre d'opérations sur les données brutes afin d'obtenir le facteur de structure dynamique (convolué avec la résolution expérimentale).

- Soustraction du bruit de fond.

On a soustrait un bruit de fond constant d'environ 2.4 coups par minute.

- Variation du volume de résolution au cours des scans.

Pour corriger l'effet du balayage de l'angle de l'analyseur, on divise l'intensité par un facteur  $k_f^3 \cot \theta_A$ . On obtient ainsi des spectres directement proportionnels au facteur de structure dynamique  $S(Q, \omega)$ .

- Normalisation.

On procède comme expliqué plus haut, c'est à dire en calculant l'intensité intégrée diffusée sur un intervalle en énergie donné et on normalise ces valeurs par rapport à celles issues des données de Ken Andersen [Andersen 1991,1994].

#### 2.2.4 $^4\text{He}$ liquide dans l'aerogel de Mulders (M87.2)

##### Configuration expérimentale

Le but de cette expérience était l'étude de la dépendance en température du pic du roton ( $Q=1.925 \text{ \AA}^{-1}$ ) dans un échantillon d'aerogel d'environ 87% de porosité complètement rempli. L'échantillon d'aerogel a été synthétisé par Norbert Mulders (University of Delaware, USA) et on le dénommera par la suite M87.2. On a caractérisé celui-ci par diffusion de neutrons à petit angle sur le spectromètre IN12 et les résultats obtenus sont présentés dans le chapitre 4. Comme dans le cas de l'aerogel Beamish l'échantillon a été synthétisé directement dans la cellule utilisée pour la diffusion inélastique de neutrons. Celle-ci, en acier inoxydable, est cylindrique (diamètre interne=13.6 mm, épaisseur des parois=0.2 mm, hauteur=45 mm) et a été montée comme décrit plus haut dans un cryostat à circulation d' $^3\text{He}$ .

Le volume disponible pour l' $^4\text{He}$  liquide est :  $V_l \approx 5.7 \text{ cm}^3$ , soit presque cinq fois moins que dans l'expérience sur le roton à haute résolution. Si on se place dans les mêmes conditions de mesure, l'intensité diffusée sera aussi réduite d'environ un facteur cinq, et les temps de comptage de façon à avoir une statistique correcte ( $\Delta N/N \leq 3\%$ ) deviennent prohibitifs. On a donc augmenté les collimations à  $40'$ ,  $40'$  et  $60'$  en conservant la configuration W du spectromètre. De plus, nous avons augmenté  $k_i$  à  $1.22 \text{ \AA}^{-1}$ , de façon à pouvoir atteindre des transferts en énergie plus élevés (jusqu'à  $\hbar\omega \approx 1.0 \text{ meV}$ ), ceci afin de nous permettre une analyse de la forme de raie y compris à "haute" température où le pic est fortement élargi. Dans ces conditions, en considérant que le confinement dans l'aerogel n'affecte pas significativement la largeur du roton, on détermine la résolution instrumentale à la plus basse température mesurée (0.9 K). Celle-ci a pour largeur totale à mi-hauteur  $46 \mu\text{eV}$ . Les paramètres expérimentaux sont reportés dans le tableau 2.1. On a ainsi mesuré la dépendance en température du pic du roton pour dix températures entre 0.9 K dans la phase superfluide et 2.25 K dans la phase normale. On a réglé la température au moyen d'une résistance en carbone dont nous avons vérifié la calibration. Au maximum du roton, on mesure une intensité d'environ 1.3 coups par seconde à basse température. De la même façon, on a mesuré la diffusion au niveau du roton à 0.45 K pour cinq remplissages intermédiaires entre 30% et 74% du remplissage total. On a aussi, à 0.85 K, mesuré les excitations pour six vecteurs d'onde

autour du roton entre  $1.75 \text{ \AA}^{-1}$  et  $2.10 \text{ \AA}^{-1}$ . Pour  $Q=2.05$  et  $2.10 \text{ \AA}^{-1}$ , on a augmenté  $k_i$  à respectivement  $1.29$  et  $1.34 \text{ \AA}^{-1}$ , de façon à accéder à des transferts d'énergie plus élevés.

### Traitement des données

On a appliqué un traitement similaire à celui décrit plus haut pour l'expérience sur le roton à haute résolution.

Échantillon	Aerogel B95	Aerogel M87.2	$^4\text{He}$ en volume
$k$ ( $\text{\AA}^{-1}$ ) fixé	$k_f = 1.4$	$k_i = 1.22$	$k_i = 1.176$
Configuration	1 1 -1	1 -1 1	1 -1 1
$\alpha_1$	$52'/k_i$	43'	44'
$\alpha_2$	38'	40'	20'
$\alpha_3$	38'	40'	20'
$\alpha_4$	60'	60'	20'
Filtre Be	après l'échantillon	avant l'échantillon	avant l'échantillon
Résolution ( $\mu\text{eV}$ )	110	46	29

**Tableau 2.1** : Récapitulatif des configurations expérimentales des expériences réalisées sur le spectromètre à trois-axes IN12. La résolution (dernière ligne) correspond à la largeur totale à mi-hauteur du roton ( $Q=1.95 \text{ \AA}^{-1}$ ) mesurée à basse température ( $T=0.5 \text{ K}$ ) dans l' $^4\text{He}$  en volume.

## 2.3 Spectromètres à temps de vol

### 2.3.1 Description du fonctionnement

Dans une expérience sur un spectromètre à temps de vol (à géométrie directe) on envoie un faisceau monochromatique pulsé de neutrons sur l'échantillon à étudier. On détecte simultanément les neutrons diffusés dans un grand nombre de détecteurs couvrant un large domaine angulaire. Dans chaque détecteur, on compte les neutrons absorbés en fonction de leur temps de trajet à partir de l'échantillon. On peut obtenir ainsi la distribution en vitesse, et donc en énergie, des neutrons diffusés. Contrairement au spectromètre à trois axes, pour lequel on fait une mesure point par point dans l'espace  $(Q, \hbar\omega)$ , on scrute ici en une seule mesure un grand domaine de cet espace. Sur le spectromètre IN6, pour nos expériences, chaque acquisition des données avait une durée typique d'environ 6 heures. Nous avons utilisé deux spectromètres à temps de vol utilisant deux techniques différentes. Nous présentons ici brièvement le fonctionnement de ces deux instruments.

#### Spectromètre IN6

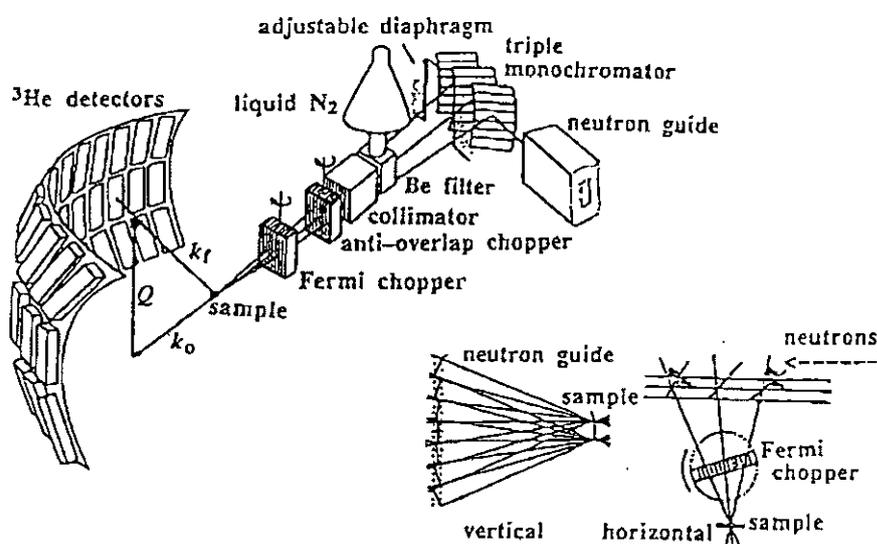
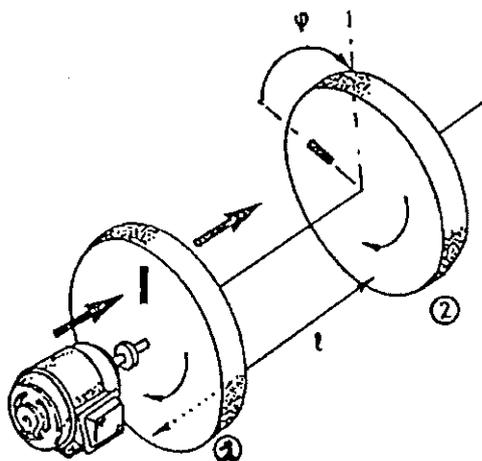


Figure 2.5 : Représentation schématique du spectromètre à temps de vol IN6. Les deux schémas en bas à droite représentent respectivement la focalisation dans le plan vertical du faisceau de neutrons au niveau de l'échantillon ("vertical") et la focalisation dans le plan horizontal du faisceau de neutrons au niveau de l'échantillon ainsi que le principe de fonctionnement du chopper de Fermi ("horizontal") (tiré de "The Yellow book, Guide to neutron research facilities at the ILL").

Sur le spectromètre IN6 (voir fig. 2.5), situé sur un guide de neutrons froids au Réacteur à Haut Flux de l'Institut Laue-Langevin, les fonctions de monochromatisation et de création de bouffées de neutrons sont dissociées [Blanc 1983]. Tout d'abord, trois faisceaux monochromatiques de neutrons de longueurs d'onde très proches sont extraits de la distribution maxwellienne du guide par réflexion de Bragg par un ensemble de trois monochromateurs placés l'un après l'autre en position de focalisation horizontale au niveau de l'échantillon. Chaque monochromateur est constitué de sept plaquettes de graphite pyrolytique orientées de façon à focaliser verticalement le faisceau de neutrons diffusé. Afin de ne pas perturber le fonctionnement des autres instruments situés plus en aval sur le guide, on ne peut sélectionner que quatre longueurs d'onde comprises entre 4.1 et 5.9 Å. On s'affranchit des neutrons issus des harmoniques d'ordre supérieur au moyen d'un filtre au beryllium refroidi à l'azote liquide. Ensuite, les trois faisceaux obtenus sont pulsés par l'utilisation d'un chopper de Fermi (collimateur tournant constitué d'un ensemble de feuilles verticales d'un matériau fortement absorbant, ici du gadolinium ( $e=0.025$  mm), séparé de feuilles d'aluminium ( $e=0.2$  mm)) tournant de telle façon à laisser passer en premier les neutrons les plus lents issus du troisième monochromateur. La vitesse de rotation du chopper est ajustée de façon à ce que tous les neutrons diffusés élastiquement au niveau de l'échantillon soient détectés au même moment. C'est le principe de la focalisation en temps, qui permet d'augmenter de façon importante le flux de neutrons incident sans trop détériorer la résolution en énergie. En adaptant la vitesse du chopper, il est possible de choisir de focaliser les neutrons pour un transfert d'énergie donné  $\hbar\omega$ , mais cela se fait au détriment de la résolution pour les autres transferts d'énergie (en particulier, la résolution élastique est fortement détériorée). Après diffusion par l'échantillon, les neutrons passent à travers un collimateur oscillant, qui permet de ne détecter que les neutrons provenant directement de la zone échantillon. Les neutrons traversent ensuite une enceinte étanche contenant de l'hélium pur (la base de vol), pour éviter la diffusion par l'air, puis sont détectés à environ 2.5 m de l'échantillon, dans un ensemble de 337 détecteurs à  $^3\text{He}$  couvrant un domaine angulaire de  $-10^\circ$  à  $-115^\circ$  par rapport au faisceau incident dans le plan horizontal et de  $\pm 15^\circ$  dans le plan vertical, ce qui conduit à une surface de détection d'environ 3 m<sup>2</sup>.

### Spectromètre Mibemol

Sur le spectromètre Mibemol, situé en extrémité de guide froid au réacteur Orphée du Laboratoire Léon Brillouin (LLB), les fonctions de monochromatisation et de production de bouffées de neutrons sont associées. Ici un faisceau blanc de neutrons arrive sur un système de choppers (dans ce cas des disques tournants faits d'un matériau fortement absorbant dans lesquels on a pratiqué une fente). Deux disques situés à une distance  $L$  l'un de l'autre qui ont les axes de leurs fentes décalés d'un angle constant  $\varphi$  tournent dans le même sens à la même vitesse  $\omega_r$  (voir fig. 2.6), ne laissant passer que les neutrons qui auront parcouru la distance  $L$  dans le temps  $t = \varphi / 2\pi\omega_r$ , c'est à dire les neutrons de vitesse  $v = L/t = 2\pi\omega_r L / \varphi$ . Pour changer de vitesse, et donc de longueur d'onde, il suffit donc de faire varier le déphasage entre les deux fentes.



**Figure 2.6 :** Principe de fonctionnement d'un chopper à deux disques tournants (tiré de "Introduction à la spectrométrie neutronique, Cours donnés au CEN Saclay, 09/10 1974").

En fait sur Mibemol, chaque chopper individuel décrit ici est composé de deux disques tournant en sens inverse à  $\omega_r = 10000$  tours par minute. Du fait du principe de la sélection des vitesses, on laissera aussi passer les neutrons avec  $v = 2\pi\omega_r L / (\varphi + 2\pi n)$  où  $n$  est un entier. Pour les filtrer, on interpose un troisième chopper tournant à 10000 tours par minute entre les deux systèmes, et correctement (dé)phasé pour laisser passer les neutrons désirés. Enfin un quatrième chopper, aussi interposé entre les deux premiers, est utilisé afin de définir le taux de répétition des bouffées de façon à ne pas avoir de chevauchement entre les neutrons détectés provenant de deux bouffées successives. Après diffusion par l'échantillon, les neutrons traversent une enceinte remplie d' $^4\text{He}$  avant d'être détectés à 3.58 m de l'échantillon dans un ensemble de 300 détecteurs à  $^3\text{He}$ , couvrant un domaine angulaire entre  $+23.5^\circ$  et

+141.8° par rapport au faisceau incident dans le plan horizontal et d'environ  $\pm 20^\circ$  dans le plan vertical.

### Détection

Dans les deux cas, un signal permet de connaître l'instant où la bouffée de neutrons passe à travers un chopper donné. Après un certain laps de temps, on commence à compter les neutrons provenant d'une bouffée donnée et absorbés dans les détecteurs. Le stockage de l'information délivrée par chaque détecteur se fait dans un analyseur multicanaux. Le nombre  $N_s$  de neutrons comptés dans un détecteur donné, couvrant un angle solide  $\Delta\Omega$ , et dans un canal donné  $n$  de largeur  $\Delta t$  (correspondant à une énergie finale  $E_f$ ) s'écrit alors comme :

$$N_s = \left[ N_i f(E_i) \frac{d^2\sigma}{d\Omega dn} + N_b \right] \eta(E_f) \Delta\Omega \Delta t + N'_b \quad (2.17)$$

où  $N_i$  est le nombre de neutrons incidents sur l'échantillon,  $N_b$  et  $N'_b$  représentent les bruits de fond d'origine respectivement neutronique et cosmique,  $\eta(E_f)$  l'efficacité du détecteur, et  $f(E_i)$  un facteur d'auto-atténuation qui prend en compte l'atténuation du faisceau incident par l'échantillon lui-même (par diffusion et absorption). L'intensité est collectée à angle de diffusion constant et on relie (2.17) à la fonction dynamique de diffusion  $S(\phi, \omega)$  par :

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} \right) (\phi, \omega) = \frac{\partial n}{\partial \omega} \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dn} \right) (\phi, n) \propto \frac{k_f}{k_i} S(\phi, \omega) \quad (2.18)$$

Il faut ensuite regrouper les points mesurés de manière spécifique, de façon à transformer la fonction  $S(\phi, \omega)$  en  $S(Q, \omega)$  (en utilisant (2.5)). On voit que, de (2.17) au facteur de structure dynamique  $S(Q, \omega)$ , il va falloir faire subir aux données brutes un certain nombre de transformations. Pour maîtriser chaque étape du traitement des données, nous avons écrit un programme FORTRAN, dont le fonctionnement est précisé sur un cas particulier dans la partie suivante.

### 2.3.2 Expériences sur IN6

#### Les échantillons

On a mené sur ce spectromètre trois expériences sur l' $^4\text{He}$  liquide dans trois milieux poreux différents. Comme pour les échantillons cités précédemment, ceux-ci ont été caractérisés par diffusion de neutrons à petit angle sur le spectromètre IN12 (voir le chapitre 4).

#### - Aerogel de Mulders (M87.1)

Pour la première de ces expériences, l'échantillon utilisé était un aerogel d'environ 87% de porosité fourni par Norbert Mulders (University of Delaware, USA). Celui-ci sera dénommé par la suite M87.1. Il a été synthétisé directement dans une cellule de mesure identique à celle utilisée pour l'expérience avec l'aerogel de Beamish décrite plus haut ( $\phi=13.6$  mm). Le volume ouvert disponible pour l'hélium est d'environ  $6.5 \text{ cm}^3$ . La cellule a été montée dans le cryostat à circulation d' $^3\text{He}$  déjà cité et on a collecté des données à onze températures comprises entre  $T=0.5 \text{ K}$  dans la phase superfluide et  $T=2.25 \text{ K}$  dans la phase normale. Nous avons régulé la température au moyen d'une résistance de carbone étalonnée. On a mesuré la diffusion par la cellule vide (aerogel seul) à basse température ( $0.5 \text{ K}$ ). En début d'expérience, on a monté dans le cryostat une cellule vide (sans aerogel) en aluminium de mêmes dimensions que la cellule contenant l'aerogel (volume  $\approx 7.6 \text{ cm}^3$ ). On a pu ainsi mesurer la diffusion par l' $^4\text{He}$  en volume libre à  $T=0.5$  et  $1.3 \text{ K}$  dans les mêmes conditions, de façon à avoir une mesure de référence.

#### - Vycor cylindrique

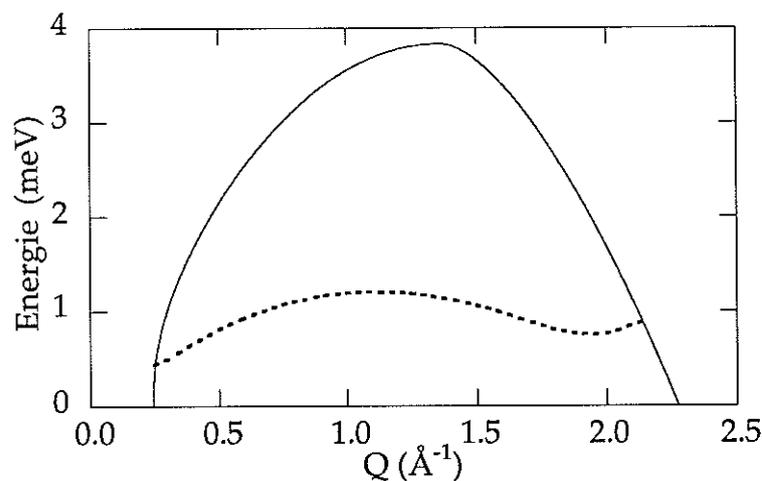
Pour la deuxième expérience, on a utilisé un échantillon de Vycor cylindrique (diamètre=9.7 mm, hauteur=40 mm) d'environ 30% de porosité (volume ouvert  $\approx 0.9 \text{ cm}^3$ ) et élaboré sur demande par CORNING en utilisant du bore isotopique  $^{11}\text{B}$ . Celui-ci a été introduit au fond d'une cellule en aluminium (diamètre intérieur=9.7 mm, hauteur=100 mm, épaisseur=1.5 mm). Un espace (volume  $\approx 3 \text{ cm}^3$ ) a été délimité dans la partie supérieure de la cellule de façon à mesurer la diffusion par l' $^4\text{He}$  en volume libre sans avoir à démonter le cryostat (à circulation d' $^3\text{He}$ ). En effet, le cryostat est posé sur un soufflet métallique permettant de lui assurer un déplacement vertical. Les deux compartiments sont séparés par un disque de cadmium à l'intérieur de la cellule et par une bague de cadmium (hauteur=15 mm, épaisseur=0.5 mm) collée à la résine Stycast sur le pourtour de la cellule. On a ainsi collecté des données pour l'hélium en volume libre à 0.5, 1.5 et 1.76 K et pour l'hélium confiné dans le Vycor dans la même cellule à sept températures entre 0.5 et 2.2 K. Nous

avons régulé la température au moyen d'une résistance en oxyde de ruthenium, dont nous avons rectifié l'étalonnage.

- Gel-Tek

Pour la troisième expérience, on a mesuré la diffusion des neutrons par de l'hélium liquide dans un échantillon de Gel-Tek cylindrique (diamètre=10.2 mm, hauteur=40 mm) d'environ 50% de porosité. L'échantillon a été introduit dans une cellule cylindrique en aluminium (diamètre intérieur=10.2 mm, hauteur=55 mm). On a masqué la partie supérieure de la cellule avec une bague de cadmium (épaisseur=0.5 mm). On voulait dans cette expérience atteindre des températures très basses (<100 mK). C'est pourquoi on a monté la cellule sur un cryostat à dilution qui nous a permis de collecter des données entre 35 mK et 2.5 K pour l'échantillon de Gel-Tek plein. On a aussi mesuré la diffusion à basse température ( $T < 0.3$  K) pour cinq remplissages compris entre 55% et 83% du remplissage total. A basse température ( $T < 1.5$  K), on régule au moyen d'une résistance d'oxyde de ruthenium ; au-delà, on utilise une résistance de carbone.

### Traitement des données



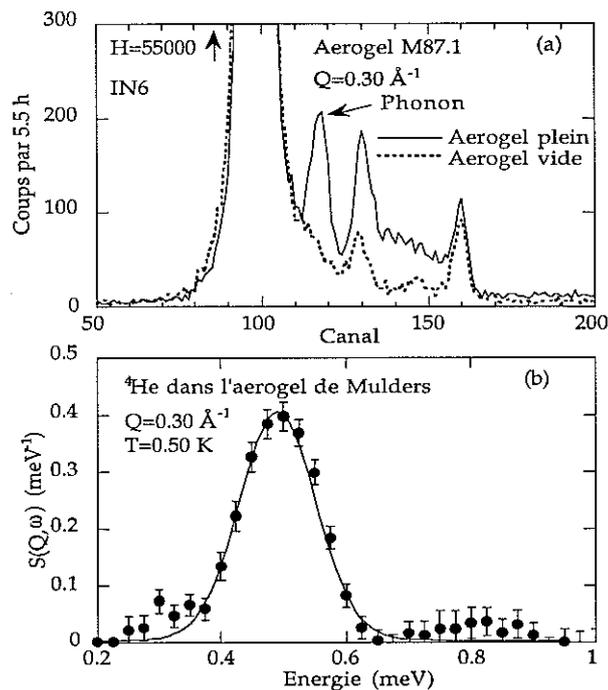
**Figure 2.7 :** Délimitation de la zone de transferts d'énergie positifs accessible dans le plan  $(Q, \hbar\omega)$  sur le spectromètre à temps de vol IN6 avec une longueur incidente  $\lambda_i = 4.62$  Å. On a représenté, dans le domaine accessible, la courbe de dispersion phonon-rotor de  ${}^4\text{He}$  en volume déterminée à  $T = 0.50$  K (ligne pointillée).

Pour ces expériences, la longueur d'onde la plus adaptée à l'étude de la courbe de dispersion des excitations de  ${}^4\text{He}$  liquide était  $\lambda_i = 4.62$  Å ( $k_i = 1.37$  Å $^{-1}$ ,  $E_i = 3.87$  meV). On couvre ainsi une région de vecteurs d'onde comprise entre  $0.25$  Å $^{-1}$  dans la région des phonons et  $2.15$  Å $^{-1}$  dans la région du roton. La région sondée dans le plan  $(Q, \hbar\omega)$  est

représentée sur la figure 2.7. À la longueur d'onde utilisée, une focalisation élastique correspond à une vitesse de rotation du chopper de 5406 tours par minute. La période associée est de 5550  $\mu\text{s}$ . L'analyseur de temps de vol compte 512 canaux, auxquels on associe une largeur  $\Delta=10.75 \mu\text{s}$ . Le temps de retard est ajusté de façon à retrouver le pic élastique dans le canal  $n_{\text{el}}=100$ . On visualise les données brutes directement au fur et à mesure de leur acquisition grâce à l'interface LAMP. Sur les figures (2.8) à (2.10), on compare les données brutes obtenues avec l'aérogel de Mulders (cellule vide et cellule remplie d'hélium) collectées pour trois angles de diffusion correspondant respectivement aux régions des phonons ( $Q=0.30 \text{ \AA}^{-1}$ ), du maxon ( $Q=1.1 \text{ \AA}^{-1}$ ) et du roton ( $Q=1.93 \text{ \AA}^{-1}$ ) avec les facteurs de structure dynamiques  $S(Q, \omega)$  issus du traitement des données. On observe au niveau du roton (en sommant les trois détecteurs situés au même angle de diffusion) une intensité d'environ 0.6 coups par seconde. Les spectres sont constitués d'un pic élastique très intense (au niveau du canal 100) et de différents pics, dont celui correspondant à la création d'une excitation dans l'hélium, situés à des transferts d'énergie positifs. A petit angle (ici dans la figure (2.8) pour  $Q=0.30 \text{ \AA}^{-1}$ ) on identifie dans le spectre de la cellule vide quatre pics parasites centrés sur les canaux 117, 128, 145 et 159 dont on discutera l'origine plus bas. A plus grand angle, les deux derniers pics ont disparu, et il ne reste plus que ceux centrés sur les canaux 117 et 128. On remarque aussi à tous les angles dans le spectre de diffusion de la cellule remplie d'hélium une contribution asymétrique composée d'un pic centré sur l'énergie du roton (canal 129) et d'une composante à plus haute énergie. On associera cette composante à de la diffusion multiple (voir chapitre 5). Les différentes étapes du traitement des données réalisées par un programme que nous avons écrit en FORTRAN sont détaillées ci-dessous. Les traitements effectués sur les données issues de l'expérience avec l'aérogel de Mulders et avec le Vycor sont très similaires. On considérera ci-dessous, sauf précision, le cas de l'expérience avec l'aérogel de Mulders.

#### - Test de compatibilité

Étant donné que l'on collecte les données par périodes d'environ deux heures (afin de ne pas perdre toutes les données en cas, par exemple, de problème avec le cryostat) pour une collecte totale d'environ huit heures, la première chose à faire consiste à vérifier la compatibilité des différents fichiers collectés à la même température avant de les additionner. On utilise pour cela une procédure développée par A. Stunault [Stunault 1992], qui permet de visualiser des variations du taux de comptage et de repérer ainsi par exemple des dysfonctionnements de détecteurs.



**Figure 2.8 :** Intensité diffusée à basse température dans la région des phonons pour un vecteur d'onde  $Q=0.30 \text{ \AA}^{-1}$  par  $^4\text{He}$  dans l'aerogel de Mulders M87.1 (ligne continue) et par l'aerogel seul (ligne pointillée). Dans le spectre de l'aerogel vide, plusieurs pics parasites dûs à des réflexions sur les écrans du cryostat sont présents. Dans le spectre de l'aerogel plein, on observe dans le canal 130 le pic de la diffusion multiple associée au roton. On remarque dans le pied du pic élastique, du côté des transferts d'énergie négatifs (canal  $< 100$ ), que l'intensité diffusée par l'aerogel vide est plus grande que celle diffusée par l'aerogel rempli d'hélium. La figure 2.8b représente le facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  dans l'aerogel de Mulders M87.1 déterminé à  $Q=0.30 \text{ \AA}^{-1}$ , après transformation des données brutes présentées dans la figure 2.8a. La ligne représente le résultat d'un ajustement du pic du phonon par un oscillateur harmonique amorti convolué par la fonction de résolution instrumentale.

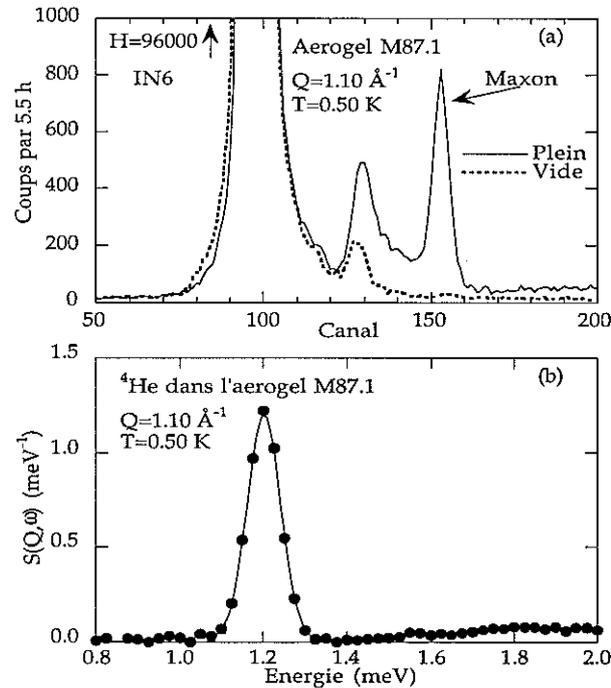
#### - Groupement des détecteurs

On a choisi d'additionner les intensités des détecteurs (qui n'ont pas montré de dysfonctionnement) situés aux mêmes angles de diffusion. On obtient ainsi 89 spectres (angles) à chaque température.

#### - Normalisation au moniteur

Un moniteur (détecteur à  $^3\text{He}$  de faible efficacité) est placé sur le faisceau incident juste avant l'échantillon. Il est connecté lui aussi à un analyseur multicanaux permettant de déterminer la distribution des vitesses du faisceau incident. Le pic observé dans le spectre du

moniteur est ajusté par une gaussienne avec un bruit de fond constant. On utilise l'intensité intégrée de ce pic pour normaliser les spectres mesurés.

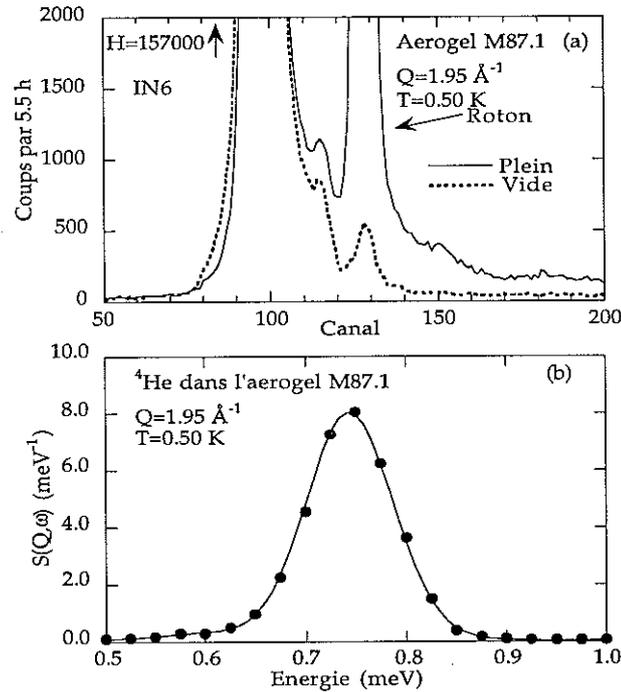


**Figure 2.9a** : Intensité diffusée à basse température au niveau du maxon par l'<sup>4</sup>He dans l'aerogel de Mulders M87.1 (ligne continue) et par l'aerogel seul (ligne pointillée) (voir la légende de la figure 2.8a). La figure 2.9b représente le facteur de structure dynamique au niveau du maxon, après transformation des données brutes présentées dans la figure 2.9a. La ligne représente le résultat d'un ajustement du pic du maxon par un oscillateur harmonique amorti convolué par la fonction de résolution instrumentale. Les barres d'erreur sont de la taille des points.

#### - Soustraction du pic élastique et du bruit de fond

Dans le cas de l'<sup>4</sup>He en volume libre, on soustrait point par point le spectre de diffusion par la cellule vide (multiplié par un facteur calculé de 0.97 pour prendre en compte l'atténuation du faisceau due à la diffusion par l'hélium) à celui obtenu pour la diffusion par la cellule pleine.

Quand la cellule contient l'échantillon d'aerogel, la forme et l'intensité du pic élastique varient suivant que l'hélium est présent ou non. L'étude de l'asymétrie du pic élastique suivant le principe de la balance détaillée (équation (2.9)) montre que l'aerogel n'est pas bien thermalisé et qu'il est légèrement plus chaud à vide. Cela se traduit par une diffusion quasi-élastique plus élevée qui donne de l'intensité supplémentaire dans le pied du pic élastique.



**Figure 2.10a :** Intensité diffusée à basse température au niveau du roton par  $^4\text{He}$  dans l'aerogel de Mulders M87.1 (ligne continue) et par l'aerogel seul (ligne pointillée) (voir la légende de la figure 2.8a). La figure 2.10b représente le facteur de structure dynamique déterminé au niveau du roton, après transformation des données brutes présentées dans la figure 2.10a. La ligne représente le résultat d'un ajustement du pic du roton par un oscillateur harmonique amorti convolué par la fonction de résolution instrumentale. Les barres d'erreur sont plus petites que la taille des points.

De plus, à petit angle ( $\phi \leq 25^\circ$ ,  $Q_{el} \leq 0.6 \text{ \AA}^{-1}$  où  $Q_{el}$  représente le vecteur de diffusion élastique) l'intensité élastique diffusée par la cellule vide augmente plus rapidement que celle diffusée par la cellule remplie d'hélium. En effet à très petit  $Q$  ( $Q < 0.03 \text{ \AA}^{-1}$ ), l'intensité diffusée par un objet composé de deux substances uniformes différentes est reliée au facteur de structure statique de l'objet par [Emmerling 1992, Williams 1993] :

$$I(Q) \propto (\rho_1 - \rho_2)^2 S(Q) \quad (2.19)$$

où  $\rho_1$  et  $\rho_2$  sont les densités de longueur de diffusion des deux différents milieux. L'intensité diffusée à petit angle est donc d'autant plus grande que le contraste entre les deux milieux est important. L'intensité diffusée élastiquement à petit angle par la cellule vide sera donc plus importante que celle diffusée par la cellule pleine. Pour des vecteurs d'onde intermédiaires, la relation (2.19) n'est plus valable et l'intensité varie de façon non triviale avec

Q. Comme on peut le voir sur la figure 2.11, l'intensité diffusée élastiquement par la cellule vide reste supérieure à celle diffusée par la cellule pleine tant que  $Q < 0.6 \text{ \AA}^{-1}$ .

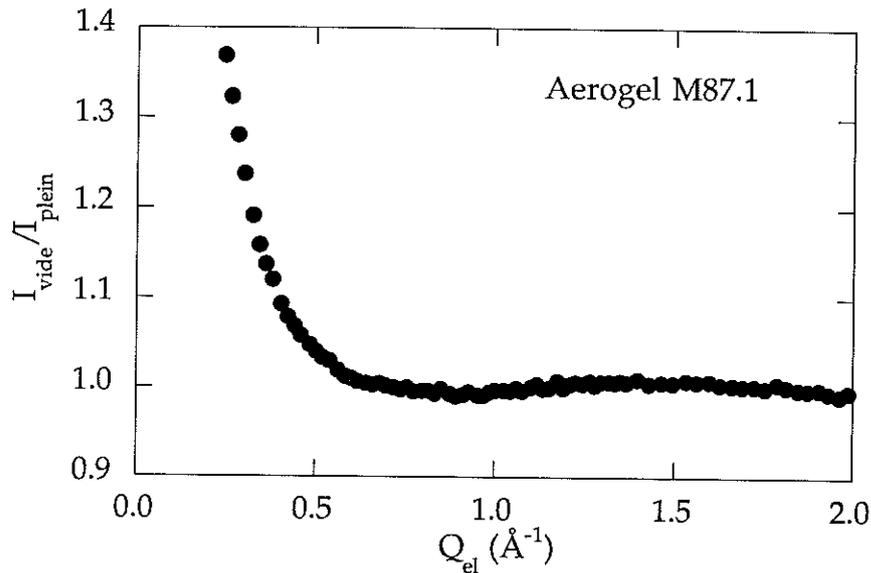


Figure 2.11 : Représentation du rapport des intensités élastiques diffusées par l'aerogel vide et par l'aerogel plein.

Pour nous affranchir de ces effets, nous avons d'abord soustrait le pic élastique des cellules vide et pleine, puis nous avons soustrait le spectre ainsi obtenu pour la cellule vide à celui obtenu pour la cellule pleine. Les pics élastiques ont été ajustés par la somme d'une gaussienne, d'une lorentzienne au carré et d'un bruit de fond constant de manière à représenter les diffusions élastique et quasi-élastique des aerogels convoluées par la résolution du spectromètre. Le bruit de fond est calculé en moyennant l'intensité observée du côté des transferts d'énergie négatifs (canaux 20 à 40). Nous avons ensuite directement soustrait les fonctions ajustées des données :

$$(1) = \text{Aerogel plein} - \text{pic élastique 1 } (=G+L^2) - \text{Bruit de fond 1}$$

$$(2) = \text{Aerogel vide} - \text{pic élastique 2 } (=G+L^2) - \text{Bruit de fond 2}$$

On soustrait ensuite la diffusion par la canne vide :  $(3) = (1) - \alpha(2)$ . Hors des zones de pics parasites, le facteur  $\alpha (=0.97)$  représente l'atténuation du faisceau de neutrons due à la diffusion par l'hélium. Dans les zones correspondant aux pics parasites, on a ajusté des facteurs *ad hoc* de façon à correctement soustraire ceux-ci.

Les deux pics visibles à petit angle (canaux 145 et 159,  $\phi \leq 50^\circ$ ) ont été identifiés comme étant dus à une diffusion de Bragg par l'écran extérieur du cryostat (rétrodiffusion

par l'aluminium à un angle  $2\theta \approx 162^\circ$ ) du faisceau de neutrons transmis par l'échantillon suivie d'une diffusion élastique incohérente respectivement par l'écran du calorimètre et par l'écran extérieur du cryostat. Ces neutrons ont parcouru un chemin plus long que ceux diffusés élastiquement par la cellule et apparaissent donc dans des canaux correspondant aux neutrons qui ont perdu de l'énergie lors du processus de diffusion. Etant donné que la diffusion de l'échantillon à petit angle est plus importante quand celui-ci est vide (cf. (2.19)), sa transmission est plus faible et on trouve donc un facteur  $\alpha > 1$ .

Les deux autres pics, visibles à tous les angles, ont été identifiés comme étant dus à deux diffusions élastiques isotropes successives, la première étant due à la cellule contenant l'aérogel et la seconde respectivement à l'écran du calorimètre (canal 117) et à l'écran extérieur du cryostat (canal 128). Etant donné que là aussi la transmission de l'échantillon intervient (après la deuxième diffusion élastique, le faisceau retransverse la cellule), on trouve un facteur  $\alpha > 1$ .

Dans le cas du Vycor, présentant un squelette beaucoup plus rigide, la diffusion quasi-élastique est négligeable. Les pics élastiques de la cellule vide et de la cellule pleine ont la même forme et on a pu procéder directement à une soustraction point par point.

#### - Normalisation au vanadium

Au cours des différentes expériences, nous avons mesuré la diffusion par un échantillon de vanadium (V) à température ambiante. L'échantillon se présente sous la forme d'une fine feuille enroulée dans une cellule cylindrique en aluminium (diamètre=15 mm). Le vanadium présente une diffusion essentiellement incohérente et élastique. On peut donc approcher son facteur de structure dynamique par une distribution de Dirac en énergie. L'intensité mesurée, corrigée du facteur Debye-Waller [Squires 1978], est répartie de façon isotrope et donne une mesure de la fonction de résolution instrumentale pour un transfert d'énergie nul. On utilise le vanadium pour calibrer les efficacités des détecteurs les uns par rapport aux autres, pour des neutrons diffusés élastiquement. On a aussi corrigé l'intensité diffusée par le vanadium de l'auto-atténuation (diffusion et absorption).

- Transformation du temps en énergie :  $\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dn} \right) (\phi, n) \rightarrow S(\phi, \omega)$

En écrivant le transfert d'énergie en fonction du temps d'arrivée des neutrons (et donc du numéro de canal  $n$ ) et avec (2.18), on trouve :

$$S(\phi, \omega) \propto \frac{t^4}{E_i t_{el}^3 \Delta} \left( \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dn} \right) (\phi, n) \quad (2.20)$$

où  $t$  est le temps mis par les neutrons rangés dans le canal  $n$  pour parcourir la distance échantillon-détecteur,  $t_{el}$  correspondant au temps de trajet pour une diffusion élastique.

On a appliqué cette transformation aux données en calculant pour chaque angle le temps de trajet élastique à partir de la position observée du pic élastique.

- Correction de l'efficacité des détecteurs

Du fait de la dépendance en énergie de la section efficace d'absorption de  $^3\text{He}$ , l'efficacité de détection des neutrons change en fonction de l'énergie. Celle-ci prend aussi en compte la forme elliptique des détecteurs (en effet, suivant la distance traversée par le faisceau de neutrons la probabilité de capture n'est pas la même). On a utilisé pour l'efficacité de détection une expression de la forme [Blanc 1983, Rieutord 1990] :

$$\eta(E_f) = \exp(s_1/E_f^{1/2}) \times \{1 - \exp(s_2/E_f^{1/2})\} \quad (2.21)$$

où  $s_1$  et  $s_2$  sont des constantes calculées par A. Stunault en tenant compte de la forme elliptique des détecteurs :  $s_1 = -0.05698 \text{ meV}^{1/2}$  et  $s_2 = -2.858 \text{ meV}^{1/2}$ .

Après avoir effectué cette correction, les spectres obtenus sont directement proportionnels à  $S(\phi, \omega)$ .

- Vérification de la longueur d'onde incidente

Nous avons déterminé la position du minimum du roton ( $Q \approx 1.93 \text{ \AA}^{-1}$ ) à partir des spectres de diffusion de l'hélium en volume libre à basse température (0.5 K). Notre résultat est en très bon accord avec ceux issus d'expériences antérieures [Andersen 1994]. La calibration de notre échelle en énergie est donc correcte et confirme la valeur nominale de la longueur d'onde incidente :  $\lambda_i = 4.62 \text{ \AA}$ .

- Transformation d'angle constant à  $Q$  constant ( $S(\phi, \omega) \rightarrow S(Q, \omega)$ )

On a vu plus haut que pour appliquer cette transformation il faut regrouper les points mesurés de manière spécifique. L'intensité distribuée sur des lignes à angle de diffusion constant a été répartie suivant une méthode géométrique [Andersen 1991] sur une grille dans le plan ( $Q, \omega$ ). Nous avons choisi des pas  $\Delta Q = 0.05 \text{ \AA}^{-1}$  et  $\Delta \omega = 0.025 \text{ meV}$  de façon à obtenir un bon compromis entre la résolution et la statistique des nouveaux spectres obtenus.

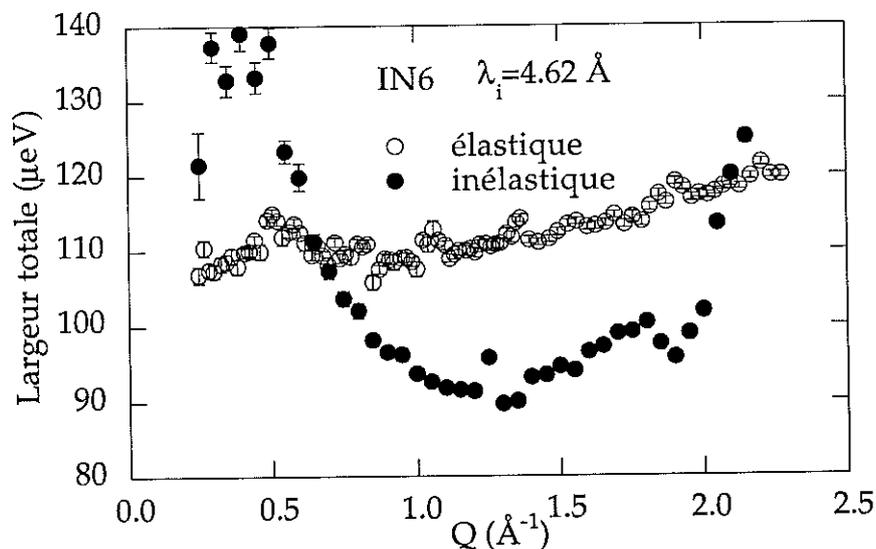
### - Soustraction de la diffusion multiple

La contribution de diffusion multiple que nous avons réussi à isoler et à soustraire correspond à la création d'une excitation combinée avec un (ou plusieurs) événements de diffusion élastique par l'aérogel. On discutera de cette partie du traitement des données dans le chapitre 5. On a considéré la diffusion multiple "classique" (c'est à dire correspondant à plusieurs événements de diffusion successifs par l'hélium) comme étant négligeable. En effet, d'une part l'interaction des neutrons avec l' $^4\text{He}$  liquide est faible (le libre parcours moyen des neutrons dans l' $^4\text{He}$  liquide est supérieur à 35 cm), et d'autre part nos échantillons sont petits par rapport à ceux généralement utilisés.

### - Normalisation absolue

Comme expliqué plus haut (traitement des données issues des expériences avec le spectromètre trois-axes), on calcule l'intensité intégrée diffusée sur un intervalle en énergie donné et on normalise ces valeurs par rapport à celles issues des données de Ken Andersen [Andersen 1991,1994].

### - Résolution instrumentale



**Figure 2.12 :** Résolutions élastique (issue des spectres de diffusion par un échantillon de vanadium) et inélastique le long de la courbe de dispersion des excitations de l' $^4\text{He}$  en volume (issue des spectres de diffusion par l' $^4\text{He}$  en volume à  $T=0.50$  K).

La diffusion par l'échantillon de vanadium nous donne une mesure de la résolution instrumentale élastique. La diffusion par  $^4\text{He}$  en volume libre à basse température (0.5 K) nous donne une mesure de la résolution instrumentale pour un transfert d'énergie suivant la courbe de dispersion des excitations. Les résolutions élastique et inélastique sont représentées sur la figure 2.12. On a trouvé que la fonction de résolution est bien représentée par une somme de deux gaussiennes (la deuxième gaussienne représente le pied de la résolution et son intensité intégrée vaut environ 5 % de l'intensité intégrée totale). La variation de la résolution le long de la courbe de dispersion nous donne une indication de l'orientation du volume de résolution. Celui-ci peut être approché par un ellipsoïde. Dans le plan  $(Q, \hbar\omega)$ , on a affaire à une ellipse dont le grand axe forme un angle d'environ  $-16^\circ$  avec l'axe des abscisses. Cette inclinaison correspond à la pente de la courbe de dispersion à  $Q \approx 1.25 \text{ \AA}^{-1}$  (au minimum de la résolution).

### 2.3.3 Expériences sur Mibemol

Nous avons réalisé deux expériences de diffusion inélastique de neutrons par de  $^4\text{He}$  liquide confiné dans des plaquettes de Vycor sur le spectromètre à temps de vol Mibemol. Aucune de ces deux expériences ne nous a permis d'obtenir de résultat exploitable. Il est toutefois intéressant de présenter brièvement ces expériences afin de montrer comment nous envisagions de relever le défi expérimental qu'elles représentaient.

Nos plaquettes de Vycor (dimensions  $32 \text{ mm} \times 36 \text{ mm} \times 1.6 \text{ mm}$  pour notre première expérience et  $26 \text{ mm} \times 32 \text{ mm} \times 1.6 \text{ mm}$  pour la seconde) d'environ 30% de porosité présentent un faible volume ouvert pour recevoir l'hélium liquide ( $V \approx 0.55$  et  $0.4 \text{ cm}^3$ ). De plus les échantillons, fabriqués industriellement (marque déposée par CORNING GLASS WORKS), contiennent encore environ 3.5 % d'oxyde de bore ( $\text{B}_2\text{O}_3$ ) et présentent donc une forte absorption neutronique. Ces deux facteurs concourent à nous donner une intensité diffusée faible. On a utilisé  $\lambda = 5 \text{ \AA}$ , au maximum de la distribution du flux incident, qui nous permet de couvrir une région de vecteurs d'onde pour une diffusion élastique comprise entre  $0.5$  et  $2.4 \text{ \AA}^{-1}$ . Le flux incident au niveau de l'échantillon reste toutefois largement inférieur à celui délivré par IN6 et l'absorption calculée au niveau du roton ( $Q = 1.92 \text{ \AA}^{-1}$ ) est de l'ordre de 50 % (la plaquette est inclinée de  $45^\circ$  par rapport au faisceau incident). Afin de compenser cela, nous avons pu utiliser toutes les bouffées de neutrons en faisant tourner le chopper quatre (voir plus haut) en phase avec le chopper trois à 10000 tours par minute. On a pu se placer dans une telle configuration car l'intensité diffusée par l'hélium se concentre à basse énergie, ce qui nous a permis de faire nos mesures sur des intervalles en énergie relativement étroits

(typiquement entre -1.0 et 1.85 meV) sans avoir recouvrement des spectres. Dans ces conditions, la résolution élastique est d'environ 160  $\mu\text{eV}$  et la résolution au niveau du roton est d'environ 120  $\mu\text{eV}$ .

Pour la première de ces deux expériences, l'échantillon de Vycor est placé dans une boîte en aluminium. Le couvercle de la boîte est maintenu serré par deux contre-bridges en inox grâce à des vis en laiton disposées sur tout son pourtour (et devant lesquelles on a placé un masque en cadmium). L'étanchéité est réalisée au moyen d'un joint d'indium. La cellule a pour dimensions : 46 mm  $\times$  50 mm  $\times$  11 mm. Celle-ci a été introduite dans un cryostat à  $^4\text{He}$  pompé, qui ne nous permettait pas de descendre en-dessous de 1.65 K (probablement du fait d'un défaut d'isolation de la zone échantillon lié à la canne utilisée). A cette température, les excitations sont déjà considérablement élargies et une analyse fine est difficile, d'autant plus que nous ne disposions pas de mesures de référence à basse température. Les résultats obtenus ne furent donc pas exploitables mais nous montrèrent la faisabilité d'une telle expérience sur Mibemol.

Nous avons donc décidé de recommencer cette expérience dans les mêmes conditions en utilisant un insert à dilution. Cependant, l'espace réservé à l'échantillon est limité dans un tel insert (diamètre=34 mm). Nous avons donc utilisé une plaquette de Vycor plus petite que la première, mais nous avons dû aussi concevoir une nouvelle cellule de mesure, la moins large possible. Celle-ci, comme précédemment, est constituée d'une boîte surmontée d'un couvercle, mais celui-ci, au lieu d'être maintenu serré par l'intermédiaire de contre-bridges, est simplement collé. On réalise par là même l'étanchéité de la cellule. Une gouttière a en effet été aménagée entre le couvercle et la boîte, et, à l'aide d'une seringue, nous avons injecté de la colle stycast noire par des orifices d'un millimètre de diamètre aménagés aux quatre coins. La cellule ainsi réalisée a comme dimensions : 30 mm  $\times$  36 mm  $\times$  4.6 mm. Nous avons mesuré la diffusion par l'échantillon de Vycor vide et complètement rempli d' $^4\text{He}$  liquide à basse température (typiquement 250 mK). Malheureusement, l'expérience a été interrompue prématurément à cause de problèmes liés à l'utilisation du matériel cryogénique et nous n'avons pas pu étudier la dépendance en température des excitations de l'hélium dans le Vycor. Les données collectées à basse température ne présentent pas une statistique suffisante pour une analyse fine (au maximum du pic du roton ( $Q_T=1.92 \text{ \AA}^{-1}$ ), on compte environ 14 coups par heure en sommant les données obtenues dans dix détecteurs autour de  $Q_T$ ).

Échantillon	Porosité	Taille des pores Å	Surface spécifique m <sup>2</sup> /cm <sup>3</sup>	Particularité	Spectromètre et Résolution (au roton)
Aerogel B95	95%	≈ 10- 1000	65	élaboration à partir de produits deutérés	IN12 110 meV
Aerogel M87.1	87%	≈ 10- 1000	170	traité au deutérium	IN6 100 meV
Aerogel M87.2	87%	≈ 10- 1000	170	élaboration à partir de produits deutérés	IN12 46 meV
Vycor	30%	≈ 70	170	élaboré avec du bore isotopique 11B	IN6 100 meV
Gel-Tek	50%	≈ 25	800	traité au deutérium	IN6 100 meV

**Tableau 2.2** : Récapitulatif des principales caractéristiques des échantillons utilisés ainsi que des conditions expérimentales dans lesquelles on a déterminé le facteur de structure dynamique de l'<sup>4</sup>He dans ces milieux poreux.

## CHAPITRE 3

### Étude du roton dans l'<sup>4</sup>He en volume

On présente dans cette partie des résultats de mesure de la dépendance en température de l'énergie et de la largeur du roton ( $Q=1.93 \text{ \AA}^{-1}$ ) dans l'<sup>4</sup>He en volume. Nous avons réalisé ces mesures afin de vérifier la déviation par rapport à la prédiction théorique du comportement de l'énergie mise en évidence à basse température ( $T < 1.2 \text{ K}$ ) par Ken Andersen et collaborateurs [Andersen 1996]. On commencera par introduire les théories utilisées pour décrire les dépendances en température de l'énergie et de la largeur du roton.

#### 3.1 Théorie

Pour décrire la superfluidité de l'<sup>4</sup>He, à des températures inférieures au point  $\lambda$  (He II), Landau a développé une quantification des mouvements internes du liquide [Landau 1941]. Il en déduit le spectre énergétique des états excités du liquide, constitué de deux branches : une branche de dispersion linéaire correspondant aux phonons, c'est à dire à des ondes sonores longitudinales quantifiées ; et une branche de dispersion parabolique correspondant à l'excitation de mouvements rotationnels au sein du liquide (des "rotons"), et caractérisée par une énergie minimum (un "gap")  $\Delta$  non nul. Des résultats de mesure de la vitesse du second son (une onde stationnaire de température) amenèrent Landau à joindre les deux branches en une courbe de dispersion continue [Landau 1947], en déplaçant le minimum du roton à un vecteur d'onde fini  $Q_r (=1.95 \text{ \AA}^{-1})$ . On ne peut alors plus distinguer les phonons et les rotons comme des excitations de nature qualitativement différente mais simplement comme des excitations de grande longueur d'onde (les phonons) et de petite

longueur d'onde (les rotons). Le gap du roton assure au liquide la propriété de superfluidité : en-dessous d'une certaine vitesse critique d'écoulement ( $\approx 100$  m/s), on ne peut exciter de mouvements internes du liquide et celui-ci pourra donc s'écouler à travers un capillaire très fin sans aucune viscosité apparente. Cet argument reste valable, même si les vitesses critiques déterminées expérimentalement, associées à la création ou au dépiégeage de vortex, sont en fait de l'ordre du cm/s [Wilks 1967, 1987]. Landau décrit alors les propriétés thermodynamiques de l' $^4\text{He}$  superfluide en terme d'excitations élémentaires, qui représentent les mouvements collectifs des atomes en forte interaction. Il donne ainsi une base microscopique au modèle des deux fluides (voir chapitre 1) en assimilant la composante normale du liquide à un gaz d'excitations élémentaires. Il calcule alors séparément les contributions dues aux phonons et aux rotons aux différentes fonctions thermodynamiques (énergie libre, chaleur spécifique, entropie et densité du liquide normal) en posant que (comme dans les solides) le gaz de phonons suit une distribution de Bose alors que le gaz de rotons suit une distribution de Boltzmann (car  $\Delta \gg k_B T$ ). Le nombre de phonons  $N_{ph}$  à l'équilibre par unité de volume s'écrit approximativement comme [Khalatnikov 1965, Wilks 1967]:

$$N_{ph} = \frac{\pi^2 k_B^3}{90 \hbar^3 c^3} T^3 \quad (3.1)$$

où  $c$  ( $\approx 240$  m/s) est la vitesse du son, qui nous donne la pente de la dispersion à petit  $Q$  :

$$\hbar\omega = cQ \quad (3.2)$$

Le nombre de rotons  $N_r$  à l'équilibre par unité de volume est donné par :

$$N_r = \frac{2(\mu k_B T)^{1/2} Q_r^2}{(2\pi)^{3/2} \hbar^3} \exp(-\Delta/k_B T) \quad (3.3)$$

où  $\Delta$ ,  $Q_r$  et  $\mu$  (la masse effective) sont les paramètres qui décrivent la courbe de dispersion au niveau du roton comme :

$$\hbar\omega = \Delta + \frac{(Q - Q_r)^2}{2\mu} \quad (3.4)$$

La description du liquide comme un gaz d'excitations élémentaires bien définies n'est valable que quand celles-ci ne sont pas trop nombreuses c'est à dire pour des températures inférieures à environ 1.8 K. Quand la température est inférieure à environ 1.5 K, les seules excitations thermiquement peuplées sont les rotons et les phonons. La prise en compte de leurs interactions mutuelles permet alors de représenter les phénomènes dissipatifs au sein du liquide, en particulier la dépendance en température de la viscosité, de la conductivité thermique et de l'atténuation du son. Ces interactions entre excitations conduisent celles-ci à avoir des durées de vie finies  $\tau$  qui entraînent une incertitude sur leur énergie donnée par  $\Delta(\hbar\omega) \approx \hbar/\tau$  que l'on observera directement comme un élargissement du pic aigu de la fonction dynamique de diffusion  $S(Q, \omega)$ . Landau et Khalatnikov [Landau 1949, Khalatnikov 1965, Wilks 1967] énumèrent les différents types de collisions possibles et calculent les sections efficaces de diffusion associées aux divers processus. Les processus les plus importants concernant le roton sont des processus à quatre quasi-particules :

$$\text{Processus à quatre rotons : } R_1+R_2 \iff R_3+R_4 \quad (C1)$$

$$\text{Diffusion phonon-roton : } R_1+P_1 \iff R_2+P_2 \quad (C2)$$

#### Processus à quatre rotons

En considérant que l'interaction entre deux rotons est à courte portée (fonction delta), et en traitant celle-ci au premier ordre dans le cadre d'une théorie de perturbation, Landau et Khalatnikov trouvent que le temps  $t_r$  entre deux collisions est inversement proportionnel à la densité de rotons :  $1/t_r \propto N_r$  et que la section efficace de diffusion s'écrit comme :  $\sigma_{rr} \propto T^{-1/2}$ . Ce processus domine pour  $T > 1$  K et permet de rendre compte du plateau observé dans la viscosité. Pour la même gamme de température, il permet aussi de décrire le comportement de la largeur du roton en fonction de la température déterminé par diffusion inélastique de neutrons [Woods 1978, Mezei 1980]. La formule utilisée par Mezei [Mezei 1980] et dérivée par Landau à partir des résultats des mesures de viscosité s'écrit :

$$\Gamma(T) = 47\sqrt{T} \exp(-\Delta(T)/T) \quad (3.5)$$

où  $\Gamma$  et  $\Delta$  sont respectivement la mi-largeur à mi-hauteur et la position (l'énergie) du pic du roton en Kelvin. Cette expression est représentée par une ligne pointillée sur la figure 3.1a. Dans la même voie que Landau, c'est à dire dans l'approximation de Hartree-Fock, où l'on considère un roton comme une quasi-particule se déplaçant dans le champ moyen généré par les autres rotons, et en utilisant le formalisme de la théorie quantique des champs, Ruvalds

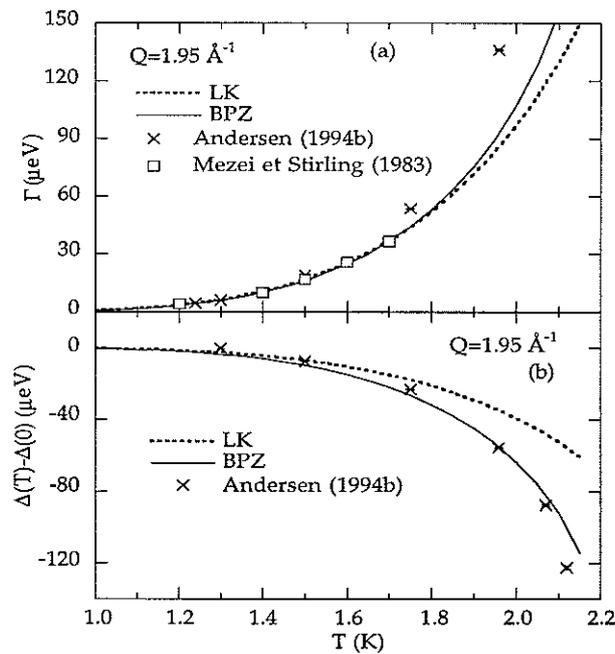
[Ruvalds 1971] obtient la dépendance en température de l'énergie du roton. Celle-ci s'exprime comme la partie réelle de l'énergie propre (self-energy) du roton :

$$\text{Re}(\Sigma_r) = \Delta(T) - \Delta_0 = 2g_4 N_r(T) \quad (3.6)$$

où  $g_4$  est une constante qui représente le couplage entre rotors et  $N_r(T)$  la densité de rotors donnée par l'équation (3.3). L'énergie du roton déterminée par diffusion inélastique de neutrons décroît quand la température augmente. Son comportement est décrit entre environ 1 K et 1.6 K par l'expression ajustée à partir des données expérimentales [Mezei 1980] :

$$\Delta(T) - \Delta_0 = -19\sqrt{T} \exp(-\Delta(T)/T) \quad (3.7)$$

où toutes les grandeurs sont en Kelvin. L'expression (3.7) est représentée sur la figure 3.1b par la ligne pointillée LK.



**Figure 3.1 :** Dépendance en température de l'élargissement (mi-largeur à mi-hauteur) (a) et du décalage en énergie (b) du roton dans l' $^4\text{He}$  en volume. Les lignes correspondent aux modèles décrits dans le texte respectivement de Landau et Khalatnikov (LK) et de Bedell, Pines et Zawadowski (BPZ).

En comparant les expressions (3.6) et (3.7), on en déduit que le paramètre  $g_4$  est négatif, ce qui signifie que l'interaction entre rotors est de caractère attractif et doit donc conduire à la

formation d'un état lié à deux rotors [Ruvalds 1970]. Avec le même formalisme, on obtient [Solana 1972, Zawadowski 1978] :

$$\text{Im}(\Sigma_r) = \frac{\Gamma}{2} = g_4^2 \mu Q_r N_r(T) \quad (3.8)$$

qui est une reformulation du résultat de Landau. Toutefois, les valeurs du couplage  $g_4$  obtenues en ajustant les données expérimentales sont trop grandes pour que l'approximation de Hartree-Fock soit applicable. Il est donc nécessaire de prendre en compte les termes de perturbation d'ordre supérieurs, notamment ceux liés à l'hybridation du roton avec les paires liées de rotors de moment total proche de  $Q_r$ . Cependant, un tel traitement ne permet pas de rendre compte quantitativement des résultats obtenus expérimentalement [Zawadowski 1978] et amenèrent Bedell et collaborateurs [Bedell 1984] à déterminer une structure complexe du couplage  $g_4$ . Ils dérivent alors des expressions analytiques pour la dépendance en température de l'énergie et de la largeur du roton :

$$\Delta(T) - \Delta_0 = -P_\Delta (1 + RT^{1/2}) T^{1/2} \exp(-\Delta(T)/T) \quad (3.9)$$

$$\Gamma(T) = P_\Gamma (1 + RT^{1/2}) T^{1/2} \exp(-\Delta(T)/T) \quad (3.10)$$

avec  $R=0.0603$ ,  $P_\Delta=24.72$  et  $P_\Gamma=41.6$ , où toutes les grandeurs sont en Kelvin. Comme on peut le voir sur les figures 3.1a et b, ces expressions (représentées par les lignes BPZ) décrivent bien les résultats expérimentaux entre respectivement 1.2 K et 1.7 K pour la largeur et entre 1.3 K et 2 K pour le décalage en énergie du roton. La dépendance en température de l'énergie du roton est mieux décrite dans ce cadre pour  $T > 1.5$  K que par l'expression (3.7) (représentée par la ligne pointillée LK).

### Diffusion phonon-roton

Un roton se déplaçant dans un champ de phonon est vu comme une particule localisée se déplaçant dans un milieu sujet à de petites oscillations de densité et de vitesse. Étant donné que le moment du phonon est bien plus faible que celui du roton, le phénomène de diffusion est analogue à celui de la diffusion de particules légères par des particules lourdes. À partir de ces considérations, Landau et Khalatnikov trouvent que la section efficace de diffusion pour ce processus est indépendante de la température et qu'elle augmente en loi de puissance avec l'énergie du phonon diffusé. Pour  $T < 0.6$  K, le comportement de la chaleur spécifique et

de la conductivité thermique ( $\propto T^3$ ) indique que les phonons dominant. On s'attend donc à ce que la durée de vie des rotons (créés par diffusion de neutrons) soit inversement proportionnelle au nombre de phonons thermiquement excités défini par (3.1). On discutera de l'influence de ce processus sur la largeur et l'énergie du roton à basse température dans la partie suivante.

### 3.2 Résultats expérimentaux et analyse

#### Expérience

Les mesures présentées ici ont été effectuées sur le spectromètre trois-axes IN12 avec une résolution de l'ordre de  $29 \mu\text{eV}$  (voir partie 2.2.3). On a analysé les données issues de cette expérience en ajustant les spectres obtenus par un oscillateur harmonique amorti [Talbot 1988, Fåk 1992] convolué par la fonction de résolution. Celle-ci a une forme quasi-gaussienne avec un peu d'intensité dans les ailes. On l'a déterminée à partir du spectre de  $^4\text{He}$  à  $T=0.5 \text{ K}$ , où la largeur intrinsèque est négligeable devant la résolution.

#### Résultats

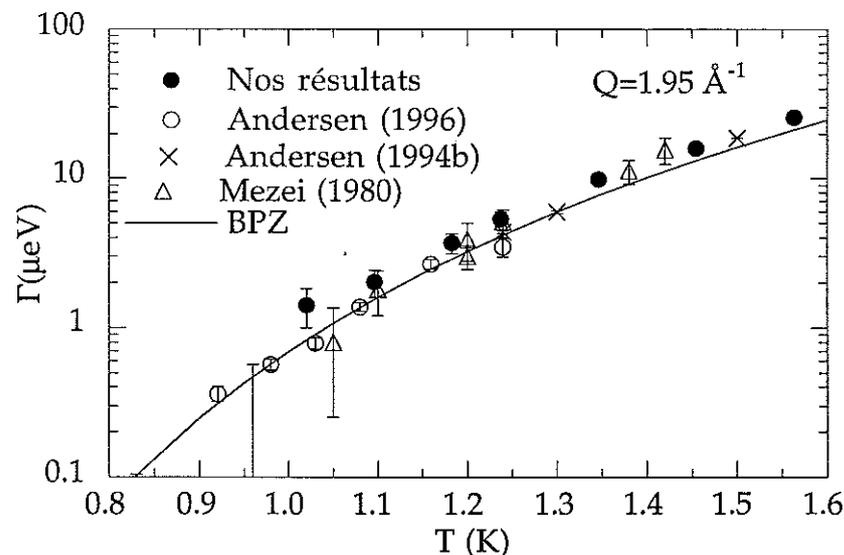
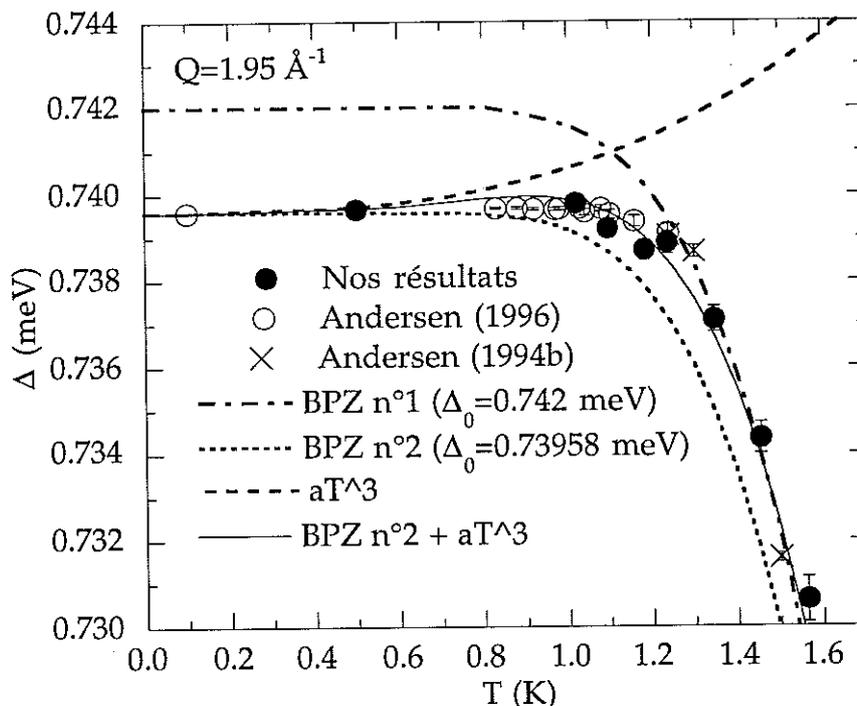


Figure 3.2 : Dépendance en température de l'élargissement (mi-largeur à mi-hauteur) du roton dans  $^4\text{He}$  en volume. On compare nos résultats à différents jeux de données et à l'expression théorique (3.10) (BPZ).

Sur la figure 3.2, on compare la dépendance en température de la largeur du roton obtenue dans cette série de mesure avec des résultats de mesures précédentes [Mezei 1983, Andersen 1994b, 1996] et avec la prédiction de Bedell et collaborateurs (BPZ). On trouve

que les largeurs obtenues sont systématiquement supérieures, mais, compte tenu de l'incertitude, toutefois en assez bon accord avec les valeurs obtenues par Ken Andersen. Les valeurs obtenues par Ken Andersen sont en très bon accord avec la prédiction BPZ entre environ 0.9 et 1.3 K.



**Figure 3.3 :** Dépendance en température de l'énergie du roton dans l'<sup>4</sup>He en volume. Nos résultats confirment ceux de Ken Andersen et collaborateurs [Andersen 1996]. Les deux expressions BPZ (n°1 et n°2) représentées ne permettent pas de décrire la dépendance en température de l'énergie du roton sur toute la gamme de températures. Nous avons ajouté un terme en  $aT^3$  à l'expression BPZ n°2 (où  $\Delta_0 = 0.73958 \text{ meV}$ ) pour représenter l'interaction des rotons avec les phonons. Le résultat est représenté par la ligne continue. Celle-ci décrit bien le comportement de l'énergie du roton sur toute la gamme de températures.

On n'arrive par contre pas à rendre compte de la dépendance en température de l'énergie du roton sur toute la gamme de températures (entre 0.1 et 1.5 K) avec le modèle BPZ. En effet, comme il est montré sur la figure 3.3, pour  $T > 1.3 \text{ K}$ , on décrit bien cette dépendance en température en prenant  $\Delta_0 = 0.742 \text{ meV}$ , mais la prédiction pour des températures inférieures est alors en désaccord avec les résultats expérimentaux. Pour représenter les différents jeux de mesure obtenus dans différentes conditions expérimentales (avec des calibrations en énergie différentes) sur le même graphe, on a décalé nos mesures de  $1.5 \text{ } \mu\text{eV}$  et celles de Ken Andersen [Andersen 1994b] de  $6 \text{ } \mu\text{eV}$  vers les basses énergies (accord à  $T = 1.24 \text{ K}$ ). Ces mesures indiquent que pour  $T < 1.3 \text{ K}$  l'énergie du roton varie moins que ce

qui est prévu par le modèle BPZ. De plus, ces mesures indiquent que cette énergie passe par un maximum et diminue ensuite très légèrement quand la température tend vers zéro. Andersen [Andersen 1996] utilise alors implicitement pour représenter le décalage en énergie  $\Delta_0 - \Delta(T)$  :  $\Delta_0 = 0.7397$  meV  $\approx \Delta(T=0.83$  K) au lieu de  $\Delta_0 = \Delta(T=0.1$  K) =  $0.73958 \pm 0.00002$  meV.

Pour représenter le comportement de l'énergie du roton sur toute la gamme de températures, nous avons alors rajouté un terme prenant en compte l'interaction des rotons avec les phonons thermiquement excités suivant le processus (C2). Par analogie avec l'équation (3.6), nous avons supposé ce terme proportionnel à la densité de phonons excités thermiquement, donnée par l'expression (3.1), et donc suivant une loi en  $T^3$ . L'addition d'un terme ( $aT^3$ ) à l'expression BPZ (3.9) où  $\Delta_0 = 0.7396$  meV permet une bonne description des données expérimentales (voir fig. 3.3) avec un facteur  $a = 0.00105$  meV/K<sup>3</sup> =  $0.012$  K<sup>-2</sup>. Ce facteur, toujours par analogie à l'équation (3.6), doit représenter l'intensité du couplage entre rotons et phonons. Le fait que l'on utilise un terme positif implique une interaction à caractère répulsif entre les deux types d'excitations élémentaires. On s'attend à ce que cette interaction entraîne aussi un élargissement du pic du roton, et donc une déviation par rapport à la loi BPZ. On n'a toutefois pas observé d'élargissement supplémentaire. Un développement théorique serait nécessaire pour quantifier l'élargissement supplémentaire auquel on devrait s'attendre, et ainsi tester la validité de la description que nous proposons.

### 3.3 Conclusion

Nous avons vérifié à des températures intermédiaires entre celles de deux séries d'expériences de Ken Andersen et collaborateurs [Andersen 1994b, 1996] que la prédiction donnée par l'expression de Bedell et collaborateurs [Bedell 1984] ne permet pas de décrire le comportement de l'énergie du roton ( $Q = 1.95$  Å<sup>-1</sup>). Cette prédiction s'inscrit dans la continuité du travail de Landau [Landau 1949] en se restreignant toutefois aux processus liés aux interactions entre rotons. La prise en compte supplémentaire des processus d'interaction entre les rotons et les phonons thermiquement excités semble permettre de décrire le comportement observé. Celui-ci impliquerait que cette interaction soit de nature répulsive, contrairement à l'interaction roton-roton.

## CHAPITRE 4

### Caractérisation des échantillons

Nous présentons dans cette partie des mesures des facteurs de structure statique ainsi que de diffusion élastique de nos différents échantillons (aerogel, Vycor, Gel-Tek). On a effectué ces mesures dans le but de comparer les propriétés structurales et dynamiques de ces différents milieux poreux.

#### 4.1 Les quantités mesurées

##### Facteur de structure statique

D'après (2.10) et (2.6), le facteur de structure statique  $S(\vec{Q})$  est défini comme :

$$S(\vec{Q}) = \int_{-\infty}^{+\infty} S(\vec{Q}, \omega) d\omega = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{\text{échantillon}} G(\vec{r}, t=0) \exp(i\vec{Q} \cdot \vec{r}) d\vec{r} \quad (4.1)$$

où  $S(\vec{Q}, \omega)$  est le facteur de structure dynamique et  $G(\vec{r}, t)$  la fonction de corrélation spatio-temporelle de Van-Hove. Ici, du fait de l'intégration en énergie, la quantité de l'espace réel sondée est  $G(\vec{r}, t=0)$ . On accède donc en fait à une moyenne d'ensemble sur un grand nombre d'«instantanés» qui conserve une information sur les corrélations dynamiques des particules.

En pratique, l'intervalle en énergie sondé est limité. Le transfert maximum d'énergie mesurable est inférieur à l'énergie incidente  $E_i$  et l'énergie que le neutron peut gagner lors du

processus de diffusion est de l'ordre de l'énergie thermique  $k_B T$ , où  $T$  est la température de l'échantillon en Kelvin et  $k_B$  la constante de Boltzmann.

Ici, nous avons mesuré sur le spectromètre trois axes à neutrons froids IN12 (ILL) le nombre total de neutrons diffusés dans un petit angle solide  $d\Omega$  autour d'une direction faisant un angle  $\phi$  avec le faisceau incident. Pour cela, nous avons enlevé le cristal analyseur et nous avons ramené le détecteur dans la direction du faisceau diffusé. Ainsi, l'intensité mesurée s'écrit avec (2.1) :

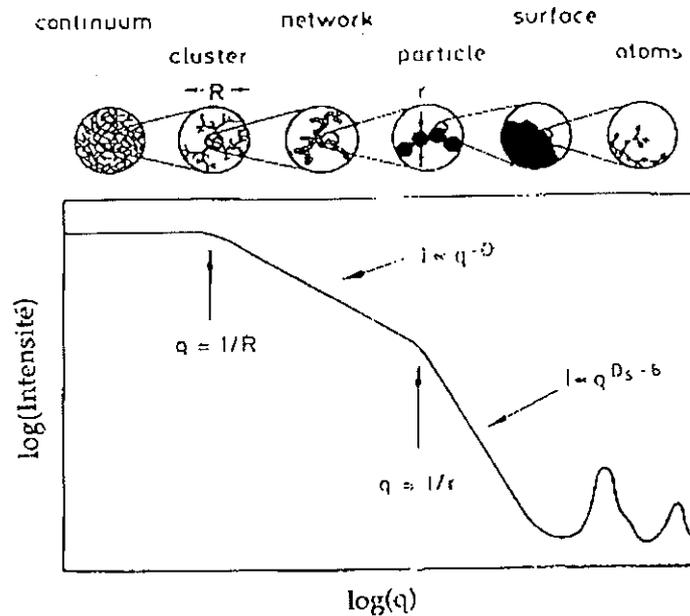
$$I(\phi) = \int_0^{(k_B T + E_i)} \eta(E_f) \left( \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE_f} \right) dE_f = N \frac{\sigma}{4\pi} \int_{-k_B T}^{E_i} \eta(E_f) \frac{k_f}{k_i} S(\vec{Q}, \omega) d(\hbar\omega) \quad (4.2)$$

où  $\eta(E_f)$  est l'efficacité du détecteur et  $k_i$  et  $k_f$  les vecteurs d'onde du faisceau de neutron respectivement incident et final. Les échantillons étudiés sont isotropes, on considère donc  $S(Q, \omega)$ . Comme cette fonction est très piquée autour de  $\omega=0$ , on peut considérer que dans l'intégrale de l'équation (4.2)  $k_f \approx k_i$  (et donc  $E_f \approx E_i$ ) et  $Q \approx Q_0 = 2k_i \sin(\phi/2)$  où  $Q_0$  représente le vecteur de diffusion élastique. On en déduit que l'intensité mesurée est à peu près proportionnelle au facteur de structure statique :

$$I(\phi) \propto \int_{-k_B T}^{E_i} S(Q_0, \omega) d\omega \approx S(Q_0) \quad (4.3)$$

Pour les aérogels, que l'on peut assimiler à un ensemble de particules identiques et centrosymétriques connectées les unes aux autres de façon aléatoire, l'intensité diffusée peut s'écrire comme le produit d'une fonction de diffusion à une particule (facteur de forme) et d'un facteur de structure inter-particules dont les importances relatives varient suivant l'échelle de longueur sondée [Emmerling 1992, Courtens 1997]. Ce modèle permet de relier les différentes parties de la courbe de diffusion aux caractéristiques structurales des échantillons sur différentes échelles de longueur. Ainsi, comme on peut le voir sur la figure 4.1, aux plus petites valeurs de  $Q$  l'intensité diffusée est constante, car on sonde des échelles de longueur auxquelles l'échantillon apparaît homogène. Ensuite, plus  $Q$  augmente et plus on scrute les échantillons sur des échelles de longueur petites (typiquement de l'ordre de  $2\pi/Q$ ). On considère successivement la structure fractale des aérogels ( $I \propto Q^{-D}$ , où  $D$  représente la dimension fractale des agrégats de particules constituant le gel), la morphologie de surface des particules "élémentaires" ( $I \propto Q^{D_s-6}$ , où  $D_s$  est la dimension fractale de surface (=2 dans le cas d'une surface lisse)), puis la structure moléculaire de ces particules. Les changements

de loi de puissance dans la courbe de diffusion peuvent être corrélés à une taille moyenne de particule ou d'agrégat.



**Figure 4.1** : Intensité typiquement diffusée aux petits angles par un réseau de particules comme un aerogel. Les caractéristiques structurales aux différentes échelles indiquées en haut de la figure apparaissent dans différentes régions de la courbe de diffusion [Emmerling 1992].

Le facteur de structure statique ne peut pas être décomposé de la même façon pour interpréter les résultats obtenus avec du Vycor. A petit Q, on observe un pic qui peut être interprété en terme de fluctuations de concentration, étroitement liées au processus de séparation de phase qui conduit à la formation du Vycor [Schaefer 1987, Wiltzius 1987, Li 1994]. On peut toutefois, à plus grand Q obtenir une information concernant l'état de surface du verre poreux. On peut aussi extraire cette information du facteur de structure statique du Gel-Tek.

Diffusion élastique

Le facteur de structure dynamique pour une diffusion élastique s'exprime d'après (2.6) comme :

$$S(\vec{Q}, \omega = 0) = \int_{t \text{ échantillon}} \int G(\vec{r}, t) \exp(i\vec{Q} \cdot \vec{r}) d\vec{r} dt \tag{4.4}$$

Dans ce cas, la quantité de l'espace réel sondée est l'intégrale temporelle de la fonction de corrélation de van Hove  $G(\vec{r}, t)$ . Celle-ci concerne uniquement les corrélations spatiales de densité des particules. On obtient donc ici une information structurale moyennée en temps, qui ne contient plus aucune information concernant les corrélations dynamiques des particules.  $S(\vec{Q}, \omega = 0)$  contient le facteur de Debye-Waller qui rend compte du temps passé par chaque particule hors de sa position d'équilibre, du fait de l'agitation thermique. Comme les échantillons sont isotropes, ici aussi on considère  $S(Q, \omega = 0)$ .

En pratique, on mesure l'intensité du pic élastique comme un produit de convolution entre la fonction dynamique de diffusion en  $\omega = 0$  et la fonction de résolution instrumentale  $R(Q, \omega)$  (cf. (2.12)), qui s'écrit en négligeant la résolution en  $Q$  :

$$I(Q_0) \propto \int_{-3\varepsilon}^{+3\varepsilon} R(Q = 0, \omega) S(Q_0, \omega) d\omega \quad (4.5)$$

où  $2\varepsilon$  représente la largeur à mi-hauteur de la résolution en énergie autour de  $\hbar\omega = 0$  meV ( $2\varepsilon \approx 100$   $\mu$ eV dans nos conditions de mesure).

La comparaison du facteur de structure statique (comprenant la somme des intensités diffusées élastiquement et inélastiquement) et de la diffusion élastique nous permet d'estimer l'évolution de la contribution dynamique à  $S(Q, \omega)$  entre différents échantillons, à différentes températures.

## 4.2 Détails expérimentaux

### Les échantillons

#### - Aerogels

Nous avons étudié trois échantillons différents d'aerogels (B95, M87.1 et M87.2) fournis respectivement par J. Beamish (University of Alberta, Canada) et par N. Mulders (University of Delaware, USA). Les échantillons B95 et M87.2 ont été synthétisés à partir de produits entièrement deutérés. L'échantillon M87.1 a été synthétisé à partir de produits hydrogénés et a subi plusieurs cycles d'exposition à du deutérium (3 bar à 430°C) en vue de substituer le maximum d'atomes d'hydrogène en surface (principalement contenus dans des groupements OH). Dans les deux cas, le but recherché est de diminuer l'intensité de la diffusion des neutrons présentée par ces échantillons. En effet, la section efficace de diffusion totale du deutérium (7.64 barn) est bien plus faible que celle de l'hydrogène (81.66 barn)

[Sears 1984]. Les trois échantillons ont été synthétisés directement dans les cellules de mesure (en inox), remplies d'hélium gazeux pour le transport.

#### - Vycor

Nous avons utilisé trois échantillons de Vycor. Les deux premiers se présentent sous forme de plaquettes et sont issus du même lot (correspondant à la marque déposée par CORNING sous le numéro 7930). Ils contiennent environ 3% de  $B_2O_3$  et présentent donc une très forte absorption neutronique (la section efficace d'absorption du bore naturel vaut 767 barn pour des neutrons d'une longueur d'onde de 1.8 Å). On les a utilisés pour les expériences sur Mibemol. Le troisième échantillon, de forme cylindrique, a été élaboré sur demande par CORNING en utilisant du bore isotopique  $^{11}B$  que nous leur avons fourni, qui présente une absorption neutronique négligeable ( $\sigma_a \approx 0.005$  barn). On a utilisé cet échantillon pour une expérience sur le spectromètre IN6. Nous avons nettoyé ces trois échantillons en suivant les instructions du fabricant. À savoir, nous les avons fait tremper dans de l'eau oxygénée (hydrogène peroxyde  $H_2O_2$  à 30 %) chauffée à 80°C pendant quelques heures de façon à oxyder les impuretés organiques qui ont pu être adsorbées sur les surfaces. Nous avons ensuite rincé les échantillons avec de l'eau distillée, puis de l'eau lourde ( $D_2O$ ). Les échantillons, saturés de liquide, sont alors translucides. Nous les avons laissés tremper pendant 24 heures dans l'eau lourde puis nous les avons séchés par pompage très progressif du liquide (un pompage trop rapide risque de faire geler l'eau dans les pores, ce qui provoquerait un éclatement du verre) jusqu'à ce qu'ils prennent un aspect blanc, légèrement opaque. On les stocke alors sous une légère surpression d'azote.

On a mesuré le facteur de structure statique uniquement de l'échantillon cylindrique. Avec les plaquettes de Vycor, on a fait une mesure de l'intensité transmise en fonction de l'angle de diffusion, de façon à connaître la concentration de  $B_2O_3$  dans celles-ci (estimée à  $\approx 3.5$  %).

#### - Gel-Tek

L'échantillon a été chauffé pendant plusieurs heures à 400°C pour désorber le plus possible de molécules organiques (impuretés). Il a ensuite été soumis plusieurs fois à une pression de 75 mbar d'un mélange d'eau et de méthanol deutérés de façon à substituer le plus possible d'atomes d'hydrogène par du deutérium.

Les échantillons qui n'ont pas été synthétisés dans les cellules de mesure (alors en inox), c'est à dire les échantillons de Vycor et le Gel-Tek, ont ensuite été introduits dans celles-ci, fabriquées dans ce cas avec un alliage d'aluminium (AG3). Pour ces opérations,

nous avons pris la précaution de les manipuler sous atmosphère inerte ( $^4\text{He}$ ) afin de ne pas adsorber de molécules d'eau sur les surfaces des pores.

### Les mesures de diffusion de neutrons

Toutes les mesures présentées dans cette partie ont été faites sur le spectromètre à neutrons froids IN12 (ILL). Elles ont été réalisées entre des périodes d'expériences programmées, et le spectromètre était en général déjà préparé pour une mesure dans une configuration spécifique. Cela explique la diversité des conditions de mesure présentées ci-dessous.

Dans un premier temps, nous avons mesuré les facteurs de structure statiques ainsi que la diffusion élastique de deux échantillons d'aérogels de mêmes dimensions : B95 et M87.1. Pour cela, nous avons utilisé un vecteur d'onde incident  $k_i=1.4 \text{ \AA}^{-1}$  ( $E_i=4.06 \text{ meV}$ ), qui nous a permis de balayer une gamme en  $Q$  entre  $0.05$  et  $2.25 \text{ \AA}^{-1}$ . On a placé un filtre en beryllium sur le faisceau incident (voir partie 2.2.1). Les collimations utilisées sont respectivement avant la sélection par le monochromateur, avant le filtre Be, et après la diffusion :  $37'$ ,  $40'$  et  $40'$ . Pour les mesures de diffusion élastique, on s'est placé en configuration W, avec une collimation de  $60'$  sur le faisceau après le cristal analyseur. Pour les mesures de facteur de structure statique, on a, comme on l'a dit plus haut, enlevé le cristal analyseur et aligné le détecteur sur la direction du faisceau diffusé. On a aussi enlevé la collimation de  $60'$ , de façon à ne pas se trouver avec deux collimateurs (mal) alignés, ce qui risquerait d'entraîner une très forte atténuation du faisceau diffusé. On a ainsi effectué une série de mesures sur nos deux échantillons d'aérogel, à  $T=300 \text{ K}$  à l'air libre et à  $T=1.5 \text{ K}$  dans un cryostat standard à  $^4\text{He}$  pompé. On a, pour déterminer le bruit de fond, mesuré les diffusions (élastique et intégrée en énergie) dues à l'air et au cryostat vide dans les mêmes conditions. Ces contributions de bruit de fond sont à peu près constantes pour des valeurs de  $Q$  supérieures à environ  $1 \text{ \AA}^{-1}$  (environ  $1.5$  coups/s pour  $S(Q)$  et  $10^{-2}$  coups/s pour  $S(Q, \omega=0)$ ), et augmentent en loi de puissance pour des valeurs de  $Q$  plus petites (toutefois pour  $Q=0.05 \text{ \AA}^{-1}$  le bruit de fond correspond dans les deux cas à environ 1% de l'intensité diffusée par nos échantillons).

Nous avons fait aussi ces mesures sur l'aérogel B95 à  $T=1.5 \text{ K}$  en utilisant un vecteur d'onde incident de  $2.55 \text{ \AA}^{-1}$  ( $E_i=13.47 \text{ meV}$ ) pour étendre les gammes en  $Q$  (jusqu'à  $Q \approx 4.2 \text{ \AA}^{-1}$ ) et en énergie. Pour ces mesures, on a enlevé le filtre de beryllium.

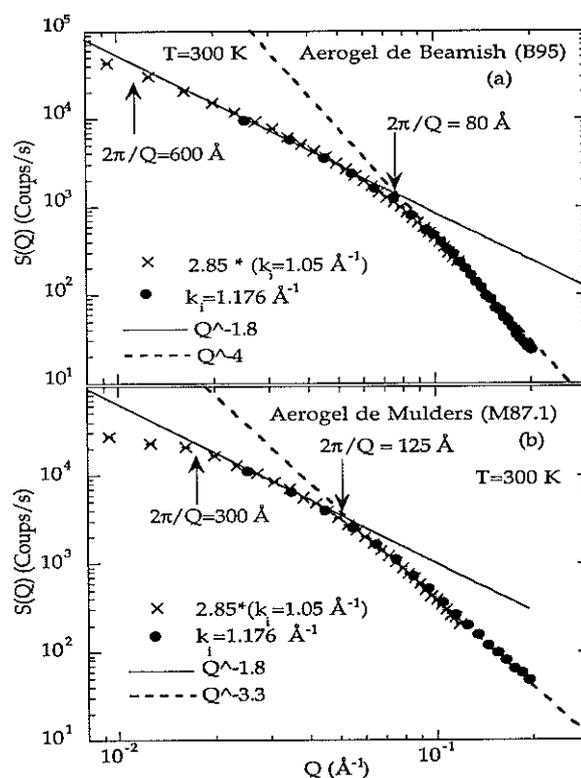
On a réalisé par la suite une autre série de mesures des facteurs de structure statiques de tous les échantillons présentés plus haut à température ambiante dans les mêmes conditions pour comparaison. On a pu descendre jusqu'à  $Q \approx 0.025 \text{ \AA}^{-1}$  avec une meilleure résolu-

tion, en utilisant  $k_i=1.176 \text{ \AA}^{-1}$  et les collimations  $20'$  et  $20'$  respectivement entre le monochromateur et l'échantillon et entre l'échantillon et le détecteur.

On a complété ces mesures à plus petit  $Q$  (jusqu'à  $Q \approx 0.009 \text{ \AA}^{-1}$ , pour un angle de diffusion de  $0.5^\circ$ ) en utilisant le vecteur d'onde incident le plus petit possible ( $k_i=1.05 \text{ \AA}^{-1}$ ) et des collimations de  $10'$  et  $10'$  disposées comme précédemment. Pour les plus petites valeurs de  $Q$ , l'intensité diffusée est tellement forte que l'on atténue le faisceau en interposant sur son trajet une plaque de plexiglas (de 5 mm d'épaisseur) afin de ne pas saturer le détecteur (le taux de comptage maximum est de l'ordre de 15000 coups par seconde).

### 4.3 Résultats et interprétation

#### Structure



**Figure 4.2 :** Facteurs de structure statiques de l'aerogel de Beamish B95 (a) et de l'aerogel de Mulders M87.1 (b). On accède au régime fractal et au régime "de surface". Les deux aerogels présentent la même dimension fractale  $D=1.8$ . L'aerogel de Beamish présente une surface lisse (loi en  $Q^{-4}$ ) tandis que celui de Mulders a une surface rugueuse (loi en  $Q^{-3.3}$ ). Les changements de régime indiquent respectivement une taille moyenne d'agrégat et de particule.

A petit  $Q$ , la représentation log-log du facteur de structure statique nous permet de déduire une dimension fractale  $D=1.8$  pour nos trois échantillons d'aerogels. On a représenté le facteur de structure statique déterminé pour les échantillons d'aerogel B95 et M87.1 sur la figure 4.2. La dimension fractale déterminée correspond à des aerogels élaborés dans des conditions de catalyse basique [Vacher 1988].

Au-delà du régime fractal, l'intensité diffusée suit, dans les échantillons B95 et M87.2 la loi de Porod ( $I \propto Q^{-4}$ ), caractéristique de la diffusion par des particules de surface lisse. Le changement de régime à une valeur de  $Q$  donnée permet de déterminer la taille moyenne des particules constitutives des agrégats fractals, de l'ordre de  $2\pi/Q$ . Celles-ci sont d'environ 80 et 70 Å respectivement dans ces deux échantillons.

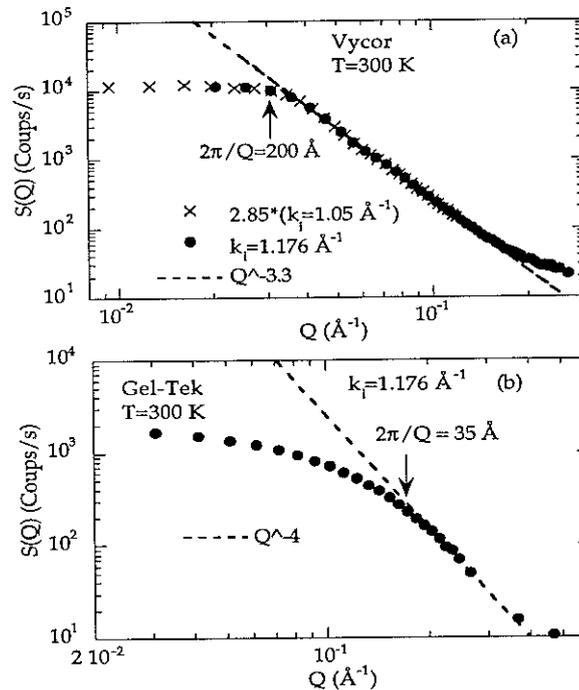
Le premier aerogel fourni par Mulders (M87.1) est, lui, constitué de particules de taille moyenne plus importante ( $\approx 125$  Å) et de surface irrégulière ( $D_s - 6 = -3.3 \Rightarrow D_s = 2.7$ ).

L'extension du domaine fractal dans tous les cas est assez réduite puisqu'elle se limite à des échelles de longueur de l'ordre de 300 Å pour les deux aerogels de Mulders et d'environ 600 Å pour l'aerogel de Beamish. Étant donné que l'extension du domaine fractal est liée à la porosité de l'échantillon [Courtens 1997], on a identifié, après comparaison à des mesures semblables [Leverrier-Foret 1992] l'échantillon M87.2 avec un échantillon de 90% de porosité (de densité  $0.22 \text{ g/cm}^3$ ). Étant donné que l'échantillon M87.1 est constitué de particules élémentaires plus grosses, on s'attend à ce que celui-ci présente une porosité légèrement plus faible.

Comme on peut le voir sur la figure 4.3a, l'échantillon de Vycor montre une surface irrégulière (on trouve  $D_s = 2.6$ ). Ce résultat est en accord avec des mesures précédentes [Höhr 1987, Benham 1989] et indique que notre échantillon a été très bien séché. On observe une déviation du régime de surface pour  $Q < 0.03 \text{ Å}^{-1}$ . Ce vecteur d'onde correspond à des fluctuations de densité ( $\lambda \approx 200$  Å) au sein du verre associées à la séparation de phase conduisant à sa formation [Schaefer 1987, Wiltzius 1987, Li 1994].

L'échantillon de Gel-Tek montre lui une surface lisse ( $D_s = 2$ ) s'étendant jusqu'à une échelle de l'ordre de 35 Å (voir fig. 4.3b).

Les intensités diffusées (élastiquement et intégrées en énergie) par tous les échantillons ont un maximum local vers  $Q \approx 1.6 \text{ Å}^{-1}$  comme dans la silice vitreuse. A cette valeur de  $Q$  (qui correspond à  $r = 2\pi/Q \approx 4$  Å), on sonde en effet la structure microscopique des particules de silice. En utilisant  $k_j = 2.55 \text{ Å}^{-1}$ , on a étendu la mesure du facteur de structure statique de l'aerogel de Beamish jusqu'à  $Q = 4 \text{ Å}^{-1}$ . On observe alors un deuxième maximum local pour  $Q \approx 3.2 \text{ Å}^{-1}$ .

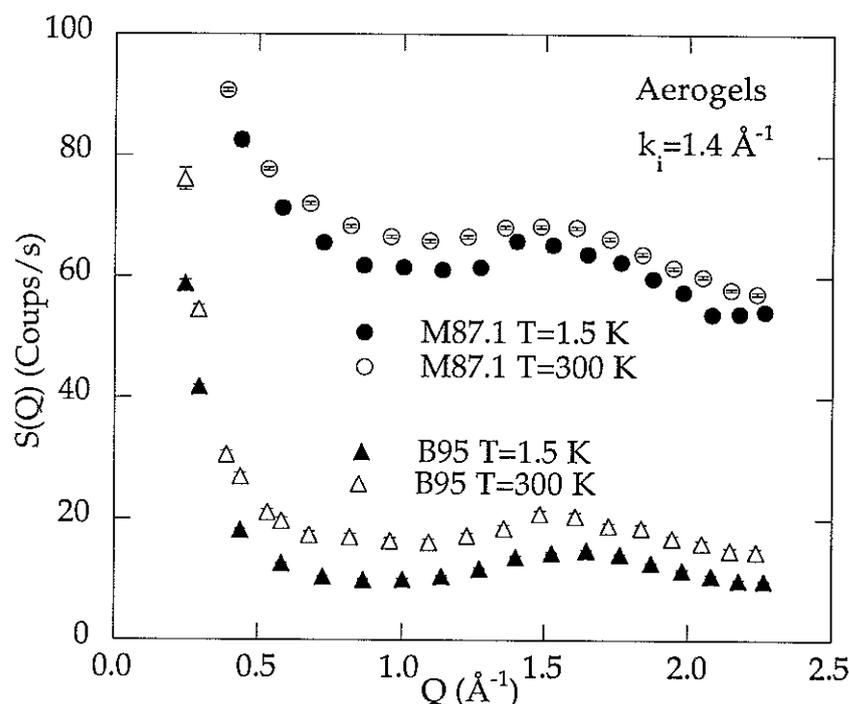


**Figure 4.3 :** Facteurs de structure statiques du Vycor (a) et du Gel-Tek (b). Le Gel-Tek présente une surface lisse (loi en  $Q^{-4}$ ), alors que le Vycor présente une surface irrégulière (loi en  $Q^{-3.3}$ ).

#### Comparaison des intensités intégrées

La figure 4.4 représente les facteurs de structure statiques des deux échantillons d'aérogel B95 et M87.1 à  $T=1.5$  et  $300\text{ K}$ . À basse température ( $1.5\text{ K}$ ), l'intensité intégrée diffusée par l'échantillon de Mulders est environ cinq fois plus importante que celle diffusée par l'échantillon de Beamish. On peut expliquer cette différence par le fait que l'échantillon de Beamish est entièrement deutéré alors que celui de Mulders ne doit l'être que partiellement. Ces intensités traduisent en effet essentiellement le contenu en atomes d'hydrogène au sein des échantillons. Ces atomes d'hydrogène se trouvent essentiellement dans des groupements hydroxyles OH adsorbés en surface [Brinker 1990]. On verra au chapitre 5 que la diffusion multiple observée avec l'échantillon de Mulders complètement rempli d' $^4\text{He}$  est environ cinq fois plus intense que celle observée avec l'échantillon de Beamish (respectivement environ 5% et 1% de l'intensité du roton).

Dans les deux échantillons,  $S(Q)$  augmente avec la température (voir fig. 4.4). L'effet est légèrement plus important dans l'échantillon de Beamish que dans celui de Mulders.

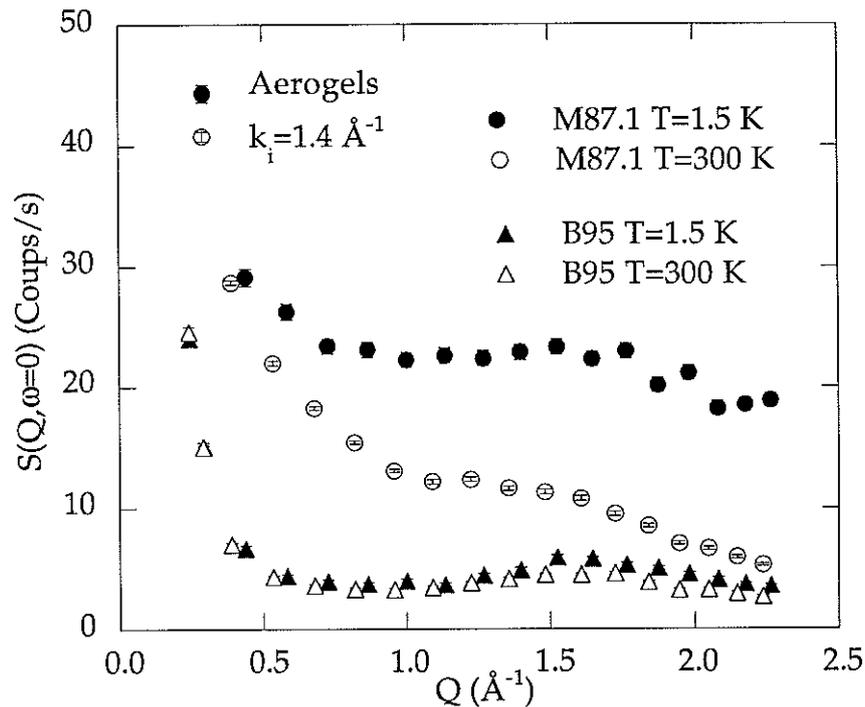


**Figure 4.4** : Comparaison des facteurs de structure statiques de l'aerogel de Mulders M87.1 et de l'aerogel de Beamish B95 mesurés à basse température ( $T=1.5$  K) et à température ambiante ( $T=300$  K). Les barres d'erreur sont plus petites que la taille des points.

#### Comparaison des intensités élastiques

Comme on peut le voir sur la figure 4.5, à basse température ( $T=1.5$  K), l'intensité diffusée élastiquement par l'échantillon de Mulders (M87.1) est aussi environ cinq fois plus importante que celle diffusée par l'échantillon de Beamish (voir fig. 4.5).

Quand la température augmente, la diffusion élastique diminue dans les deux échantillons (voir fig. 4.5). Cette baisse d'intensité est plus prononcée à grand  $Q$ . C'est l'effet du facteur Debye-Waller :  $\exp(-2W)$ , où  $2W=Q^2\langle u^2 \rangle/3$ . Le terme  $\langle u^2 \rangle$  représente le déplacement atomique quadratique moyen ( $\langle u^2 \rangle \propto T$ ). Cet effet est bien plus important dans l'échantillon de Mulders. Il doit venir essentiellement des groupements OH adsorbés en surface, plus nombreux dans cet échantillon. Ces groupements sont légers et beaucoup plus mobiles que les particules de silice formant le squelette de l'aerogel. On s'attend donc aussi à ce que l'échantillon de Mulders présente plus de diffusion inélastique.

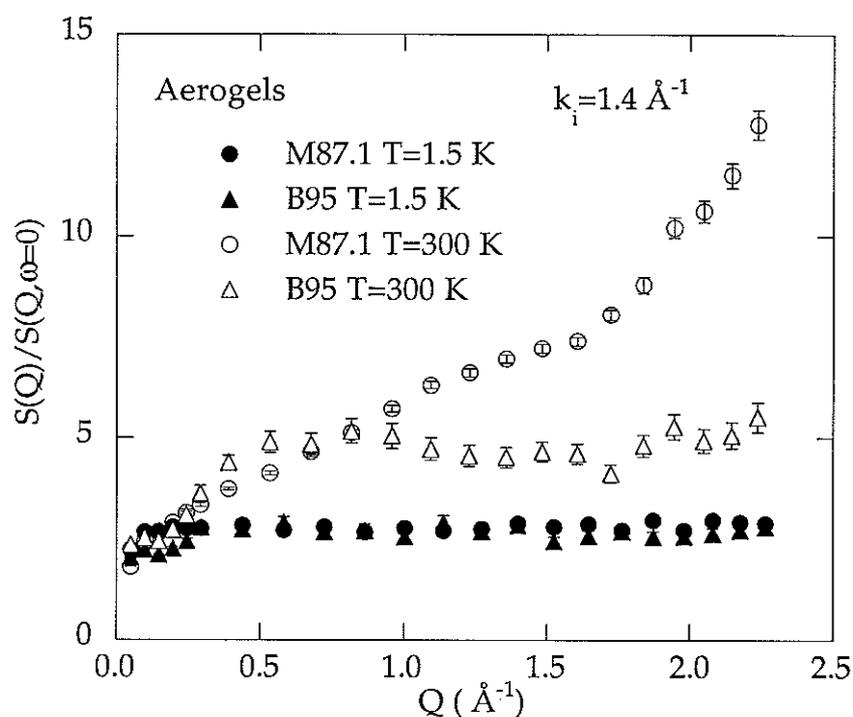


**Figure 4.5** : Comparaison des intensités élastiques diffusées par les aerogels de Mulders M87.1 et de Beamish B95 à basse température ( $T=1.5$  K) et à température ambiante ( $T=300$  K). Les barres d'erreur sont plus petites que la taille des points.

#### Comparaison de l'intensité intégrée avec la diffusion élastique

On examine le rapport  $S(Q)/S(Q, \omega = 0)$  de façon à estimer l'évolution de la contribution inélastique dans les deux échantillons B95 et M87.1. A basse température, on trouve le même rapport, à peu près constant sur toute la gamme en  $Q$  (à part une légère décroissance pour  $Q < 0.3 \text{ \AA}^{-1}$ ) (voir fig. 4.6). Cela nous indique qu'il y a à peu près la même proportion de contribution inélastique à la diffusion dans ces deux échantillons. Ceux-ci ne sont donc pas, contrairement à la silice vitreuse, gelés à cette température. En effet, pour  $T=1.5 \text{ K} = 3.10^{-2} \text{ Thz}$ , des "fractons" (modes de vibration localisés dont la longueur d'onde est du même ordre de grandeur que la taille des agrégats fractals) sont excités thermiquement (voir fig. 4.7) [Schaefer 1990, Buchenau 1992]. On a par ailleurs (voir section 2.3.2) observé de la diffusion quasi-élastique due à ces excitations. Pour les deux échantillons (à  $T=1.5 \text{ K}$ ), la contribution inélastique est proportionnelle à celle de la diffusion élastique, ce qui reflète le fait que les modes de vibrations sont étroitement liés aux caractéristiques structurales. On ne peut toutefois pas extraire d'information quantitative de ce résultat, les

deux grandeurs comparées étant mesurées dans des conditions différentes (pour la mesure de  $S(Q, \omega = 0)$ , la réflectivité de l'analyseur ainsi que la transmission du collimateur supplémentaire contribuent à atténuer le faisceau diffusé).



**Figure 4.6** : Comparaison des rapports entre le facteur de structure statique et l'intensité diffusée élastiquement pour les échantillons d'aérogel de Mulders M87.1 et de Beamish B95 à basse température ( $T=1.5$  K) et à température ambiante ( $T=300$  K).

A température ambiante, le comportement pour l'aérogel de Beamish est qualitativement le même qu'à basse température (mais le décrochement s'est déplacé à  $Q=0.5$  Å<sup>-1</sup>) (voir fig. 4.6). On observe, par contre, deux zones à peu près linéaires dans l'échantillon de Mulders. Il semble donc que la dynamique à température ambiante des deux échantillons soit qualitativement différente. Cette différence est probablement liée à la présence d'un nombre plus important de groupes OH dans l'aérogel de Mulders.

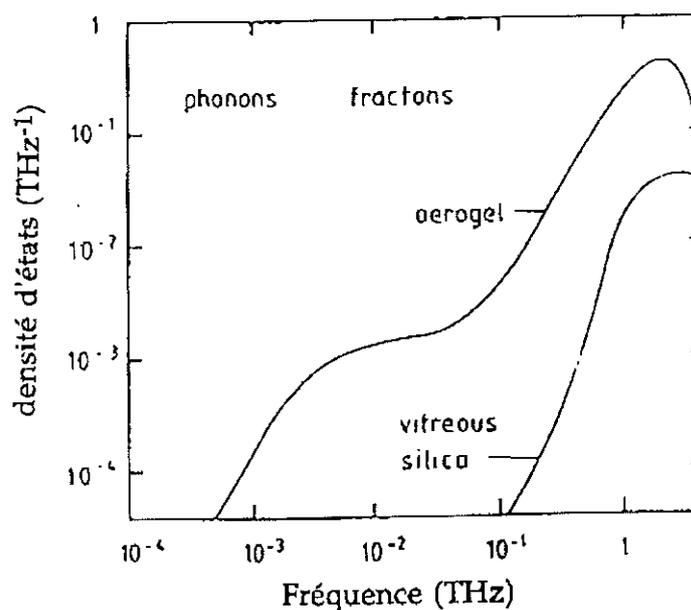


Figure 4.7 : Densité d'états vibrationnels d'un échantillon d'aerogel comparée à celle de la silice vitreuse [Buchenau 1992].

#### 4.4 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre des mesures de facteurs de structure statiques et de diffusion élastique de neutrons de nos différents échantillons. Ces mesures nous ont permis d'établir diverses caractéristiques structurales. Nous avons en particulier vérifié que nos échantillons d'aerogel présentent une structure fractale typique d'aerogel élaboré dans des conditions de catalyse basique. Nous avons aussi déterminé l'état de surface (lisse ou rugueuse) de nos échantillons. La comparaison des intensités intégrées et élastiques diffusées par les échantillons d'aerogel de Beamish (B95) et de Mulders (M87.1) nous a permis de vérifier l'efficacité d'une synthèse à partir de produits entièrement deutérés pour réduire la quantité de groupements OH adsorbés en surface de ces matériaux.



## CHAPITRE 5

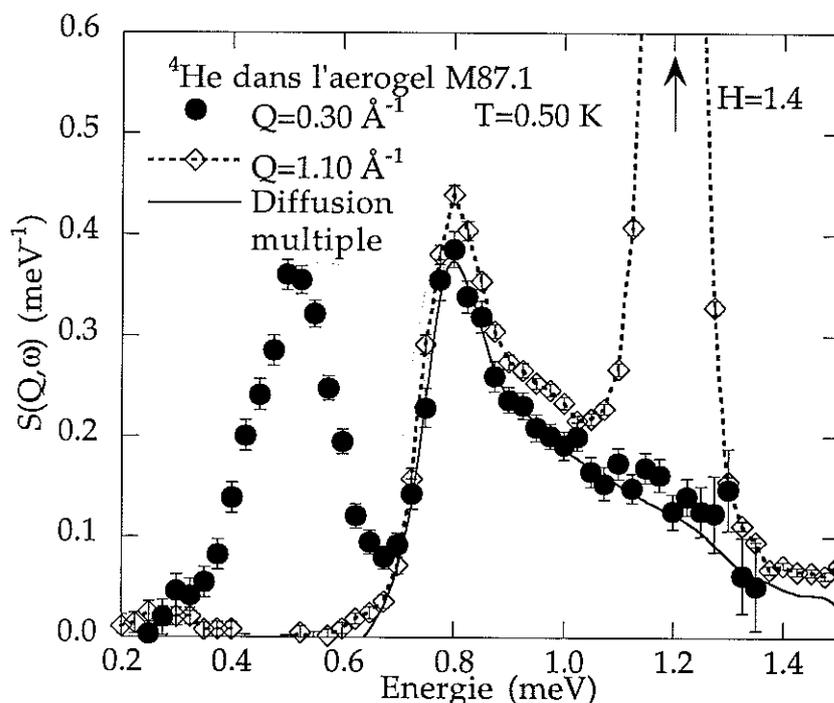
### $^4\text{He}$ dans les milieux poreux : méthodes d'analyse

On présente dans cette partie une première approche du facteur de structure dynamique de l' $^4\text{He}$  liquide dans des milieux poreux. Cette approche nous a permis de déterminer puis de soustraire des spectres une composante de diffusion multiple correspondant à la création d'une excitation combinée avec un (ou plusieurs) événements de diffusion élastique par le milieu poreux. On discute ensuite des méthodes utilisées pour analyser les données ainsi que de la structure des multiphonons observée à basse température.

#### 5.1 La diffusion multiple

En étudiant les données issues des expériences sur le spectromètre à temps de vol IN6 (aerogel M87.1 et Vycor), on a observé pour tous les vecteurs d'onde ( $0.25 \text{ \AA}^{-1} < Q < 2.15 \text{ \AA}^{-1}$ ) une contribution asymétrique, piquée à l'énergie du roton ( $\hbar\omega \approx 0.743 \text{ meV}$ ). Une telle contribution a été précédemment observée dans des spectres de diffusion des neutrons par des films d' $^4\text{He}$  liquide sur un substrat de graphite [Lauter 1992a,b, Clements 1996a] ainsi que par de l' $^4\text{He}$  liquide dans des aerogels complètement remplis [Coddens 1995, Gibbs 1997]. Cette contribution correspond à un phénomène de diffusion multiple, c'est à dire à une diffusion par l'hélium combinée avec un ou plusieurs événements de diffusion élastique par l'aerogel, le Vycor ou le graphite. Si, en première approximation, on

considère la diffusion élastique par le verre poreux comme isotrope, on s'attend à observer une contribution isotrope aux spectres, reproduisant la structure de la densité d'états. C'est à dire que toutes les excitations sont redistribuées aux autres vecteurs d'onde par diffusion élastique. On retrouve en effet pour tous les vecteurs d'onde à  $T=0.50$  K, une structure similaire à celle de la densité d'états, où on peut identifier à  $\hbar\omega \approx 0.8$  meV et 1.2 meV deux pics correspondant respectivement à la diffusion multiple due au roton ( $Q \approx 1.93 \text{ \AA}^{-1}$ ,  $\hbar\omega \approx 0.743$  meV) et au maxon ( $Q \approx 1.10 \text{ \AA}^{-1}$ ,  $\hbar\omega \approx 1.20$  meV). En diminuant l'énergie des neutrons incidents de façon à ne plus pouvoir atteindre le vecteur d'onde du roton, Coddens et collaborateurs [Coddens 1995] ont montré que cette composante supplémentaire disparaît en grande partie des spectres observés, identifiant ainsi sans ambiguïté le phénomène.



**Figure 5.1 :** La diffusion multiple (ligne continue) est représentée conjointement avec le facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  dans l'aerogel de Mulders (M87.1) à deux vecteurs d'onde où cette contribution est bien séparée du pic de l'excitation ( $Q=0.30 \text{ \AA}^{-1}$  et  $Q=1.10 \text{ \AA}^{-1}$ ) (IN6).

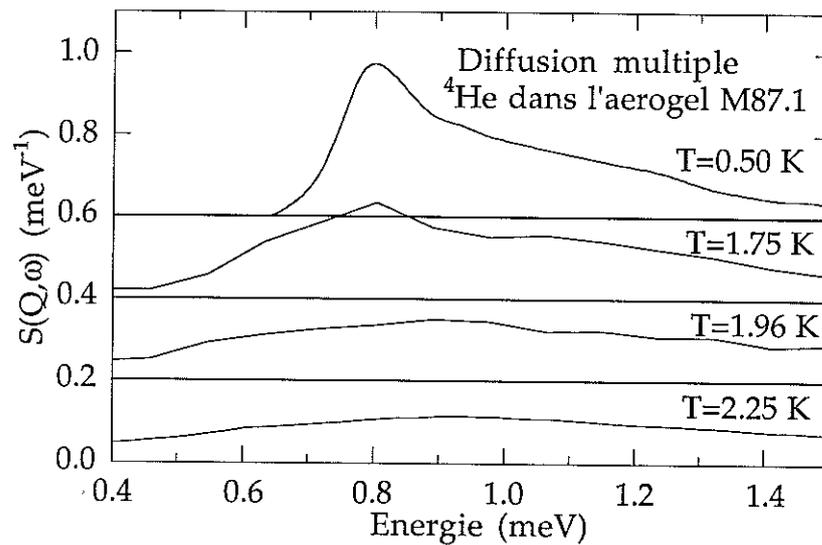
Sur la figure 5.1, on montre, dans le cas de notre échantillon d'aerogel M87.1, cette contribution de diffusion multiple à basse température ( $T=0.5$  K) à deux vecteurs d'onde ( $Q=0.30$  et  $1.10 \text{ \AA}^{-1}$ ) où elle est bien séparée du pic de l'excitation principale. À  $Q=0.30 \text{ \AA}^{-1}$ , l'intensité du pic du phonon observé se situe pour la majeure partie à des énergies inférieures à la contribution de diffusion multiple. D'autre part, on a comparé le pic du phonon à celui issu d'une mesure similaire réalisée sur l'hélium en volume libre à la même température lors

de la même expérience, sans observer de différence. On a donc normalisé la hauteur du pic observé dans l'hélium en volume libre, de façon à soustraire celui-ci du présent spectre. On détermine ainsi la contribution de diffusion multiple à  $Q=0.30 \text{ \AA}^{-1}$  jusqu'au maximum atteint en énergie pour cette valeur de vecteur d'onde, c'est à dire 1.35 meV. L'intensité de la diffusion multiple est négligeable pour des valeurs de l'énergie inférieures à 0.55 meV. Aux autres vecteurs d'onde, on soustrait de la même façon le spectre de diffusion par l'hélium en volume libre à basse température auquel on a appliqué le facteur de normalisation déterminé à  $Q=0.30 \text{ \AA}^{-1}$ . On trouve alors que la contribution de diffusion multiple conserve à peu près la même forme sur toute la gamme de vecteurs d'onde mais que son intensité augmente d'environ 50 % entre  $Q=0.30 \text{ \AA}^{-1}$  et  $Q=2.10 \text{ \AA}^{-1}$ .

Pour les échantillons de Vycor et d'aérogel M87.1, la diffusion multiple a la même intensité, de l'ordre de 5% de l'intensité du roton tandis qu'elle est de l'ordre de 10% de l'intensité du roton pour l'échantillon d'aérogel utilisé par Gibbs et collaborateurs [Gibbs 1997]. Pour l'échantillon d'aérogel fourni par Beamish (B95), et élaboré avec des produits entièrement deutérés, on a estimé celle-ci à environ 1% de l'intensité du roton [Plantévin 1998], tandis que l'échantillon de Mulders M87.2 élaboré lui aussi à partir de produits deutérés mais brièvement exposé à l'air conduit à une diffusion multiple de l'ordre de 2% de l'intensité du roton. La diffusion multiple suit donc l'évolution du facteur de structure élastique de l'aérogel discutée dans la partie 4.3. Celui-ci est essentiellement dû à la diffusion par les groupements hydroxyles (OH) adsorbés en surface des aérogels [Brinker 1990].

À  $Q=1.70 \text{ \AA}^{-1}$ , la soustraction du pic principal ( $\hbar\omega \approx 0.87 \text{ meV}$ ) permet de déterminer la diffusion multiple pour des énergies supérieures à 1.10 meV. On applique alors un facteur de normalisation sur l'intensité (de 0.6) de façon à obtenir une contribution compatible avec celle déterminée à  $0.30 \text{ \AA}^{-1}$ . En joignant les deux contributions (déterminées à  $0.30 \text{ \AA}^{-1}$  et à  $1.70 \text{ \AA}^{-1}$ ), on obtient la composante de diffusion multiple sur toute la gamme en énergie (représentée par une ligne solide sur la figure 5.1).

On applique la même procédure à chaque température. Cela nous permet d'isoler puis de soustraire des spectres la contribution provenant de la diffusion multiple à chaque température et pour chaque vecteur d'onde. Comme on peut le voir sur la figure 5.2, celle-ci s'élargit et perd sa structure quand la température augmente.



**Figure 5.2 :** Dépendance en fonction de la température de la contribution de diffusion multiple issue des spectres de  $^4\text{He}$  dans l'aerogel de Mulders (M87.1).

## 5.2 Méthodes d'analyse des données

Pour analyser les données de manière quantitative, on a besoin d'utiliser des modèles dans le cadre desquels on décrit les comportements observés. Les spectres obtenus, et en particulier leurs dépendances en température, présentent les mêmes caractéristiques que ceux issus de la diffusion par  $^4\text{He}$  en volume libre [Cowley 1971, Woods 1978, Stirling 1990, Glyde 1987, 1992a, 1994, Andersen 1994a,b]. Ceux-ci sont composés d'un pic aigu dû à l'excitation phonon-roton et d'une composante large à plus haute énergie, les multiphonons. Quand la température augmente, le pic aigu s'élargit de telle sorte qu'il y a recouvrement avec la composante large. Il est donc nécessaire de définir une méthode pour extraire les paramètres caractéristiques du pic principal. Nous présentons ci-dessous les méthodes de soustraction simple (SS) et de Woods-Svensson (WS). Nous avons mis en oeuvre ces méthodes dans un programme en FORTRAN, que nous avons écrit afin d'analyser de façon systématique les données issues des mesures avec le spectromètre à temps de vol IN6. Ce programme utilise des routines d'ajustement non-linéaire issues de la librairie de programmes Numerical Recipes. On a testé le bon fonctionnement du programme en l'appliquant aux données obtenues par K. Andersen sur le même spectromètre. Les résultats obtenus sont en très bon accord avec ceux de l'analyse réalisée par Andersen [Andersen 1991, 1994a,b]. Nous avons aussi utilisé les méthodes de décomposition des données SS et WS pour analy-

ser les spectres issus des mesures sur le spectromètre à trois axes IN12. Dans ce cas, nous avons utilisé le programme PKFIT développé à l'ILL.

### 5.2.1 Méthode de soustraction simple (SS)

Cette méthode a été introduite par Miller *et al.* [Miller 1962] et a été utilisée dans l'étude extensive du facteur de structure dynamique de l' $^4\text{He}$  liquide à basse température ( $T=1.1$  K) menée par Cowley, Woods et collaborateurs [Cowley 1971]. Elle consiste à décomposer le facteur de structure dynamique total  $S(Q, \omega)$  en une composante à une excitation  $S_1(Q, \omega)$ , correspondant au pic principal, et en une composante multiexcitation (aussi appelée multiphonon)  $S_m(Q, \omega)$ , correspondant à la composante large observée à plus haute énergie et représentant la création simultanée de plusieurs excitations en un événement de diffusion :

$$S(Q, \omega) = S_1(Q, \omega) + S_m(Q, \omega) \quad (5.1)$$

Le pic aigu caractéristique de l'excitation est décrit par [Talbot 1988, Fåk 1992, Glyde 1994]

$$S_1(Q, \omega) = \frac{Z_Q}{\pi} [n_B(\omega) + 1] \left[ \frac{\Gamma_Q}{(\omega - \omega_Q)^2 + \Gamma_Q^2} - \frac{\Gamma_Q}{(\omega + \omega_Q)^2 + \Gamma_Q^2} \right] \quad (5.2)$$

où  $Z_Q$ ,  $\Gamma_Q$  et  $\omega_Q$  représentent respectivement l'intensité, la mi-largeur à mi-hauteur et l'énergie de l'excitation. Le facteur thermique de population est représenté par la distribution de Bose  $n_B(\omega)$  où  $n_B(\omega) + 1 = (1 - \exp(-\beta\hbar\omega))^{-1}$ , avec  $\beta = 1/k_B T$ . Si l'amortissement est négligeable ( $\Gamma_Q \ll \omega_Q$ ) comme c'est le cas à basse température, l'équation (5.2) se simplifie en :

$$S_1(Q, \omega) = [n_B(\omega) + 1] Z_Q [\delta(\omega - \omega_Q) - \delta(\omega + \omega_Q)] \quad (5.3)$$

Dans les équations (5.2) et (5.3), le premier terme est le terme de Stokes, correspondant à la création d'une excitation ( $\omega = \omega_Q$ ) et le second, le terme anti-Stokes correspondant à l'annihilation d'une excitation ( $\omega = -\omega_Q$ ) par le neutron diffusé. La fonction définie par l'équation (5.2) n'a de sens physique que tant que l'excitation est bien définie ( $\Gamma_Q < \omega_Q$ ). Lorsqu'on s'approche de la température critique de transition superfluide ( $T > 2$  K), les exci-

tations sont fortement élargies et, au-delà de la région des phonon ( $Q > 0.8 \text{ \AA}^{-1}$ ), on ne peut plus interpréter  $\omega_Q$  et  $\Gamma_Q$  comme des énergies et largeurs d'excitations, mais il faut plutôt voir ceux-ci en terme de paramètres utiles pour représenter l'évolution observée. En réduisant les deux termes de l'équation (5.2) au même dénominateur, celle-ci peut s'écrire sous la forme d'un oscillateur harmonique amorti (Damped Harmonic Oscillator (DHO)) [Talbot 1988] :

$$S_1(Q, \omega) = \frac{Z_Q}{\pi} [n_B(\omega) + 1] \frac{4\omega\omega_Q\Gamma_Q}{\left[\omega^2 - (\omega_Q^2 + \Gamma_Q^2)\right]^2 + [2\omega\Gamma_Q]^2} \quad (5.4)$$

Sous cette forme, l'énergie  $\Omega_Q = (\omega_Q^2 + \Gamma_Q^2)^{1/2}$  est généralement identifiée, par analogie avec la description des phonons anharmoniques dans les solides, à l'énergie de l'excitation [Fåk 1992, 1997]. Nous identifierons cependant dans cette étude  $\omega_Q$  à l'énergie de l'excitation, car elle correspond à l'énergie utilisée par Talbot *et al.* [Talbot 1988] dans leur dérivation de (5.2), et que celle-ci s'inscrit dans une interprétation en terme de processus Stokes et anti-Stokes. Cette énergie est celle la plus fréquemment utilisée pour l'étude des excitations de l' $^4\text{He}$  liquide. Quand on s'approche de  $T_\lambda$  et que les excitations deviennent fortement amorties, ce choix a une importance car  $\omega_Q$  et  $\Omega_Q$  présentent un comportement radicalement différent comme on peut le voir sur la figure 5.3.

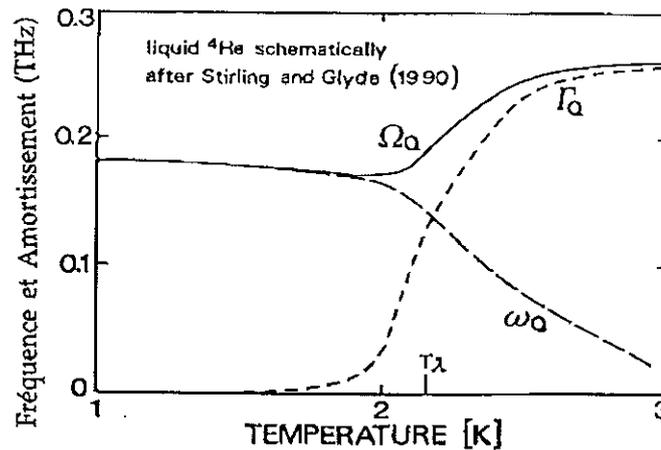


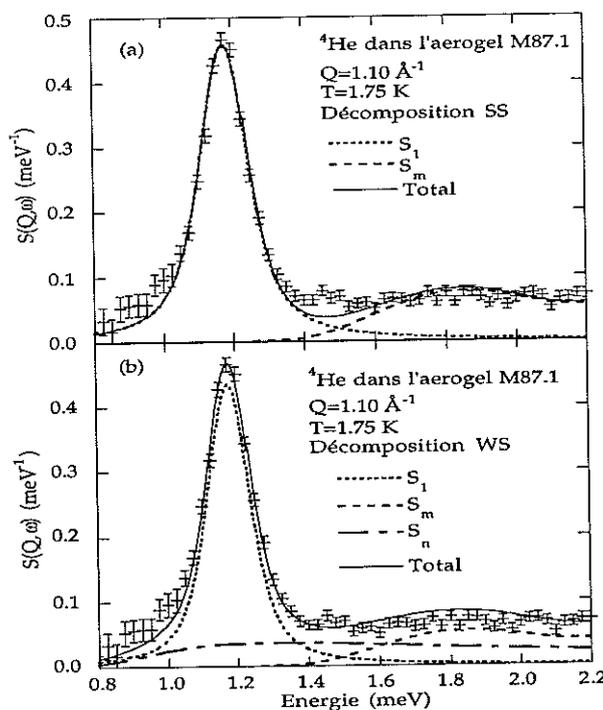
Figure 5.3 : Comparaison de la dépendance en température des énergies  $\omega_Q$  et  $\Omega_Q$  définies dans le texte [Fåk 1992]. Nous identifierons dans cette étude  $\omega_Q$  avec l'énergie d'excitation.

Nous soulignons que dans l'interprétation des excitations de l' $^4\text{He}$  liquide de Glyde et Griffin [Glyde 1990, 1992b, 1994, Griffin 1993], une fonction plus compliquée à cinq pa-

ramètres est utilisée pour décrire  $S_1(Q, \omega)$  dans laquelle interviennent les énergies correspondant à l'excitation de quasiparticules et aux fluctuations de densité, considérées de manière distincte.

Dans l'expression (5.1), on considère  $S_m(Q, \omega)$  comme indépendant de la température, bien que l'on sache que la structure observée dans les multiphonons disparaît quand on augmente la température. On extrait cette contribution des spectres à la plus basse température observée ( $T=0.5$  K) où le pic principal est le plus aigu, et donc le mieux séparé des multiphonons. On discutera de la structure observée dans les multiphonons à basse température dans la section 5.3. À plus haute température, on ajuste les spectres observés par l'expression (5.1) où le pic aigu défini par les équations (5.2) ou (5.4) est convolué par la fonction de résolution instrumentale. Les seuls paramètres libres de l'ajustement sont alors ceux du pic principal :  $Z_Q$ ,  $\Gamma_Q$  et  $\omega_Q$ . Mais, le facteur de structure statique  $S(Q)$  (cf. (2.10)) étant approximativement indépendant de la température [Glyde 1994] et, étant donné qu'on a choisi une contribution de multiphonons constante, l'équation (5.1) conduit par définition à un  $Z_Q$  à peu près constant en fonction de la température.

On a représenté sur la figure 5.4a un exemple d'ajustement par la méthode SS du facteur de structure dynamique déterminé au niveau du roton.



**Figure 5.4 :** Ajustement du facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  dans l'aerogel de Mulders (M87.1) au vecteur d'onde du maxon à  $T=1.75$  K (IN6) par les méthodes SS (a) et WS (b). La diffusion multiple a été soustraite des données présentées ici. Les différentes composantes des ajustements sont décrites dans le texte. Comme on peut le voir, la méthode WS conduit à des largeurs d'excitation plus petites que la méthode SS.

### 5.2.2 Méthode de Woods et Svensson (WS)

L'observation par Woods et Svensson [Woods 1978] d'un changement qualitatif à  $T_\lambda$  dans les spectres de diffusion neutronique de l' $^4\text{He}$  liquide les a conduit à proposer un modèle plus élaboré que celui de la soustraction simple présenté ci-dessus pour décomposer les données. Pour des vecteurs d'onde compris entre  $0.8 \text{ \AA}^{-1}$  et  $1.93 \text{ \AA}^{-1}$ , Woods et Svensson ont interprété les spectres mesurés en supposant que le pic aigu correspondant à l'excitation, et superposé à une composante large, disparaît à  $T_\lambda$ . Au-dessus de la température de transition superfluide, on n'observe plus pour ces vecteurs d'onde qu'une composante large similaire à celle obtenue dans les spectres de diffusion par des liquides classiques. Ils proposent alors de décomposer les spectres observés à chaque température en la somme d'une composante proportionnelle à la fraction normale de la densité  $n_n = \rho_n / \rho$  et d'une composante proportionnelle à la fraction superfluide de la densité  $n_s = \rho_s / \rho$ , où on a  $n_n + n_s = 1$ . Cette décomposition s'écrit comme :

$$S(Q, \omega; T) = n_s(T)S_s(Q, \omega; T) + n_n(T)S_n(Q, \omega; T) \quad (5.5)$$

La composante normale  $S_n(Q, \omega; T)$  représente la composante large déterminée à partir d'un spectre mesuré à une température  $T_+$  supérieure à  $T_\lambda$ . Elle correspond à des fluctuations de densité classiques au sein du liquide, et dans l'état superfluide à la diffusion par la composante normale de l'hélium. On suppose que sa dépendance en température est entièrement due au facteur de population thermique de Bose. Cette contribution s'écrit donc comme :

$$S_n(Q, \omega; T) = \frac{1 - \exp(-\hbar\omega/k_B T_+)}{1 - \exp(-\hbar\omega/k_B T)} S(Q, \omega; T_+) \quad (5.6)$$

La partie du spectre de diffusion spécifiquement associée à la partie superfluide  $n_s(T)S_s(Q, \omega; T)$  se décompose comme dans la méthode SS en une contribution aigüe à une excitation  $S_1(Q, \omega; T)$  et une contribution large à plus haute énergie associée aux multiphonons  $S_m(Q, \omega)$  :

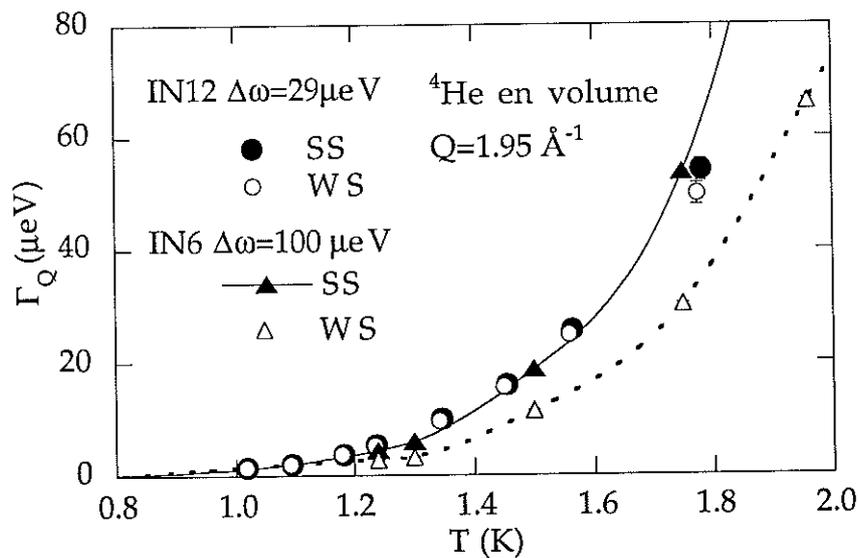
$$n_s(T)S_s(Q, \omega; T) = S_1(Q, \omega; T) + n_s(T)S_m(Q, \omega) \quad (5.7)$$

La contribution des multiphonons est supposée indépendante de la température hormis le préfacteur  $n_s(T)$ . On la détermine comme plus haut à la plus basse température mesurée

( $T=0.5$  K). La contribution aigüe  $S_1(Q, \omega; T)$  est décrite comme précédemment par les équations (5.2) ou (5.4). Les spectres observés sont ajustés par l'expression (5.5) où le pic aigü est convolué avec la fonction de résolution instrumentale. Les seuls paramètres libres de l'ajustement sont ceux du pic principal :  $Z_Q$ ,  $\Gamma_Q$  et  $\omega_Q$ . On a représenté sur la figure 5.4b un exemple d'ajustement par la méthode WS du facteur de structure dynamique au niveau du roton.

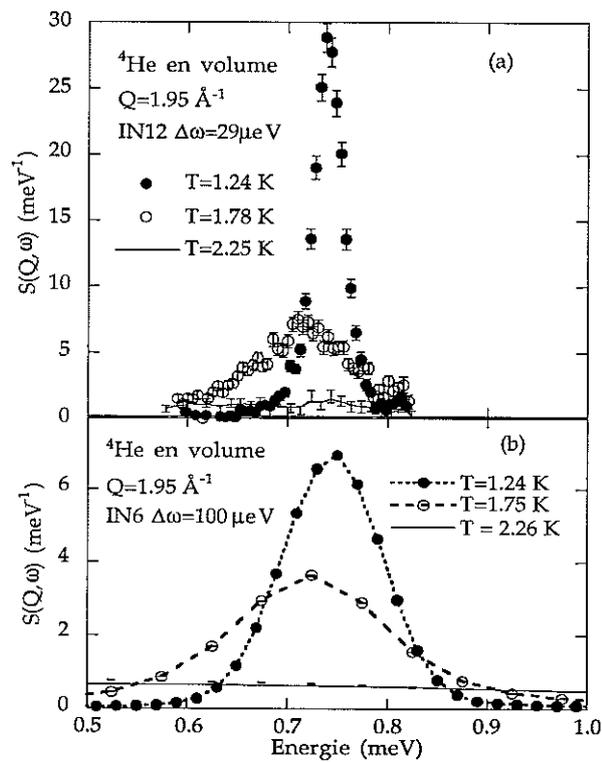
Toutefois, comme dans le cas du modèle SS, notre équation de départ (5.5) contraint  $Z_Q$ . Dans le cas présent,  $Z_Q$  est astreint à suivre la même dépendance en température que  $n_s(T)$  [Mineev 1980, Talbot 1988].

D'autre part, le modèle tel qu'on l'a présenté a tendance à sur-estimer l'intensité à basse énergie au niveau du roton (du fait de la composante  $S_n$ ) aussi bien pour des mesures de l' $^4\text{He}$  liquide sous sa pression de vapeur saturante [Andersen 1991, 1994a,b] que sous une pression de 20 bar [Talbot 1988]. Il conduit aussi à sur-estimer l'intensité dans le pied du pic de l'excitation au niveau des phonons où, par ailleurs, les données ne suggèrent pas une telle décomposition [Stirling 1990].



**Figure 5.5 :** Dépendance en température des largeurs d'excitation (mi-largeur à mi-hauteur) obtenues au niveau du vecteur d'onde du roton selon les méthodes SS et WS à partir de deux expériences de résolutions différentes. Les résultats de l'expérience à haute résolution (IN12,  $\Delta\omega=29$   $\mu\text{eV}$ ) sont issus de ce travail. Les résultats de l'expérience à moins bonne résolution (IN6,  $\Delta\omega=100$   $\mu\text{eV}$ ) sont issus du travail de Ken Andersen et collaborateurs [Andersen 1994]. Les lignes sont des guides pour les yeux.

Nous avons aussi mis en évidence un problème lié à l'utilisation de cette méthode pour comparer des résultats issus d'expériences réalisées dans différentes conditions de résolution. Sur la figure 5.5, on montre l'évolution en fonction de la température de la largeur du pic du roton obtenue selon les méthodes SS et WS à partir des spectres de diffusion de deux expériences de résolutions différentes ( $\Delta\omega \approx 29 \mu\text{eV}$  sur IN12 et  $\Delta\omega \approx 100 \mu\text{eV}$  sur IN6). Dans l'expérience à haute résolution, les largeurs obtenues avec les deux méthodes sont en très bon accord jusqu'à la plus haute température mesurée ( $T=1.78 \text{ K}$ ). Dans le cas de l'expérience de Ken Andersen et collaborateurs sur IN6 [Andersen 1991, 1994a,b], les largeurs obtenues selon les deux méthodes sont nettement différentes pour  $T>1.5 \text{ K}$ .



**Figure 5.6** : Facteur de structure dynamique déterminé à trois températures différentes au niveau du roton avec une haute résolution (a) et avec une moins bonne résolution (b). Les spectres présentés en (b) ont été déterminés par Ken Andersen et collaborateurs [Andersen 1994].

En effet, la hauteur d'un pic aigu (le roton) et d'une composante large (la composante normale dans la décomposition WS) ne seront pas affectées de la même façon par la résolution expérimentale. Pour illustrer ceci, on compare sur la figure 5.6, les facteurs de structure dynamiques de l' $^4\text{He}$  liquide déterminés au niveau du roton pour trois températures dans les deux conditions de résolution différentes. A  $T=2.25 \text{ K}$ , dans la phase normale, l'intensité de

la raie observée est très large et sa hauteur est la même dans les deux conditions de résolution. La composante normale, extraite de la diffusion observée à  $T=2.25$  K suivant l'expression (5.6), sera donc la même dans les deux cas. Par contre, le pic obtenu à basse température ( $T=1.24$  K) est bien plus haut avec une meilleure résolution. Il est clair que la soustraction de la composante normale des spectres aux températures intermédiaires aura un effet plus marqué dans le cas où la résolution est la plus large.

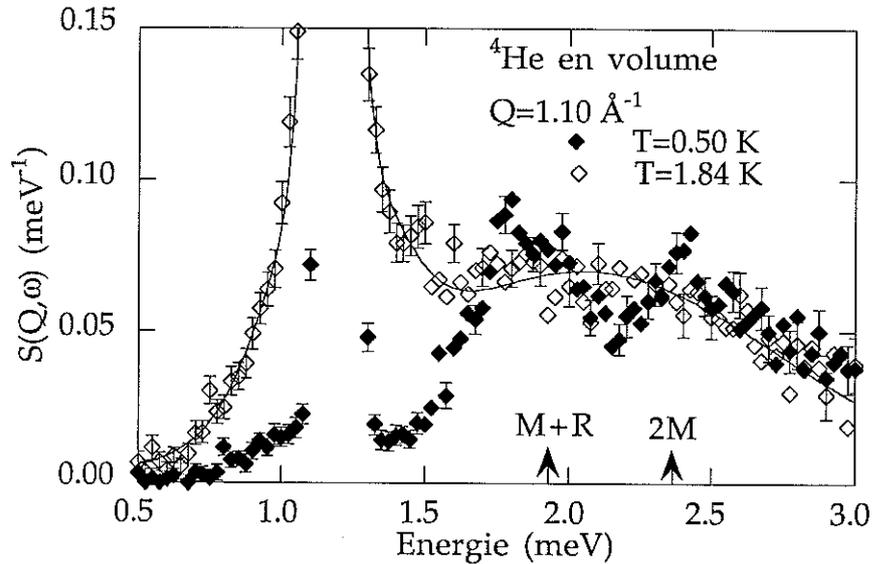
Nous pensons donc que la méthode WS n'est pas fiable pour comparer quantitativement des spectres de diffusion issus d'expériences différentes et nous préférons donc par la suite utiliser la méthode SS pour comparer l'évolution avec la température des spectres de diffusion de  $^4\text{He}$  liquide confiné dans des milieux poreux à ceux de  $^4\text{He}$  liquide en volume libre.

### 5.3 Les multiphonons

La contribution large observée à haute énergie, au-delà du pic de l'excitation phonon-roton, a été relativement peu étudiée jusqu'à présent. Cowley, Woods et collaborateurs [Cowley 1971] ont mis en évidence la présence de cette contribution à basse température dans les spectres de diffusion de  $^4\text{He}$  en volume pour des vecteurs d'onde supérieurs à  $Q=0.4 \text{ \AA}^{-1}$  (voir fig. 1.3). L'intensité de cette composante en fonction du vecteur d'onde augmente à peu près linéairement jusqu'à  $Q=1.5 \text{ \AA}^{-1}$ , puis plus rapidement ensuite. Pour  $Q>2.0 \text{ \AA}^{-1}$ , le pic aigu de l'excitation diminue progressivement en intensité, pour disparaître vers  $Q=3.8 \text{ \AA}^{-1}$  où on n'observe plus qu'une composante large centrée un peu en dessous de l'énergie de recul des atomes d' $^4\text{He}$  :  $\hbar^2 Q^2 / 2m_4$ . Pour d'encore plus grandes valeurs de  $Q$  ( $Q>5 \text{ \AA}^{-1}$ ), cette composante correspond à la diffusion par des atomes d'hélium quasi-indépendants.

Dans la région de la dispersion phonon-roton ( $Q<2.3 \text{ \AA}^{-1}$ ), on observe dans la composante large à haute énergie une structure qui disparaît quand la température augmente. Cette structure a été associée à la création de paires d'excitations [Stirling 1991, Andersen 1994a]. Sur la figure 5.7, on a représenté le facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  liquide en volume déterminé au niveau du maxon ( $Q=1.10 \text{ \AA}^{-1}$ ) pour deux températures ( $T=0.5$  K et  $T=1.84$  K). A basse température, on observe deux pics que l'on peut associer respectivement à la création d'un maxon et un roton ( $M+R$  :  $\hbar\omega \approx 1.93$  meV) et de deux maxons ( $2M$  :  $\hbar\omega \approx 2.37$  meV). Ceux-ci se lissent pour ne former plus qu'une seule composante large quand la température augmente. Selon la description de Glyde et Griffin [Griffin 1993], ces résonances liées à l'excitation de paires d'excitations disparaissent,

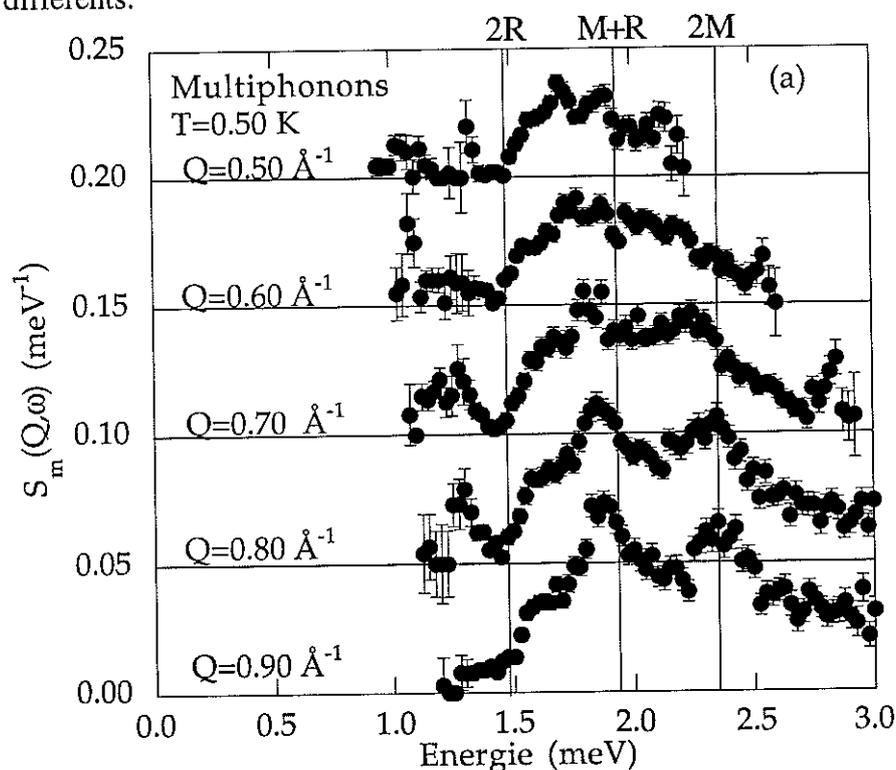
comme les quasiparticules, du spectre des fluctuations de densité à mesure que la fraction d'atomes condensés diminue, c'est à dire à mesure qu'on s'approche de  $T_\lambda$ . On voit donc que les modèles SS et WS décrits plus haut dans lesquels on considère la contribution des multiphonons comme indépendante de la température sont inadaptés.



**Figure 5.7 :** Facteur de structure dynamique de l' $^4\text{He}$  en volume déterminé au niveau du maxon à deux températures. Les spectres présentés ici sont issus de notre travail, et ont été mesurés sur le spectromètre IN6 avec une résolution d'environ  $90 \mu\text{eV}$ . Les flèches indiquent les positions des énergies des pics observés à basse température et associés respectivement à la création d'un maxon et d'un roton (M+R) et de deux maxons (2M). La ligne est un guide pour les yeux. Pour plus de lisibilité, on a représenté qu'une barre d'erreur sur quatre pour des énergies supérieures à  $1.5 \text{ meV}$ .

À basse température, l'étude de la dépendance en fonction du vecteur d'onde de la structure des multiphonons devrait apporter des informations concernant les interactions entre excitations. On présente sur les figures 5.8 a,b et c les composantes de multiphonons que nous avons extraites des spectres de diffusion de l' $^4\text{He}$  en volume libre à  $T=0.5 \text{ K}$  pour des vecteurs d'onde allant de  $Q=0.5 \text{ \AA}^{-1}$  à  $Q=2.00 \text{ \AA}^{-1}$ . Aux vecteurs d'onde  $Q=0.70 \text{ \AA}^{-1}$  et  $0.80 \text{ \AA}^{-1}$ , l'intensité observée autour de  $\hbar\omega=1.2 \text{ meV}$  est très probablement un artefact dû à la soustraction du pic de l'excitation, car elle n'apparaît ni à plus petit ni à plus grand  $Q$ . On s'attend a priori à observer aux différents vecteurs d'onde une structure piquée au niveau des énergies correspondant à la formation des paires de quasiparticules les plus probables, à savoir deux rotors (2R :  $\hbar\omega \approx 1.5 \text{ meV}$ ), un maxon et un roton (M+R :  $\hbar\omega \approx 1.93 \text{ meV}$ ) et deux maxons (2M :  $\hbar\omega \approx 2.37 \text{ meV}$ ). Cela correspond à peu près à ce que l'on observe entre  $0.70 \text{ \AA}^{-1}$  et  $1.00 \text{ \AA}^{-1}$ . A  $Q=0.90 \text{ \AA}^{-1}$  en particulier (figure 5.8 a), les trois résonances sont

clairement visibles. La première se caractérise par un épaulement plutôt qu'un pic. La deuxième est située légèrement en-dessous de (M+R) tandis que la troisième se situe exactement à l'énergie correspondant à la création de deux maxons (2M). L'étude de la composante de multiphonons aux autres vecteurs d'onde nous permet d'établir que sa structure évolue. A plus petit Q, on remarque que les pics observés sont dispersifs. A plus grand Q, la structure décrite a tendance à s'aplanir. Aussi, pour  $Q > 1.30 \text{ \AA}^{-1}$ , on observe une contribution d'intensité croissante à des énergies inférieures à celle correspondant à la formation de deux rotons (2R). Cette intensité augmente avec Q et est le plus probablement due à l'excitation d'un roton et d'un phonon. Pour des énergies supérieures à celle correspondant à (2R), on observe un plateau d'intensité à peu près constante. Pour  $Q > 1.50 \text{ \AA}^{-1}$  (fig. 5.8 c), une discontinuité apparaît de plus en plus nettement à (2R), séparant deux plateaux à deux niveaux d'intensité différents.



**Figure 5.8a** : Dépendance en fonction du vecteur d'onde de la contribution des multiphonons issue du facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  en volume déterminé sur le spectromètre IN6 à  $T=0.50 \text{ K}$ . Les lignes verticales indiquent les positions des énergies associées par ordre croissant aux processus de création de deux rotons (2R), d'un maxon et d'un roton (M+R) et de deux maxons (2M).

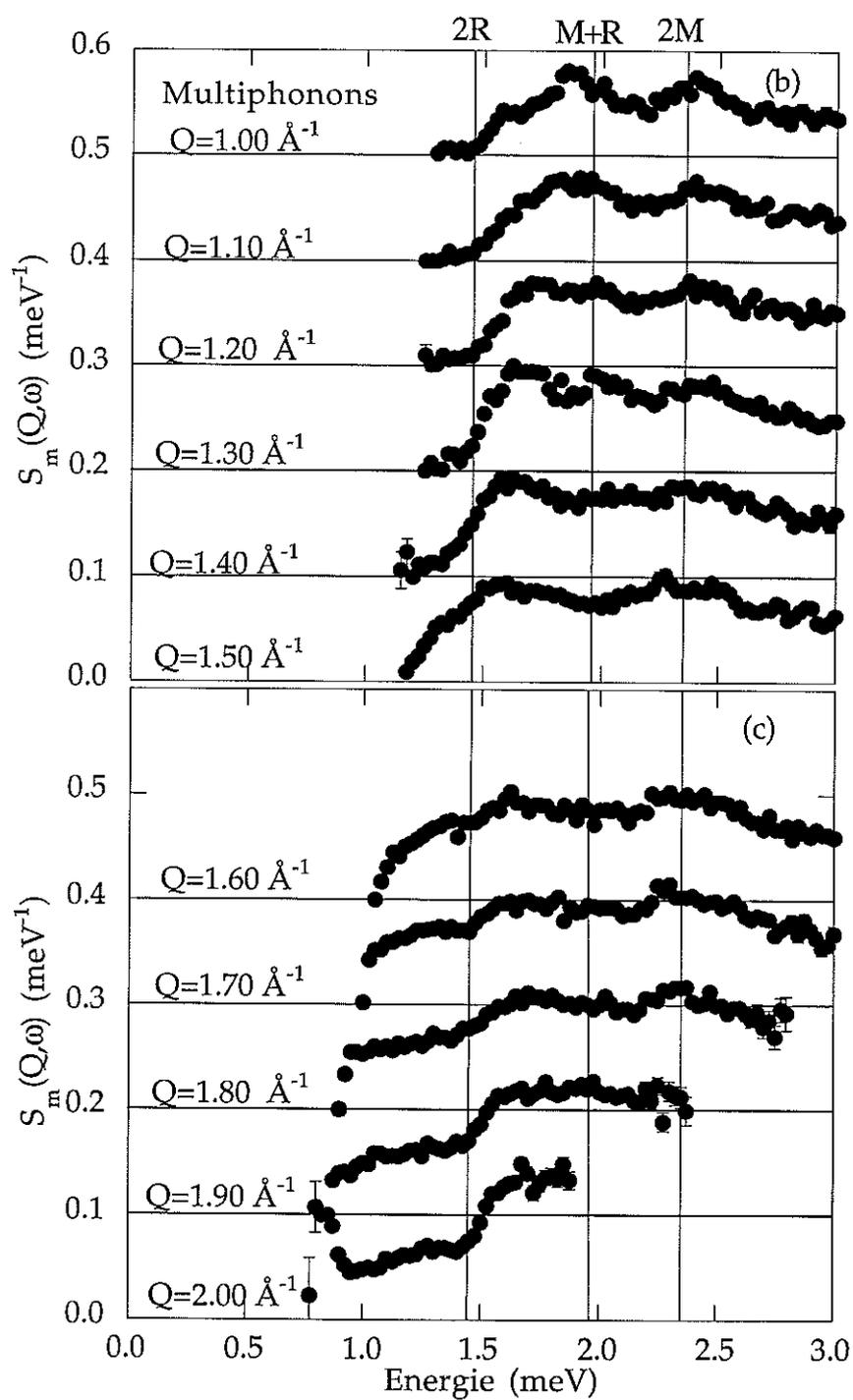


Figure 5.8b,c : suite de 5.8a. Les barres d'erreur sont de l'ordre de la taille des points.

Différentes études théoriques de la structure des multiphonons ont été menées à  $T=0$  K [Jackson 1971, Götze 1976, Manousakis 1986]. Jackson [Jackson 1971] calcule les densités d'états à deux quasiparticules pour différents vecteurs d'onde. Celles-ci reproduisent assez bien les structures observées. Il montre une structure avec un plateau pour  $\hbar\omega > \hbar\omega(2R)$  ainsi que les résonances à  $(M+R)$  et  $(2M)$ . Götze et Lücke [Götze 1976] montrent une structure avec un double pic mais pour des énergies surestimées et des rapports d'intensité entre les pics déséquilibrés. Manousakis et Pandharipande [Manousakis 1986] décrivent une structure avec de nombreuses résonances. Celles-ci ne sont pas en très bon accord avec nos mesures. En particulier, ils trouvent que le pic prédominant pour des valeurs de  $Q$  intermédiaires ( $Q=0.825 \text{ \AA}^{-1}$  et  $Q=1.125 \text{ \AA}^{-1}$ ) se trouve entre  $(M+R)$  et  $(2M)$ , et qu'il se trouve à peu près au niveau de  $(2M)$  au vecteur d'onde du roton ( $Q=1.925 \text{ \AA}^{-1}$ ). De nouvelles études expérimentales (à haute résolution, sous pression,...) et théoriques sont nécessaires afin de mieux décrire la structure des multiphonons et d'en extraire des informations quantitatives concernant les interactions entre excitations.



## CHAPITRE 6

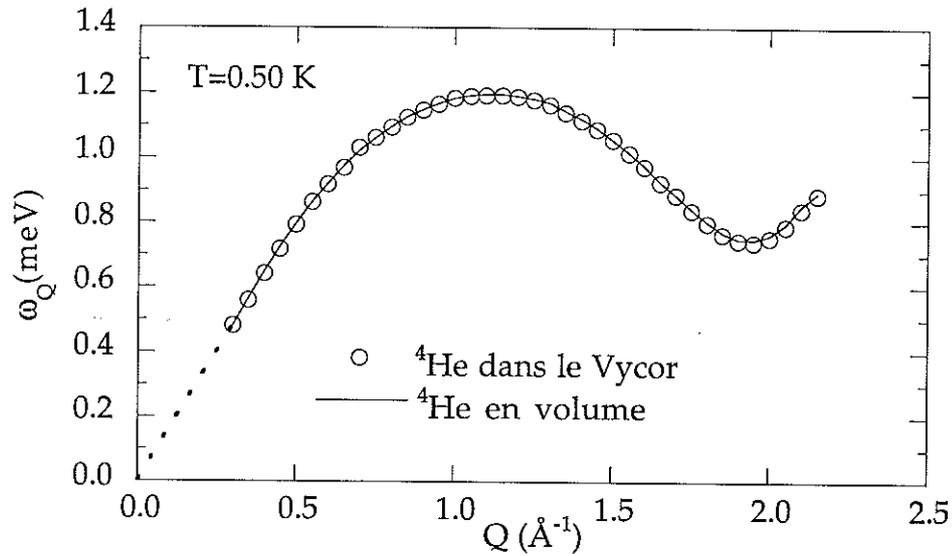
### $^4\text{He}$ dans des milieux poreux complètement remplis

On présente dans cette partie les résultats issus de l'analyse du facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  sous sa pression de vapeur saturante dans des milieux poreux (aerogels de 87% et 95% de porosité et Vycor) complètement remplis.

#### 6.1 Caractéristiques générales du facteur de structure dynamique

La première mesure réussie du facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  dans un échantillon de Vycor complètement rempli a été reportée récemment [Dimeo 1998]. Cependant, du fait de la forte absorption des résidus d'oxyde de bore ( $\text{B}_2\text{O}_3$ ) présents dans le Vycor, seules les excitations proches du minimum du roton (où le facteur de structure est fort) ont été observées. Nous présentons ici les premières mesures des excitations suivant la courbe de dispersion phonon-maxon-roton complète dans un échantillon de Vycor entièrement rempli. Nous avons pu réaliser cette mesure grâce à un échantillon spécialement élaboré à partir de  $^{11}\text{B}$ , très peu absorbant. Nous présentons ces résultats de mesure en parallèle avec ceux issus des expériences menées sur  $^4\text{He}$  dans des échantillons d'aerogel de 87% et 95% de porosité complètement remplis.

Dans ces trois échantillons, le facteur de structure dynamique de l' $^4\text{He}$  liquide est très similaire à celui de l' $^4\text{He}$  en volume. On observe à basse température un pic aigu correspondant à l'excitation d'une quasi-particule et un continuum à plus haute énergie correspondant aux multiparticules (ou multiphonons). Le pic aigu suit une dispersion quasiment identique à celle des excitations de l' $^4\text{He}$  en volume (voir fig. 6.1) et les multiphonons sont très bien représentés par la contribution issue des spectres de l' $^4\text{He}$  bulk mesurés à basse température.

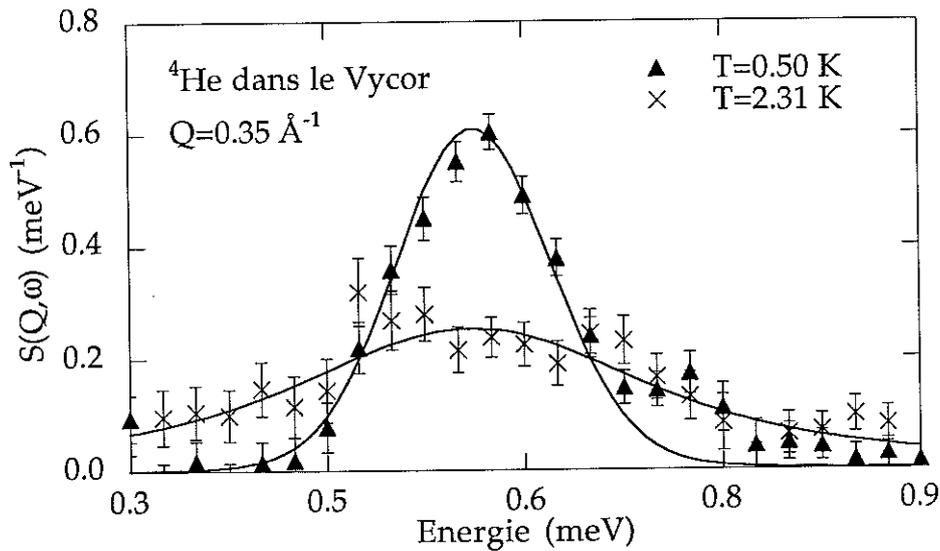


**Figure 6.1** : Courbe de dispersion des excitations phonon-roton de l' $^4\text{He}$  dans le Vycor et de l' $^4\text{He}$  en volume (IN6). Les barres d'erreur sont plus petites que la taille des points.

### Phonons

A petit  $Q$  ( $Q < 0.8 \text{ \AA}^{-1}$ ), dans la région des phonons, on observe à basse température un pic traduisant le fait qu'un mode de propagation bien défini existe dans les milieux poreux étudiés. Jusqu'au plus petit vecteur d'onde étudié ( $Q=0.2 \text{ \AA}^{-1}$  dans l'aérogel, voir fig. 2.4), on trouve que l'énergie de ce mode de phonons est la même que dans l' $^4\text{He}$  en volume. La vitesse du son n'est donc pas réduite à basse température dans les milieux poreux, contrairement à ce que prévoient différentes études de l'effet du désordre sur un système de bosons en deux dimensions [Lee 1992, Zhang 1993].

Le pic de l'excitation observé au niveau des phonons s'élargit quand on augmente la température de la même manière que dans l' $^4\text{He}$  en volume. Comme on peut le voir sur la figure 6.2, celui-ci reste bien défini au-dessus de la température critique de transition superfluide et n'apparaît donc pas affecté par la disparition du condensat de Bose. Le mode observé est interprété comme un mode de phonon sans collision analogue à celui observé dans les autres liquides simples [Copley 1975].



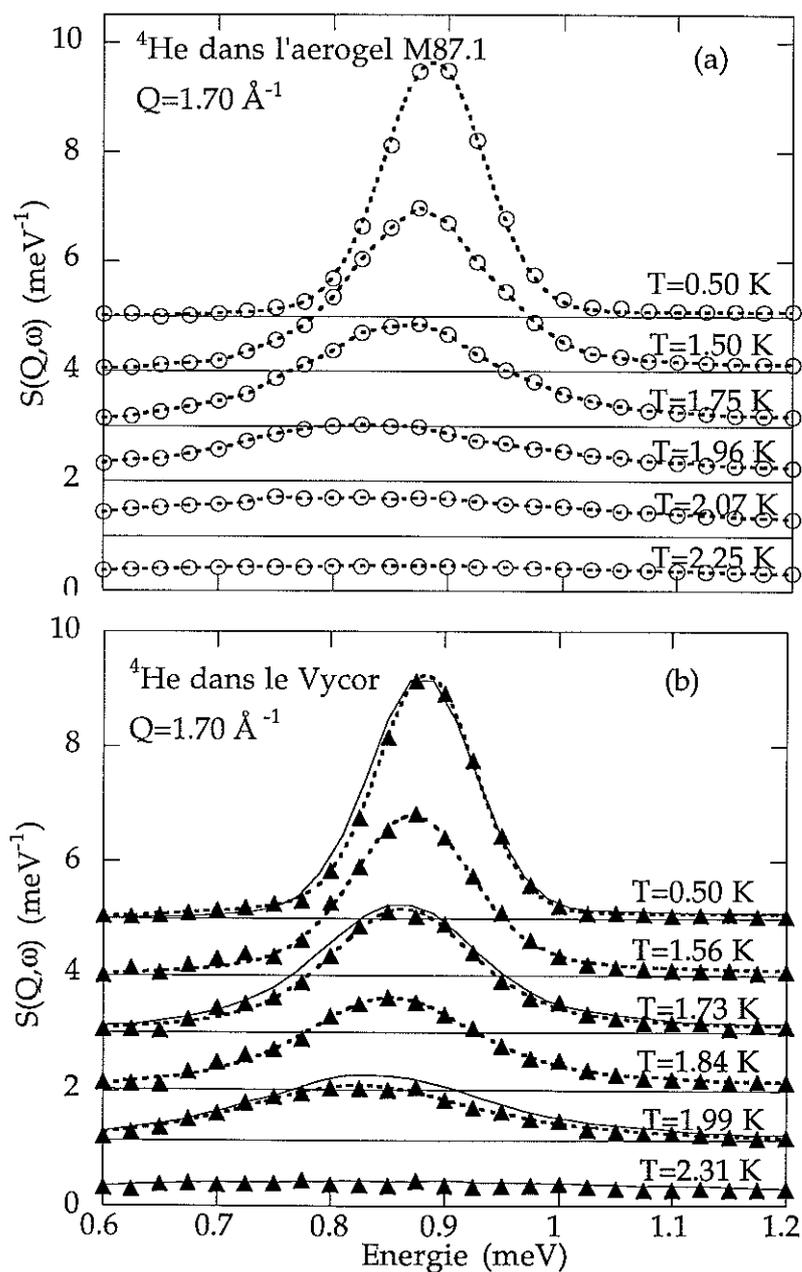
**Figure 6.2** : Facteur de structure dynamique de l' $^4\text{He}$  dans le Vycor dans la région des phonons pour  $Q=0.35 \text{ \AA}^{-1}$  à deux températures dans les phases respectivement superfluide et normale (IN6). Une excitation bien définie subsiste dans la phase normale.

### Maxon-roton

Pour des vecteurs d'onde plus élevés ( $Q > 0.8 \text{ \AA}^{-1}$ ), la dépendance en température des spectres observés apparaît différente. En effet, dans la région de vecteurs d'onde s'étendant approximativement du maxon ( $Q=1.1 \text{ \AA}^{-1}$ ) au roton ( $Q=1.92 \text{ \AA}^{-1}$ ), le pic aigu de l'excitation dans les aerogels, comme dans l' $^4\text{He}$  en volume, s'élargit quand la température augmente et disparaît des spectres pour des températures supérieures à  $T=2.17 \text{ K}$ . On a représenté ce comportement dans l'aerogel M87.1 et dans le Vycor pour un vecteur d'onde  $Q=1.7 \text{ \AA}^{-1}$  sur la figure 6.3. Le pic de l'excitation apparaît comme fortement couplé au phénomène de superfluidité. Il doit donc être lié à l'existence d'un condensat de Bose. Dans l'interprétation de Glyde et Griffin, ce pic est vu comme la conséquence de l'excitation d'une quasiparticule hors du condensat de Bose, et son poids est proportionnel à la fraction d'atomes condensés  $n_0(T)$  [Glyde 1990, 1992b, 1993].

Dans le Vycor, la dépendance en température du facteur de structure dynamique est la même que dans l'aerogel et dans l' $^4\text{He}$  en volume (voir fig. 6.3b). Ce comportement est étonnant car dans le Vycor la transition superfluide apparaît à une température  $T_c=1.952 \text{ K}$  inférieure à celle de l' $^4\text{He}$  en volume ( $T_\lambda=2.172 \text{ K}$ ). Il indique, comme on peut le voir sur la figure 6.3b, la présence d'une excitation de l' $^4\text{He}$  dans le Vycor à une température  $T=1.99 \text{ K}$ , supérieure à  $T_c$ . A la lumière de l'interprétation de Glyde et Griffin, ce résultat indiquerait la présence d'un condensat de Bose à une température pour laquelle la superfluidité

dité n'est pas établie à travers l'échantillon. On pourrait alors interpréter l'apparition de la superfluidité à  $T_c$  en terme de transition de percolation à travers le milieu poreux [Huang 1993, Thibault 1996].



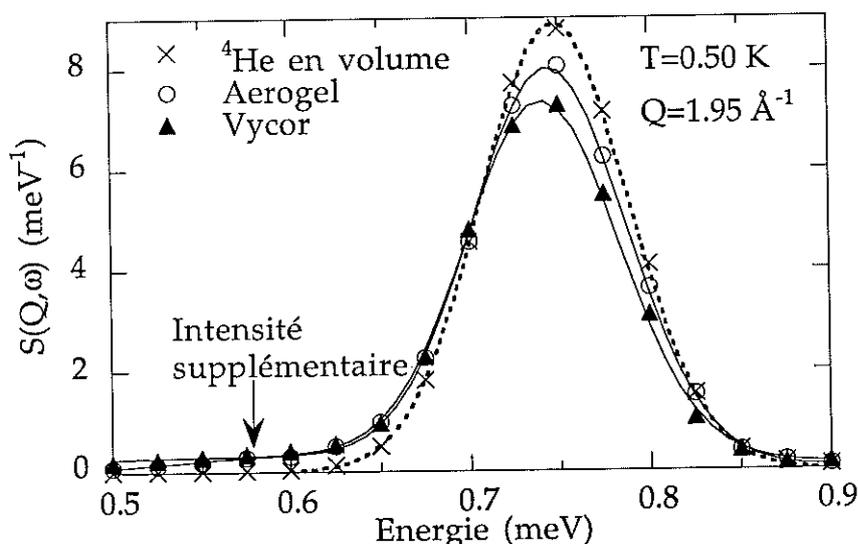
**Figure 6.3** : Dépendance en température du facteur de structure dynamique de l' $^4\text{He}$  dans l'aérogel de Mulders (M87.1) (a) et dans le Vycor (b) pour  $Q=1.70 \text{ \AA}^{-1}$  (IN6). Les lignes pointillées correspondent aux résultats de nos ajustements. On montre pour comparaison sur la figure (b) le facteur de structure dynamique de l' $^4\text{He}$  en volume (ligne continue) déterminé par Andersen et collaborateurs [Andersen 1994] aux températures  $T=1.24$ ,  $1.75$ ,  $1.96$  et  $2.26$  K. Les barres d'erreur sont plus petites que la taille des points.

Au-delà du roton

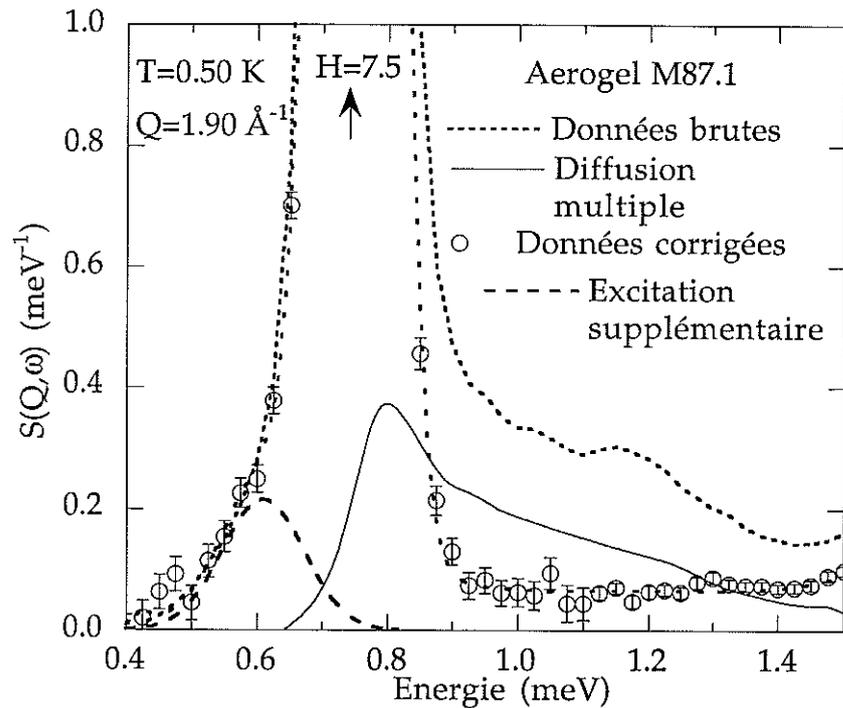
À des vecteurs d'onde situés au-delà du roton ( $Q > 2.2 \text{ \AA}^{-1}$ ), l'énergie de l'excitation approche l'énergie du continuum à deux rotons ( $\hbar\omega = 2\Delta$ ) et l'effet du couplage entre les excitations à une et deux quasiparticules devient important [Fåk 1998, Pistoiesi 1998]. Nous avons étudié la dépendance en température du facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  liquide dans l'aérogel B95 pour un vecteur d'onde  $Q=2.4 \text{ \AA}^{-1}$  dans cette région [Plantevin 1998]. Nous avons observé un comportement similaire à celui de  $^4\text{He}$  en volume.

Intensité supplémentaire

Au niveau du roton, on observe à basse température dans les échantillons de Vycor et d'aérogel M87.1 et M87.2 complètement remplis de l'intensité à des énergies inférieures à celle du roton. On peut voir cette intensité supplémentaire sur la figure 6.4. Cette intensité est, comme on peut le voir sur la figure 6.5, bien séparée de la contribution de diffusion multiple qui commence à plus haute énergie. Cette intensité a donc une origine physique dans un processus dynamique au sein de l'hélium. On va présenter et discuter les caractéristiques de cette intensité supplémentaire dans la partie suivante.



**Figure 6.4** : Facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  dans le Vycor et dans l'aérogel de Mulders (M87.1) comparé à celui de  $^4\text{He}$  en volume à basse température au niveau du roton (IN6). On observe, dans l'aérogel et le Vycor, la présence d'intensité supplémentaire dans le pied du pic à basse énergie. L'intensité intégrée totale des spectres est normalisée par rapport à celle de  $^4\text{He}$  en volume. Les barres d'erreur sont plus petites que la taille des points.



**Figure 6.5 :** Facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  dans l'aerogel de Mulders (IN6) déterminé avant et après soustraction de la diffusion multiple. La contribution de diffusion multiple est indiquée par une ligne continue. On a représenté par des tirets l'excitation supplémentaire observée dans le pied du pic à basse énergie. Celle-ci est bien séparée de la contribution de diffusion multiple.

## 6.2 Intensité supplémentaire

A basse température, dans les aerogels M87.1 et M87.2 et dans le Vycor, nous avons mis en évidence la présence d'intensité supplémentaire à basse énergie suivant une dispersion parabolique au niveau du roton. Cette intensité supplémentaire a déjà été observée dans le Vycor [Dimeo 1998] mais c'est la première fois qu'elle a été mise en évidence dans des échantillons d'aerogel. Cela peut être dû au fait que nous avons utilisé des aerogels plus denses que ceux utilisés précédemment [De Kinder 1994, Coddens 1995, Gibbs 1995, 1997, Sokol 1996, Dimeo 1997, Plantevin 1998]. On a observé dans l'échantillon d'aerogel M87.2 une contribution différente de celle déterminée dans les échantillons de Vycor et d'aerogel M87.1. Dans tous les cas, quand la température augmente le pic aigu de l'excitation principale s'élargit et la contribution supplémentaire est alors noyée dans son pied. On ne peut donc pas étudier sa dépendance en température.

## Vycor et aerogel M87.1

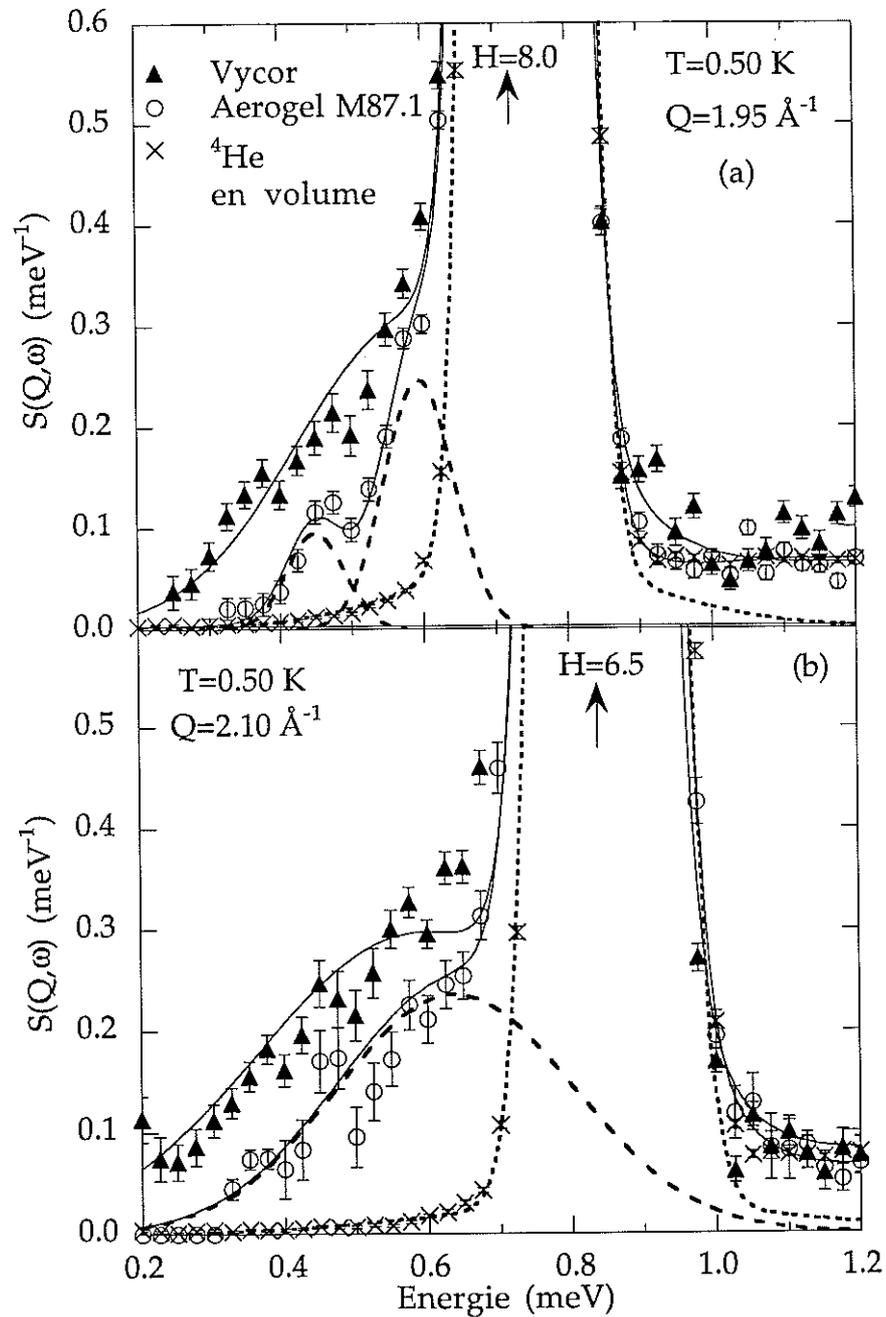


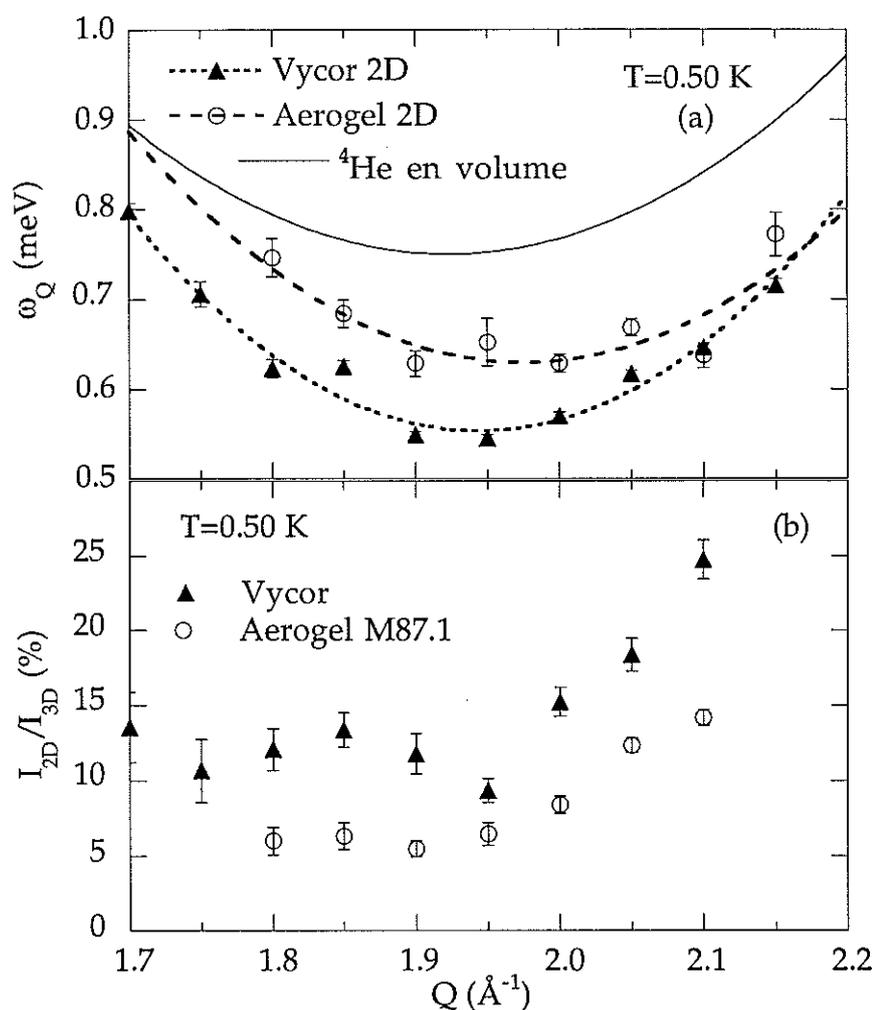
Figure 6.6 : Facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  dans le Vycor et dans l'aerogel de Mulders comparé à celui de  $^4\text{He}$  en volume à basse température au niveau du roton pour deux vecteurs d'onde différents (IN6). L'intensité supplémentaire dans l'aerogel a été ajustée respectivement par deux gaussiennes (a) et une gaussienne (b) à  $Q = 1.95 \text{ \AA}^{-1}$  et  $Q = 2.10 \text{ \AA}^{-1}$ . Ces composantes supplémentaires sont représentées par des tirets.

Avant l'analyse des données issues des expériences avec les échantillons de Vycor et d'aérogel M87.1, nous avons soustrait la composante de diffusion multiple des spectres afin de ne pas surestimer l'intensité supplémentaire observée au niveau du roton. Dans les figures 6.6 a et b, on a représenté le pied du pic du roton mesuré à basse température ( $T=0.5$  K) pour ces deux échantillons aux vecteurs d'onde  $Q=1.95 \text{ \AA}^{-1}$  et  $Q=2.10 \text{ \AA}^{-1}$ . On observe à basse énergie la présence d'une contribution d'intensité légèrement supérieure dans l'échantillon de Vycor à celle observée dans l'échantillon d'aérogel. Cette intensité est absente dans l' $^4\text{He}$  en volume où les excitations phonon-roton correspondent aux états excités de plus basse énergie. Dans les deux cas (Vycor et aérogel), cette contribution supplémentaire peut-être ajustée par une gaussienne de largeur comprise entre environ deux et trois fois la largeur de la résolution expérimentale. Dans l'aérogel à  $Q=1.95 \text{ \AA}^{-1}$  (voir fig. 6.6 a), le spectre observé indique que cette contribution peut se décomposer en deux gaussiennes, chacune de largeur égale à celle de la résolution expérimentale ( $\approx 100 \text{ \mu eV}$  à cette énergie). Il est donc possible d'interpréter l'intensité observée comme étant due à la présence de plusieurs modes comme cela a été fait pour analyser les spectres de diffusion de films d' $^4\text{He}$  liquide [Clements 1996a,b]. Toutefois, étant donné que nous n'avons pu séparer différents modes aux autres valeurs de  $Q$ , nous discuterons cette intensité supplémentaire comme ayant son origine dans un seul mode. On montrera au chapitre 7 que cette intensité est due aux couches d'hélium liquide situées à proximité des parois du matériau poreux. On interprétera le mode observé comme une excitation confinée en deux dimensions (excitation 2D) à proximité des surfaces de l'aérogel ou du Vycor. Un résultat similaire a été obtenu avec des films d' $^4\text{He}$  liquide sur des substrats de graphite [Thomlinson 1980, Lauter 1981, 1992a,b, Clements 1996a].

On ajuste une expression parabolique du type de l'expression (3.4) à la dispersion de ces contributions supplémentaires dans l'aérogel et dans le Vycor. L'expression ajustée s'écrit :

$$\hbar\omega = \Delta_{2D} + \frac{(Q - Q_{2D})^2}{2\mu_{2D}} \quad (6.1)$$

Le résultat des ajustements est représenté sur la figure 6.7a. On trouve que les énergies de ces contributions au minimum de la dispersion sont respectivement  $\Delta_{2D}=0.55\pm 0.01 \text{ meV}$  dans le Vycor et  $\Delta_{2D}=0.63\pm 0.01 \text{ meV}$  dans l'aérogel. L'énergie de ce mode dans le Vycor est en accord avec les énergies dérivées de mesures de chaleur spécifique ( $\approx 0.53 \text{ meV}$ ) [Brewer 1965] et de densité superfluide ( $\approx 0.50 \text{ meV}$ ) [Kiewiet 1975].



**Figure 6.7 : Roton 2D** : Dépendance en vecteur d'onde de l'énergie (a) et de l'intensité relative par rapport au roton 3D (b) des excitations supplémentaires observées à basse température dans le Vycor et dans l'aerogel de Mulders (M87.1). Dans la figure (a), la ligne continue représente la dispersion du roton 3D dans l' $^4\text{He}$  en volume. La dispersion du roton 3D dans le Vycor et dans l'aerogel est très similaire à celle de l' $^4\text{He}$  en volume. Les lignes pointillée et en tiret représentent le résultat de l'ajustement de la dispersion du roton 2D par une expression parabolique respectivement dans le Vycor et dans l'aerogel.

Des résultats théoriques, considérant les excitations de l'hélium confiné en deux dimensions, prévoient aussi une réduction de l'énergie du roton [Padmore 1974, Götze 1976a]. Götze et Lücke [Götze 1976a] attribuent cette diminution de l'énergie du roton au renforcement de l'ordre à courte distance (du fait de l'attraction des atomes d'hélium par le substrat) ainsi qu'à un rétro-courant associé à la propagation du roton plus important en deux

dimensions. Ce rétrocourant plus important devrait se traduire par une augmentation de la masse effective du roton. On observe toutefois plutôt une tendance vers une diminution de la masse effective du roton en deux dimensions  $\mu_{2D}$  ( $\mu_{2D}=0.13\pm 0.01 m_4$  dans le Vycor et  $\mu_{2D}=0.15\pm 0.02 m_4$  dans l'aerogel) par rapport à celle du roton dans  ${}^4\text{He}$  en volume,  $\mu_{3D}=0.17\pm 0.01 m_4$ . Par contre, le vecteur d'onde correspondant au minimum de la dispersion de l'excitation supplémentaire ( $Q_{2D}=1.94\pm 0.01 \text{ \AA}^{-1}$  dans le Vycor et  $Q_{2D}=1.98\pm 0.01 \text{ \AA}^{-1}$  dans l'aerogel) est décalé vers des valeurs légèrement supérieures à celle du minimum du roton dans  ${}^4\text{He}$  en volume ( $Q_{3D}=1.92\pm 0.01 \text{ \AA}^{-1}$ ), corroborant l'idée selon laquelle ce mode supplémentaire se propagerait dans l'hélium plus dense, situé à proximité des parois. Cette hypothèse est compatible avec l'énergie du roton 2D observé dans l'aerogel. En effet, l'énergie du roton dans  ${}^4\text{He}$  en volume diminue quand la pression augmente. Cette énergie est d'environ 0.63 meV sous une pression de 24 bar. Comme on le verra dans la partie 7.1, cette pression correspond approximativement à la densité de la deuxième couche d'hélium à proximité des parois de l'aerogel. L'énergie du roton 2D plus basse observée dans le Vycor évoque la possibilité de la présence d' ${}^4\text{He}$  liquide à des pressions supérieures à la pression de solidification de  ${}^4\text{He}$  en volume. Un tel effet a été effectivement observé par Lie-Zhao et collaborateurs [Lie-Zhao 1986]. Ceux-ci ont mis en évidence l'existence de la superfluidité de  ${}^4\text{He}$  dans le Vycor jusqu'à des pressions appliquées de l'ordre de 50 bar.

L'existence d'un mode de plus basse énergie que l'excitation phonon-roton caractéristique de  ${}^4\text{He}$  en volume va entraîner, à une température donnée, une augmentation du nombre de quasiparticules thermiquement excitées. Cette augmentation implique un renforcement de la composante normale. La mise en évidence de ce mode permet donc de donner une explication à la réduction observée de la densité superfluide pour des températures supérieures à  $T=1 \text{ K}$ . Ainsi Kiewiet et collaborateurs [Kiewiet 1975] avaient déjà prédit l'existence d'un roton d'énergie plus faible que dans  ${}^4\text{He}$  en volume. A basse température ( $T < 1.4 \text{ K}$ ), ils ajustent des résultats de mesure de densité superfluide dans un échantillon de Vycor complètement rempli par une expression comprenant un terme de phonons uni-dimensionnels ( $\propto T^2$ ) et un terme de rotons d'énergie  $\Delta=0.50 \text{ meV}$ . Le terme en  $T^2$  représente l'effet du confinement sur la propagation des phonons : ceux-ci sont astreints à se propager dans les canaux interconnectés du Vycor. Dans les aerogels, la densité superfluide est moins réduite que dans le Vycor par rapport à  ${}^4\text{He}$  en volume [Chan 1988]. Il est donc cohérent de trouver une excitation supplémentaire de plus haute énergie dans l'aerogel que dans le Vycor. Les mesures de densité superfluide dans un aerogel complètement rempli sont bien décrites à basse température par une expression comportant un terme de phonons tri-dimensionnels ( $\propto T^4$ ) et un terme de rotons ayant l'énergie du mode supplémentaire que nous

avons mis en évidence ( $\Delta=0.63$  meV). Le terme de phonons en  $T^4$  rend compte de la structure très ouverte de l'aérogel : les phonons peuvent se propager dans les trois directions de l'espace et ne sont pas contraints par la structure de l'aérogel.

Il a aussi été proposé [Lauter 1983] que de telles excitations supplémentaires se propageant à proximité des parois soient responsables des anomalies de transfert de chaleur à l'interface entre des solides et l' $^4\text{He}$  liquide. La présence de ces excitations permet de relaxer les contraintes imposées par la conservation du moment à l'interface et facilite ainsi la diffusion des phonons d'un milieu à l'autre, ce qui a pour effet de diminuer la résistance thermique entre les deux milieux.

On a trouvé que l'intensité du roton à deux dimensions par rapport à celle du roton à trois dimensions est, aussi bien dans l'aérogel que dans le Vycor, à peu près indépendante du vecteur d'onde entre  $Q=1.7-1.8 \text{ \AA}^{-1}$  et  $Q=1.95 \text{ \AA}^{-1}$  (voir fig. 6.7b). Elle est de l'ordre, respectivement, de 5% et 10% de l'intensité du roton en volume. Au-delà de  $Q=1.95 \text{ \AA}^{-1}$ , l'intensité relative du roton à deux dimensions augmente à peu près linéairement avec  $Q$  jusqu'à environ 15% dans l'aérogel et 25% dans le Vycor pour  $Q=2.15 \text{ \AA}^{-1}$ .

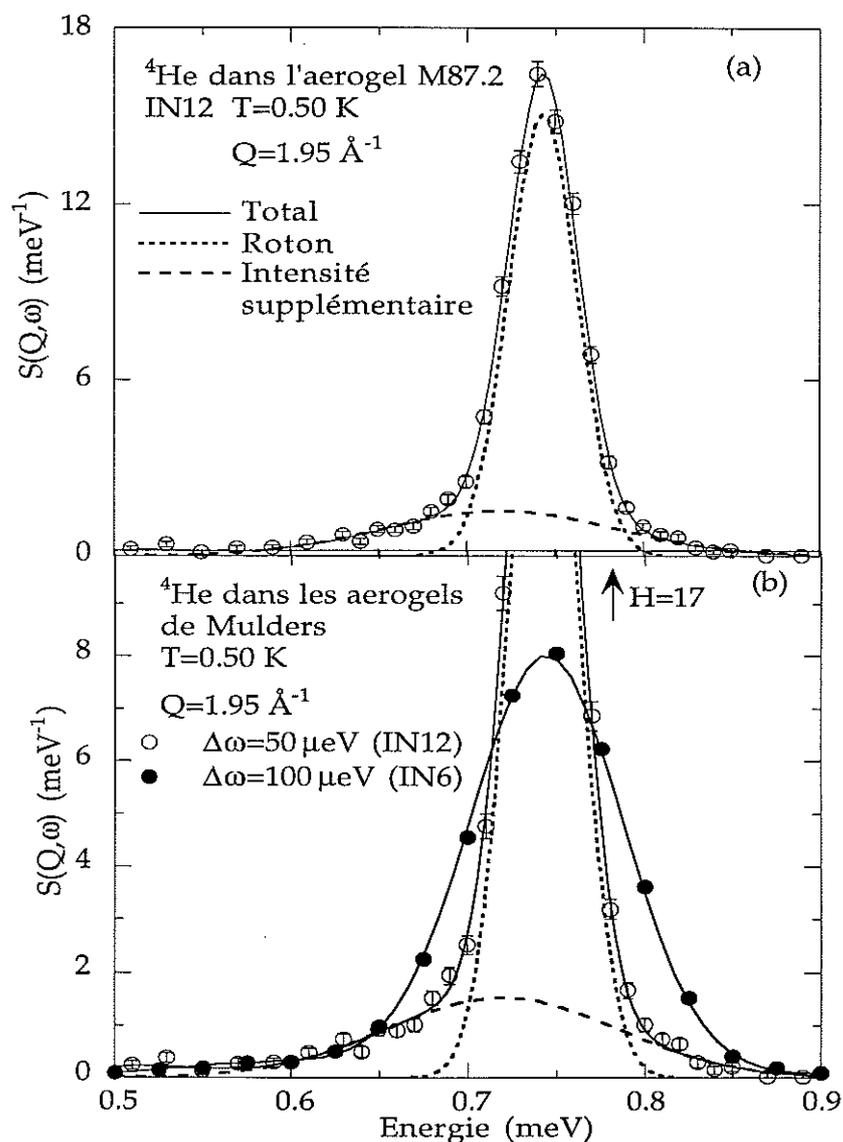
Dans le Vycor, l'intensité supplémentaire que nous avons observée est comparable avec celle mise en évidence par Dimeo et collaborateurs [Dimeo 1998]. Ceux-ci ont observé une intensité diffusée dans une gamme d'énergie de 0.3-0.5 meV et d'intensité  $20\pm 10\%$  du pic principal du roton. La précision dans leur détermination des paramètres décrivant la contribution supplémentaire est assez limitée, du fait d'un signal moins fort dû à l'absorption de leur échantillon. Ils observent aussi dans leurs spectres un pic élastique intense provenant du Vycor. Dans nos mesures, le pic élastique était environ trois fois plus faible, probablement du fait de la procédure employée pour nettoyer le Vycor avant l'expérience (voir section 4.2).

Dans l'échantillon d'aérogel B95, on n'a pas observé d'intensité supplémentaire à basse énergie [Plantevin 1998]. Toutefois, la surface spécifique estimée de cet échantillon est environ trois fois plus faible que celle de l'aérogel M87.1 et du Vycor (qui sont du même ordre de grandeur) et il est possible que ce mode soit tout de même présent dans cet échantillon mais à un niveau d'intensité trop faible pour être mesuré avec notre niveau de statistique.

### Aérogel M87.2

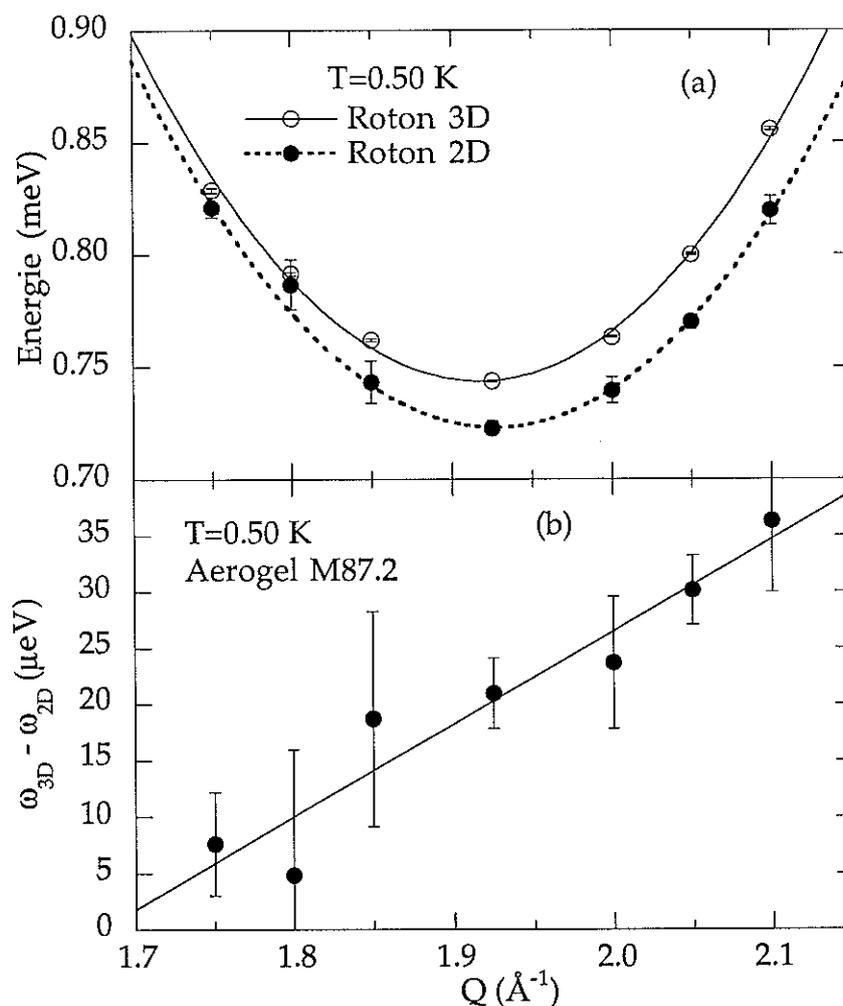
Nous avons utilisé pour l'expérience avec l'aérogel M87.2 le spectromètre à trois axes IN12 (voir section 2.2.4). On a choisi de mener cette expérience avec une meilleure résolution que celle utilisée pour les deux échantillons décrits précédemment (environ 50  $\mu\text{eV}$  contre 100  $\mu\text{eV}$ ). On bénéficie par contre d'une intensité diffusée moindre. La statistique

n'est pas assez bonne dans la zone où nous avons observé de l'intensité supplémentaire avec les autres échantillons (0.4-0.6 meV) pour mettre en évidence clairement la présence d'un mode. L'intensité observée n'est toutefois pas incompatible avec celle mesurée dans les deux échantillons précédents.



**Figure 6.8** : Facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  dans l'aerogel de Mulders M87.2 déterminé à basse température au niveau du roton (a). On a représenté par une ligne en tirets l'intensité supplémentaire observée dans le pied du pic. En (b) on a représenté le même facteur de structure dynamique ( $\Delta\omega=50 \mu\text{eV}$ ) conjointement avec celui observé dans l'aerogel de Mulders M87.1 avec une moins bonne résolution ( $\Delta\omega=100 \mu\text{eV}$ ). On voit que les deux résultats ne sont pas incompatibles et que l'intensité observée en (a) avec l'aerogel M87.2 peut être aussi présente dans l'aerogel M87.1.

Par contre, la meilleure résolution utilisée nous a permis de mettre en évidence, à basse température, de l'intensité supplémentaire dans le pied du pic à des énergies plus proches de celle du roton (voir fig. 6.8a). Cette intensité supplémentaire s'étend jusqu'à des énergies de l'ordre de 0.55 meV. Elle ne peut donc pas être due à la diffusion multiple, qui est par ailleurs ici très faible (de l'ordre de 2% de l'intensité du roton). On a représenté cette intensité supplémentaire par une gaussienne environ trois fois plus large que la résolution.



**Figure 6.9 :** Dépendance en fonction du vecteur d'onde de l'énergie des rotors 3D et 2D observés dans l'aérogel M87.2 (a). Les lignes représentent les résultats d'ajustements d'une expression parabolique aux dispersions observées. On a représenté en (b) l'écart croissant en fonction de  $Q$  entre les énergies des rotors 3D et 2D.

La position de cette gaussienne présente une dispersion parabolique environ  $20 \mu\text{eV}$  en-dessous de l'énergie du roton (voir fig. 6.9a). L'écart en énergie par rapport au pic principal augmente toutefois à peu près linéairement entre environ  $10 \mu\text{eV}$  pour  $Q=1.75 \text{ \AA}^{-1}$  et  $40 \mu\text{eV}$  pour  $Q=2.15 \text{ \AA}^{-1}$ . Cet écart est représenté sur la figure 6.9b. Les positions du minimum et les masses effectives dérivées d'ajustements des dispersions par des expressions paraboliques (voir fig.6.9a) sont les mêmes, dans la limite de la précision de nos données, pour le roton 3D et pour l'intensité supplémentaire.

L'intensité de cette contribution suit la même dépendance en  $Q$  que l'intensité du roton (de l'ordre de 20-30 % de l'intensité du roton). Il est donc possible d'interpréter cette intensité supplémentaire comme une modification de la forme de raie du pic principal plutôt que comme une autre excitation. Ce changement de forme pourrait être un effet du désordre [Boninsegni 1998, Glyde 1998]. Il a aussi été proposé que la présence d'intensité supplémentaire dans le pied du pic à basse énergie soit l'effet d'un gradient de pression [Lambert 1977]. En effet, comme on l'a vu plus haut, l'énergie du roton diminue quand la pression augmente. Un gradient de pression dans  $^4\text{He}$  liquide à proximité des parois pourrait donc entraîner une redistribution d'intensité à basse énergie au niveau du roton. Nous montrerons toutefois au chapitre 7 que l'étude de la dépendance du facteur de structure dynamique en fonction du taux de remplissage de l'aérogel nous induit à penser que cette intensité supplémentaire est plutôt liée à la présence d'excitations 2D à proximité des surfaces de l'échantillon.

La modification de la forme du pic observée avec cet échantillon d'aérogel et une résolution de  $50 \mu\text{eV}$  est compatible avec les spectres obtenus pour les autres échantillons (aérogel et Vycor) et une résolution moins bonne ( $100 \mu\text{eV}$ ). Les spectres obtenus à  $Q=1.95 \text{ \AA}^{-1}$  et  $T=0.50 \text{ K}$  pour deux échantillons d'aérogel et avec les deux conditions différentes de résolution sont représentés sur la figure 6.8b. Avec une résolution de  $100 \mu\text{eV}$ , le pic aigu de l'excitation est à peu près deux fois moins haut que celui observé avec une résolution d'environ  $50 \mu\text{eV}$ . Par contre, la hauteur de l'intensité large observée dans le pied du pic doit être peu affectée par la largeur de la résolution. On voit sur la figure 6.7 b que la queue à basse énergie des pics observés dans les deux conditions de résolution se confondent. La contribution mise en évidence avec une résolution de  $50 \mu\text{eV}$  est donc aussi probablement présente dans les autres spectres obtenus avec une résolution de  $100 \mu\text{eV}$ . La présence de cette excitation a pu nous induire à prendre en compte trop d'intensité dans les modes de basse énergie discutés plus haut. Elle peut aussi entraîner un élargissement et un décalage apparent vers les basses énergies de quelques  $\mu\text{eV}$  du pic de l'excitation.

## 6.3 Les excitations phonon-roton

### 6.3.1 Comparaison avec l' $^4\text{He}$ en volume à basse température

#### Elargissement

Dans l'aerogel B95 on a observé un élargissement du pic à  $T=0.5$  K par rapport à l' $^4\text{He}$  en volume au roton à  $Q=1.95 \text{ \AA}^{-1}$  ( $6\pm 1 \text{ \mu eV}$ ) et à  $Q=2.4 \text{ \AA}^{-1}$  ( $7\pm 1 \text{ \mu eV}$ ) [Plantevin 1998]. Ces élargissements sont très faibles (à la limite de la résolution) et il n'ont pu être mis en évidence que grâce à une mesure précise de la résolution expérimentale. On avait pour cela fait une mesure de la diffusion par l' $^4\text{He}$  en volume à basse température dans les mêmes conditions. La valeur de l'élargissement déterminée au niveau du roton est compatible avec celle obtenue à  $T=1.3$  K sur un échantillon d'aerogel de même porosité par une autre équipe [Gibbs 1995,1997, Sokol 1996].

On n'a pas observé d'effet similaire sur les excitations de l' $^4\text{He}$  liquide dans les autres échantillons d'aerogel étudiés (de 87% de porosité). Contrairement à ce qui a été reporté par Dimeo et collaborateurs [Dimeo 1998], on n'a pas mis non plus en évidence d'élargissement à basse température des excitations de l' $^4\text{He}$  dans l'échantillon de Vycor.

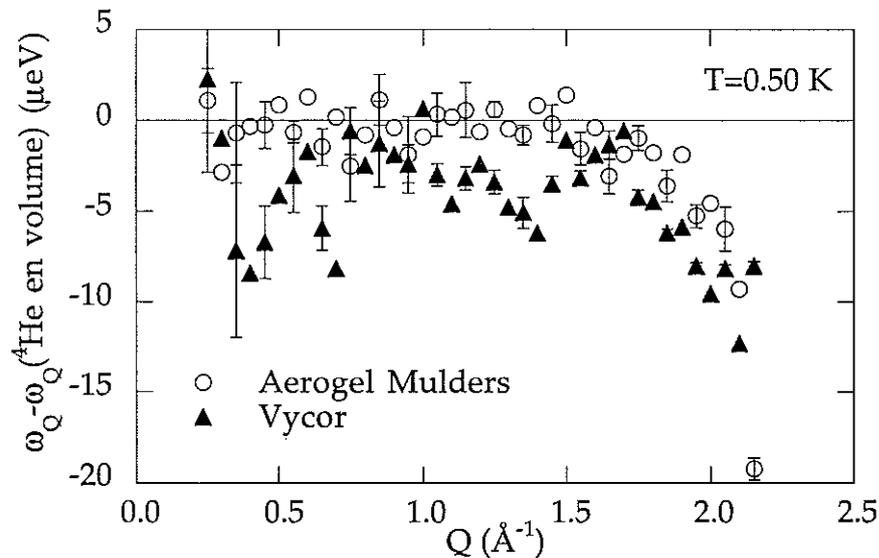
Une mesure récente à très haute résolution [Anderson 1999] n'a mis en évidence aucun élargissement du roton dans l'aerogel à basse température ( $<0.1 \text{ \mu eV}$ ). Les élargissements que nous avons observés sont donc probablement dûs, comme nous l'avons discuté dans la section 6.2, à la présence d'intensité supplémentaire dans le pied du pic de l'excitation. A basse énergie, l'intensité observée est probablement un effet combiné des deux types d'intensité supplémentaire décrits ci-dessus. A haute énergie, la diffusion multiple conduit aussi à une certaine intensité supplémentaire. On remarque que lorsque nous avons identifié une contribution de basse énergie et que nous avons soustrait la contribution due à la diffusion multiple, nous n'avons pas observé d'élargissement du pic de l'excitation par rapport à l' $^4\text{He}$  en volume.

Étant donné que les excitations de l' $^4\text{He}$  liquide dans les milieux poreux ne présentent pas d'élargissement supplémentaire observable par rapport aux excitations de l' $^4\text{He}$  liquide en volume, nous pouvons en conclure que le milieu poreux n'introduit pas de nouveau mécanisme de diffusion des excitations ou bien que celui-ci a un impact très faible sur les durées de vie des excitations.

### Décalage en énergie

A basse température dans les échantillon de Vycor et d'aerogel M87.1, on trouve que la dépendance en  $Q$  des énergies d'excitation est la même dans la limite de la précision expérimentale ( $\approx 5$ - $10 \mu\text{eV}$ ) que dans l' $^4\text{He}$  en volume jusqu'à  $Q=1.8 \text{ \AA}^{-1}$ . Pour des vecteurs d'onde supérieurs, on a observé une tendance de l'énergie à diminuer par rapport à celle de l' $^4\text{He}$  en volume (voir fig. 6.10). On a aussi observé un tel décalage avec l'aerogel B95 (au roton on trouve un décalage de  $8 \pm 2 \mu\text{eV}$ ). Ce résultat est en accord avec un résultat récent de Azuah et collaborateurs [Azuah 1999], qui ont mis en évidence dans un aerogel de 95% de porosité un décalage croissant en fonction du vecteur d'onde de l'énergie de l'excitation vers les basses énergies. Ils ont ainsi observé un décalage de l'énergie de l'excitation d'environ  $-40 \pm 20 \mu\text{eV}$  à  $Q=3.0 \text{ \AA}^{-1}$ . Il est possible que ce décalage soit un effet de distorsion de la forme du pic dû à la présence d'intensité supplémentaire dans le pied du pic, essentiellement du côté des basses énergies, comme nous l'avons déjà évoqué plus haut.

Contrairement à nous, Dimeo et collaborateurs [Dimeo 1998] observent une énergie du roton dans le Vycor à basse température supérieure à celle de l' $^4\text{He}$  en volume à basse température.



**Figure 6.10** : Dépendance en fonction du vecteur d'onde de l'écart entre l'énergie de l'excitation 3D dans le Vycor et l'aerogel de Mulders M87.1 et celle de l'excitation de l' $^4\text{He}$  en volume à basse température. Pour plus de lisibilité, on n'a représenté qu'une barre d'erreur sur deux.

### Poids

Nous avons normalisé l'intensité intégrée  $Z_Q$  des pics observés au minimum du roton ( $Q=1.95 \text{ \AA}^{-1}$ ) par rapport à l'intensité observée dans  $^4\text{He}$  en volume. Aux autres vecteurs d'onde nous n'avons pas observé, dans la limite de notre précision expérimentale, de différence entre l'intensité des pics des excitations dans les différents milieux poreux étudiés et celle des excitations de  $^4\text{He}$  en volume.

### 6.3.2 Dépendance en température des excitations

Comme nous l'avons montré au chapitre 5, la méthode de décomposition des données de Woods et Svensson (WS) conduit à des résultats différents suivant la résolution expérimentale. On a donc plutôt utilisé la méthode de soustraction simple (SS) pour décrire l'évolution des spectres observés en fonction de la température.

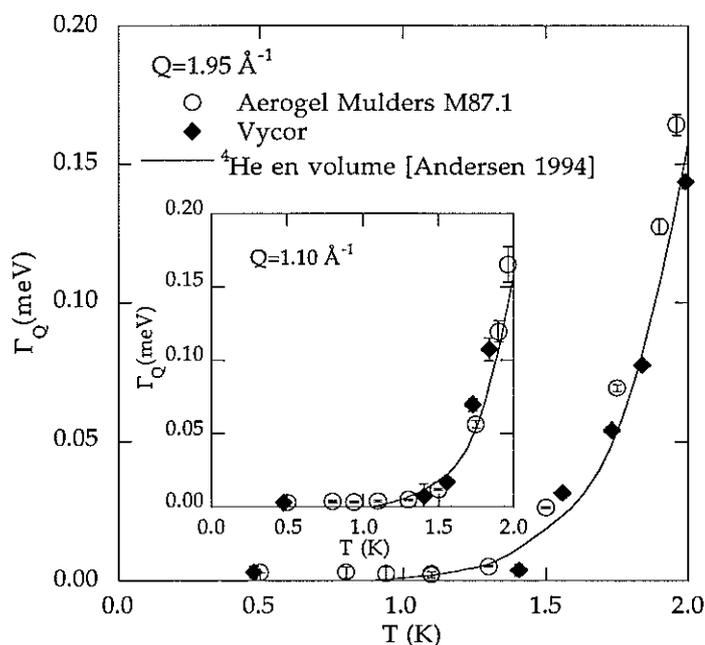
### Largeur

Les largeurs obtenues (avec la méthode SS) pour les excitations de  $^4\text{He}$  dans les différents milieux poreux étudiés suivent la même dépendance en température que les excitations de  $^4\text{He}$  en volume. Ce comportement est représenté sur la figure 6.11. On peut donc décrire la dépendance en température de la largeur du roton, comme dans  $^4\text{He}$  en volume, en faisant intervenir uniquement les mécanismes de diffusion entre rotons (voir chapitre 4). Les autres mécanismes de diffusion possibles (diffusion par les parois ou les vortex susceptibles d'être présents [Dimeo 1997]) sont donc négligeables dans toute la gamme de températures étudiées.

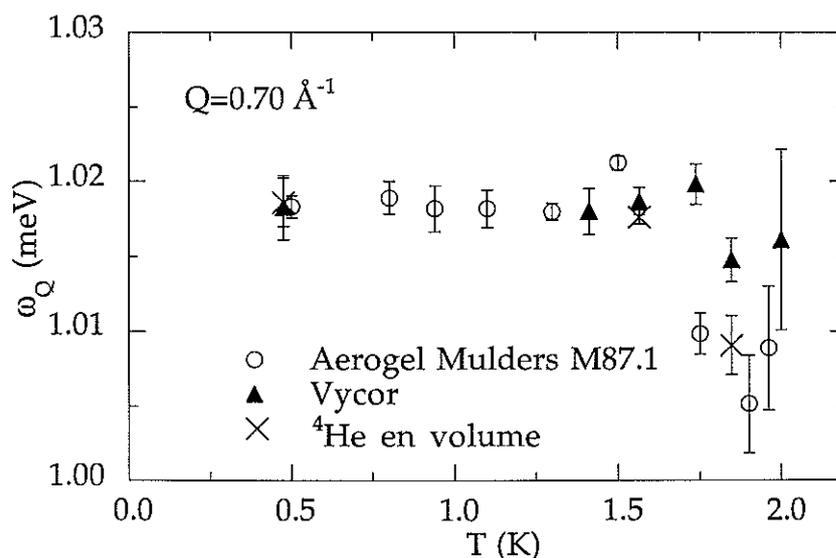
### Energie

Pour tous les échantillons étudiés (aerogels B95, M87.1 et M87.2 et Vycor), nous n'avons observé aucune différence dans la dépendance en température des énergies d'excitation par rapport à  $^4\text{He}$  en volume. En particulier dans la région des phonons ( $Q < 0.8 \text{ \AA}^{-1}$ ), nous trouvons comme dans  $^4\text{He}$  en volume que l'énergie reste à peu près constante entre 0.5 et 1.6 K puis diminue légèrement quand la température augmente. On a représenté sur la figure 6.12 la dépendance en température de l'énergie de l'excitation dans la région des phonons pour  $Q=0.7 \text{ \AA}^{-1}$ . Ce comportement indique que la vitesse du son dans l'hélium diminue elle aussi légèrement quand la température augmente entre 1.6 et 2.2 K, de la même manière dans les milieux poreux étudiés qu'en volume libre. Dans toute la gamme de température étudiée, les milieux poreux sont donc comme "transparents" à la propagation du son dans

l'hélium. Ce résultat traduit la grande interconnectivité des pores dans les milieux poreux que nous avons étudiés.

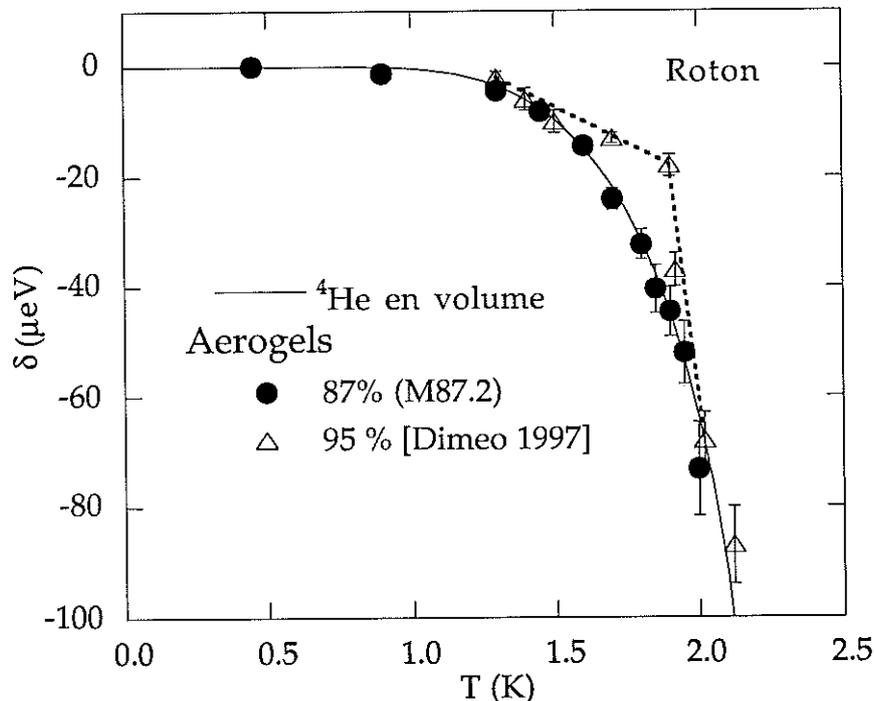


**Figure 6.11** : Dépendance en fonction de la température des largeurs d'excitations (mi-largeur à mi-hauteur) de  $^4\text{He}$  dans le Vycor et l'aérogel de Mulders M87.1 aux vecteurs d'onde du roton et du maxon (insert). Les barres d'erreur sont plus petites que la taille des points.



**Figure 6.12** : Dépendance en fonction de la température de l'énergie de l'excitation de  $^4\text{He}$  dans l'aérogel M87.1, le Vycor, et dans  $^4\text{He}$  en volume dans la région des phonons à un vecteur d'onde  $Q=0.70 \text{ \AA}^{-1}$ .

Au roton, nous n'avons pas observé le comportement de "cross-over" à  $T=1.9$  K observé dans deux aerogels de 90% et 95% de porosité [Sokol 1996, Gibbs 1997, Dimeo 1997]. Pour illustrer ce résultat, nous présentons sur la figure 6.13 la dépendance en température du décalage en énergie  $\delta$  du roton obtenue par ce groupe ainsi que celle déterminée dans l'aerogel M87.2 sur le spectromètre IN12 avec une bonne résolution, d'environ  $50 \mu\text{eV}$ . Ce décalage en énergie est défini comme :  $\delta = \omega_Q(T) - \omega_Q(T=0 \text{ K})$ , où  $\omega_Q(T)$  représente l'énergie du roton à une température  $T$  et  $\omega_Q(T=0 \text{ K})$  représente l'énergie du roton extrapolée à  $T=0 \text{ K}$ . Nous avons auparavant calibré les thermomètres en mesurant la pression de vapeur saturante de  $^3\text{He}$  à basse température. Nous trouvons que, comme dans  $^4\text{He}$  en volume, la dépendance en température de l'énergie du roton est bien décrite dans l'aerogel en prenant en compte en première approximation uniquement l'interaction entre rotions (voir chapitre 4).



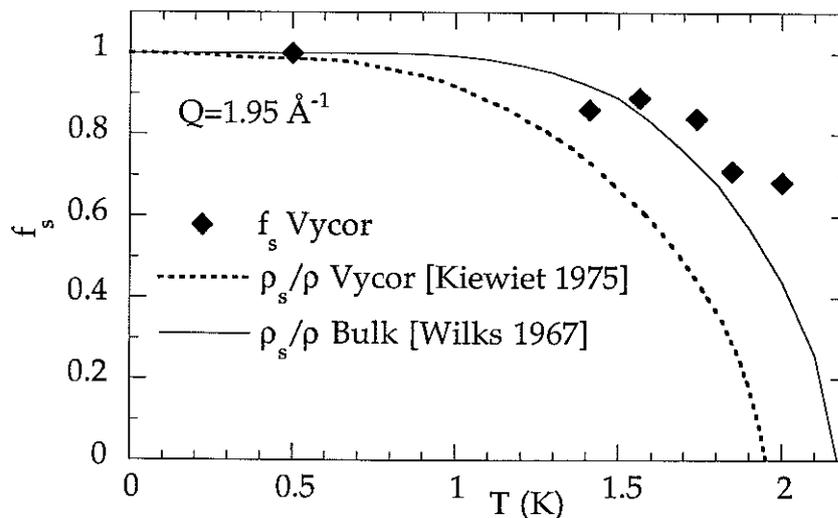
**Figure 6.13** : Dépendance en fonction de la température du décalage  $\delta$  en énergie du roton dans l'aerogel M87.2, dans un aerogel de 95% de porosité [Dimeo 1997], et dans  $^4\text{He}$  en volume. Dimeo et collaborateurs ont observé le même comportement avec un aerogel de 90% de porosité que celui représenté ici pour un aerogel de 95% de porosité.

### Poids

Même si on a vu que la méthode WS pour décomposer les données ne permet pas de comparer de manière fiable différentes expériences entre elles, il est intéressant de l'utiliser sous une forme modifiée afin de représenter la dépendance en température du poids de l'excitation. Nous avons ainsi décrit les spectres obtenus des excitations de  $^4\text{He}$  dans le Vycor par une expression de la forme :

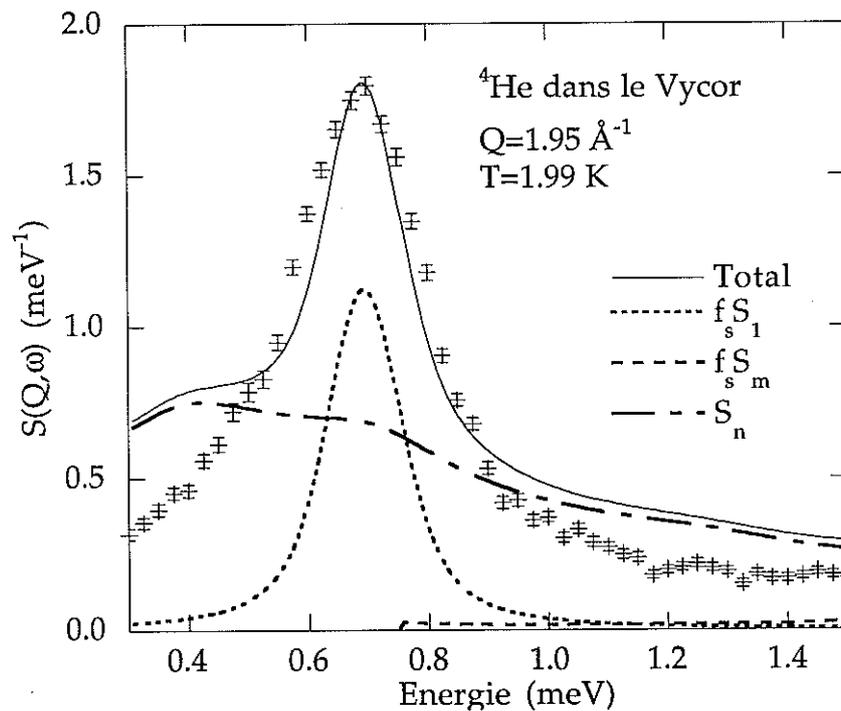
$$S(Q, \omega; T) = f_s(T)[S_1(Q, \omega; T) + S_m(Q, \omega)] + f_n(T)S_n(Q, \omega; T) \quad (6.2)$$

Dans cette équation, le terme  $f_s(T)S_1(Q, \omega; T)$  représente le pic aigu de l'excitation décrit par l'oscillateur harmonique amorti de la formule (5.4),  $S_m(Q, \omega)$  représente les multiphonons extraits des spectres de  $^4\text{He}$  en volume à basse température et  $S_n(Q, \omega; T)$  représente la composante normale déterminée à partir d'une température  $T > T_\lambda$  en utilisant l'équation (5.6). Les poids des composantes respectivement superfluide et normale sont  $f_s(T)$  et  $f_n(T)$ . On a imposé  $f_n(T) = 1 - f_s(T)$ . Pour ajuster cette expression à nos spectres mesurés, nous disposons de trois paramètres libres : les largeur et énergie d'excitation, respectivement  $\Gamma_Q(T)$  et  $\omega_Q(T)$ , et le poids  $f_s(T)$ . On a représenté sur la figure 6.14 la dépendance en température de  $f_s(T)$  conjointement avec les fractions de densité superfluide de  $^4\text{He}$  en volume et de  $^4\text{He}$  dans le Vycor. On trouve que, sans imposer de dépendance en température particulière, l'intensité du pic de l'excitation suit celle de la densité superfluide de  $^4\text{He}$  en volume jusqu'à  $T = 1.73$  K.



**Figure 6.14** : Dépendance en fonction de la température du poids de l'excitation  $f_s$  défini par l'équation (6.2). On a représenté sur la même figure la fraction superfluide de la densité de  $^4\text{He}$  dans le Vycor (ligne pointillée) et celle de  $^4\text{He}$  en volume (ligne continue). Les barres d'erreur issues des ajustements sont plus petites que les points.

On a représenté d'autre part sur la figure 6.15 le spectre observé au niveau du roton de  $^4\text{He}$  dans le Vycor à  $T=1.99$  K ajusté par l'équation (6.2) où on a imposé  $f_n=1$ , c'est à dire la valeur de la fraction normale à cette température dans le Vycor. Cette figure montre clairement qu'une excitation de  $^4\text{He}$  dans le Vycor au niveau du roton est encore présente pour  $T>T_c$ , dans la phase normale. Si on suit l'interprétation de Glyde et Griffin selon laquelle le poids de l'excitation est proportionnel à la fraction  $n_0(T)$  d'atomes condensés dans l'état fondamental [Glyde 1994, Griffin 1993], ce résultat indiquerait la présence d'un condensat de Bose à une température supérieure à celle d'apparition de la superfluidité. On n'observerait donc pas la déplétion du condensat prévue par des études théoriques [Lee 1992, Huang 1992, Singh 1994], et attribuée à l'effet du désordre sur un système de bosons.



**Figure 6.15** : Facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  dans le Vycor au niveau du roton pour une température  $T=1.99$  K supérieure à la température d'apparition de la superfluidité. Les lignes correspondent à l'ajustement décrit dans le texte par l'expression (6.2) où  $f_n=1$ , c'est à dire la valeur de la fraction normale de la densité de  $^4\text{He}$  dans le Vycor à cette température. L'ajustement ne décrit clairement pas les données. On en déduit qu'une excitation bien définie est toujours présente au niveau du roton à une température supérieure à celle d'apparition de la superfluidité ( $T_c=1.952$  K).

## 6.4 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre une étude du facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  liquide dans différents milieux poreux complètement remplis (aerogels et Vycor). Nous avons en particulier observé pour la première fois des excitations suivant la courbe de dispersion phonon-maxon-roton complète (entre 0.3 et 2.1  $\text{\AA}^{-1}$ ) de  $^4\text{He}$  contenu dans un échantillon de Vycor.

Nous avons trouvé, aussi bien dans les aerogels que dans le Vycor, que le facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  liquide est très similaire à celui observé dans  $^4\text{He}$  en volume. Nous n'avons pas observé d'élargissement des excitations par rapport à  $^4\text{He}$  en volume. Les dépendances en température des largeurs et énergies d'excitations sont les mêmes que dans  $^4\text{He}$  en volume.

Nous avons toutefois observé dans des échantillons d'aerogel et dans le Vycor de l'intensité supplémentaire de basse énergie au niveau du roton. C'est la première fois qu'une telle contribution est observée dans des échantillons d'aerogel. On a interprété cette intensité comme étant due à une (ou plusieurs) excitation(s) se propageant dans l'hélium situé à proximité des parois des différents milieux poreux. La présence de ces excitations permet de rendre compte de la diminution de la fraction de la densité superfluide dans ces milieux poreux pour des températures supérieures à 1 K.

Dans un échantillon d'aerogel, une expérience de diffusion inélastique des neutrons menée avec une meilleure résolution nous a permis de mettre en évidence une intensité supplémentaire plus proche de l'énergie du roton que celle observée dans les autres expériences. Cette intensité est probablement aussi présente dans les autres échantillons, mais est non apparente du fait d'une résolution insuffisante.

Dans le Vycor, l'intensité du roton suit la même dépendance en température que dans  $^4\text{He}$  en volume. En particulier, dans la région maxon-roton de la courbe de dispersion, les excitations sont encore présentes pour une température supérieure à la température d'apparition de la superfluidité.

## CHAPITRE 7

### Dépendance en remplissage

Nous présentons dans cette partie l'étude de la dépendance en fonction du remplissage des spectres de diffusion de  $^4\text{He}$  dans les échantillons d'aérogel M87.2 et de Gel-Tek.

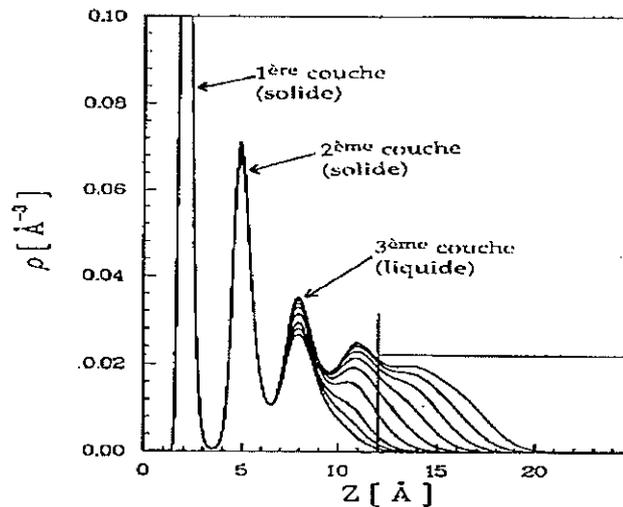
#### 7.1 Introduction à l'étude de films d' $^4\text{He}$ liquide

L'étude des propriétés des films épais d' $^4\text{He}$  liquide est un sujet ancien puisqu'il est associé à la découverte des propriétés exceptionnelles d'écoulement de  $^4\text{He}$  superfluide. En effet, c'est en 1938 que Daunt et Mendelssohn [Wilks 1967, Galasiewicz 1971] ont mis en évidence qu'un film d'hélium recouvre toutes les parois en contact avec  $^4\text{He}$  superfluide. De nombreuses études des propriétés macroscopiques des films minces d' $^4\text{He}$  ont été menées par la suite, ce système s'avérant très riche pour l'étude des mécanismes de transitions de phases en deux dimensions [Reppy 1992].

##### Structure en couches

L'étude des isothermes d'adsorption de  $^4\text{He}$  sur du Vycor [Brewer 1965, 1970, Manchester 1967] a permis de déterminer la structure en couches de l'hélium due à l'attraction de van der Waals par les surfaces. La structure des films d' $^4\text{He}$  sur un substrat de gra-

phite a été déterminée plus précisément par diffraction de neutrons [Carneiro 1976, 1981, Lauter 1987]. Celle-ci a aussi été étudiée théoriquement [Clements 1993a,b, 1994a]. L<sup>4</sup>He déposé sur le substrat croît couche par couche. Les profils de densité de films d<sup>4</sup>He de différentes épaisseurs sont représentés sur la figure 7.1.



**Figure 7.1** : Profils de densité de films d<sup>4</sup>He sur un substrat de graphite pour différents remplissages [calcul de J. Treiner dans Lauter 1992b]. La ligne horizontale représente la densité de l<sup>4</sup>He en volume. La ligne verticale indique un remplissage de 3.5 couches. Au-delà de cette épaisseur, la densité du film tend progressivement vers celle de l<sup>4</sup>He en volume.

La première couche déposée est solide et présente une structure triangulaire. Quand celle-ci est comprimée par une deuxième couche, elle a une densité d'environ  $0.115 \text{ \AA}^{-2}$ , ce qui correspond à une distance entre plus proches voisins de  $3.17 \text{ \AA}$ . Les atomes déposés sur cette deuxième couche forment des agrégats liquides. Ces agrégats s'interconnectent quand la quantité d'hélium déposée augmente. Pour un remplissage d'environ 60% de cette deuxième couche, Crowell et Reppy [Crowell 1993] ont mis en évidence l'apparition de la superfluidité pour une température inférieure à environ  $0.2 \text{ K}$ . Quand on augmente encore le remplissage, cette deuxième couche se solidifie et, bien sûr, la superfluidité disparaît. Cette couche a une densité d'environ  $0.095 \text{ \AA}^{-2}$ , ce qui correspond à un volume molaire d'environ  $22.5 \text{ cm}^3/\text{mol}$ . Pour comparaison, l<sup>4</sup>He solide à basse température sous une pression de  $25 \text{ atm}$  (la pression de solidification) a un volume molaire de  $21.2 \text{ cm}^3/\text{mol}$ , tandis que dans sa phase liquide il a un volume molaire de  $23.3 \text{ cm}^3/\text{mol}$  sous la même pression [Wilks 1967]. On voit donc que cette deuxième couche est proche de la fusion. Au-delà de cette deuxième couche solide croît à nouveau une couche liquide, montrant elle aussi un caractère superfluide à basse température [Crowell 1993]. Cette couche, comme on peut le voir sur la

figure 7.1, est plus dense que l' $^4\text{He}$  en volume. Quand on augmente encore le remplissage, la densité des couches situées au-delà de la troisième tend progressivement vers la densité de l' $^4\text{He}$  en volume.

On a supposé pour ce travail que le potentiel d'interaction entre les atomes d' $^4\text{He}$  et la silice est peu différent de celui entre les atomes d' $^4\text{He}$  et le graphite. On a ainsi utilisé les densités des différentes couches reportées ci-dessus pour estimer les quantités respectives d'hélium adsorbé et liquide dans nos échantillons aux différents remplissages.

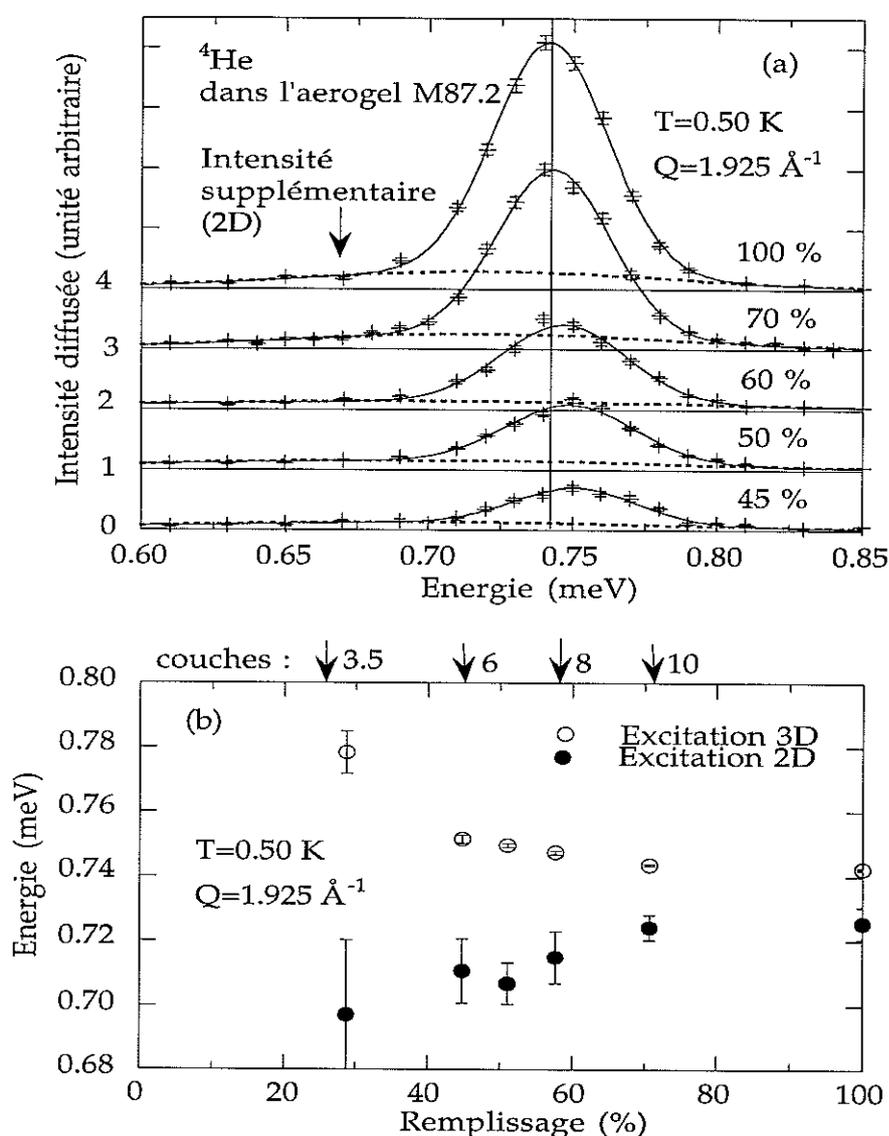
### La transition superfluide en deux dimensions

Sur des substrats plats (comme le graphite), la transition superfluide de films minces d'hélium est bien décrite par le modèle de Kosterlitz et Thouless (KT). En particulier, la densité superfluide chute brusquement à zéro à la transition [Bishop 1978, Agnolet 1989] alors qu'en trois dimensions elle s'approche de la transition en loi de puissance de la température réduite ( $t=1-T/T_c$ ) (voir équation (1.3)). Dans le cas des films d' $^4\text{He}$  dans des milieux poreux (Vycor et aerogel), la transition superfluide montre un comportement similaire à celui de l' $^4\text{He}$  en volume, et présente en particulier le même exposant critique pour la fraction superfluide de la densité [Chan 1988]. La nature de cette transition pose donc un problème. Elle a été interprétée comme une transition à trois dimensions, de la même classe d'universalité que la transition de l' $^4\text{He}$  en volume [Finotello 1988], ou bien comme une transition de type KT, prenant le caractère d'une transition tri-dimensionnelle du fait de l'inter-connectivité des milieux poreux [Williams 1990, Cho 1995].

## 7.2 Aerogel M87.2

Dans cet échantillon, nous avons étudié la dépendance en remplissage des spectres de diffusion uniquement au niveau du roton ( $Q=1.95 \text{ \AA}^{-1}$ ). On a mesuré la diffusion par l'hélium dans l'échantillon d'aerogel (87% de porosité) pour six remplissages allant d'environ 30% à 100% du volume ouvert disponible. La dépendance en fonction du remplissage de l'intensité diffusée est représentée de manière différente sur les figures 7.2a et 7.3a. La surface spécifique de l'échantillon est environ  $170 \text{ m}^2/\text{cm}^3$  (environ  $600 \text{ m}^2/\text{g}$ ). Au plus petit remplissage étudié (30%) (non représenté sur les figures), on a estimé que la quantité d'hélium déposée correspond à environ 3,5 couches. A tous les remplissages, on observe deux contributions : un pic aigu à une énergie correspondant à peu près à celle du roton dans l' $^4\text{He}$  en volume superposé sur une composante large à plus basse énergie, interprétée comme une excitation confinée en deux dimensions.

## Energie



**Figure 7.2 :** Dépendance en fonction du taux de remplissage du facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  liquide dans l'aerogel M87.2 au niveau du roton (IN12) (a). La ligne verticale est centrée sur l'énergie du roton dans la cellule pleine. On représente en (b) les énergies respectives des deux contributions 2D et 3D aux différents remplissages.

Comme on peut le voir sur les figure 7.2 a et b, l'énergie du mode de type roton est plus élevée pour des petits remplissages. Cet effet traduit le fait que le film d'hélium dans lequel se propage ces excitations a une densité moyenne inférieure à celle de  $^4\text{He}$  en volume. Ceci est visible sur la figure 7.1 où on voit que, pour des remplissages supérieurs à 3.5 couches, la densité calculée du film est effectivement inférieure à celle de  $^4\text{He}$  en volume, et qu'elle tend progressivement vers celle-ci. Cette augmentation de l'énergie du roton dans un

film d'hélium a été observée précédemment par Lauter et collaborateurs [Lauter 1992b]. On trouve que l'énergie devient égale à celle du roton dans l'aérogel complètement rempli pour un remplissage de 70%, correspondant à un film d'environ huit couches liquides. A ce remplissage, le film étudié doit donc avoir la même densité que l' $^4\text{He}$  en volume.

Au contraire, l'énergie de la composante large, représentée sur la figure 7.2b, montre une tendance à diminuer pour des faibles remplissages. Celle-ci reste toutefois assez proche de l'énergie du pic principal (entre 20 et 80  $\mu\text{eV}$  de ce dernier). Ce comportement, opposé à celui du roton 3D, nous fait pencher vers l'hypothèse selon laquelle cette intensité à son origine dans une excitation plutôt que dans une modification de la forme de raie du pic principal occasionnée par le désordre ou bien un gradient de pression comme on l'a mentionné dans la section 6.2. Toutefois, si cette composante correspond à une excitation se propageant dans l' $^4\text{He}$  liquide à proximité des surfaces de l'aérogel, on s'attendrait a priori à ce que son énergie augmente aussi légèrement à faible taux de remplissage. En effet, à faible taux de remplissage, les premières couches liquides devraient être légèrement moins denses puisqu'elles subiraient une compression moindre de la part de l' $^4\text{He}$  des couches supérieures (voir fig. 7.1). Son énergie devrait donc avoir le même comportement que celle du roton 3D. Le comportement observé va en sens inverse. On pourrait peut-être l'interpréter comme le résultat d'une interaction répulsive entre les excitations 2D et 3D. A faible remplissage, l'excitation 3D est confinée dans l'épaisseur du film et on s'attend donc à ce qu'elle interagisse avec l'excitation 2D.

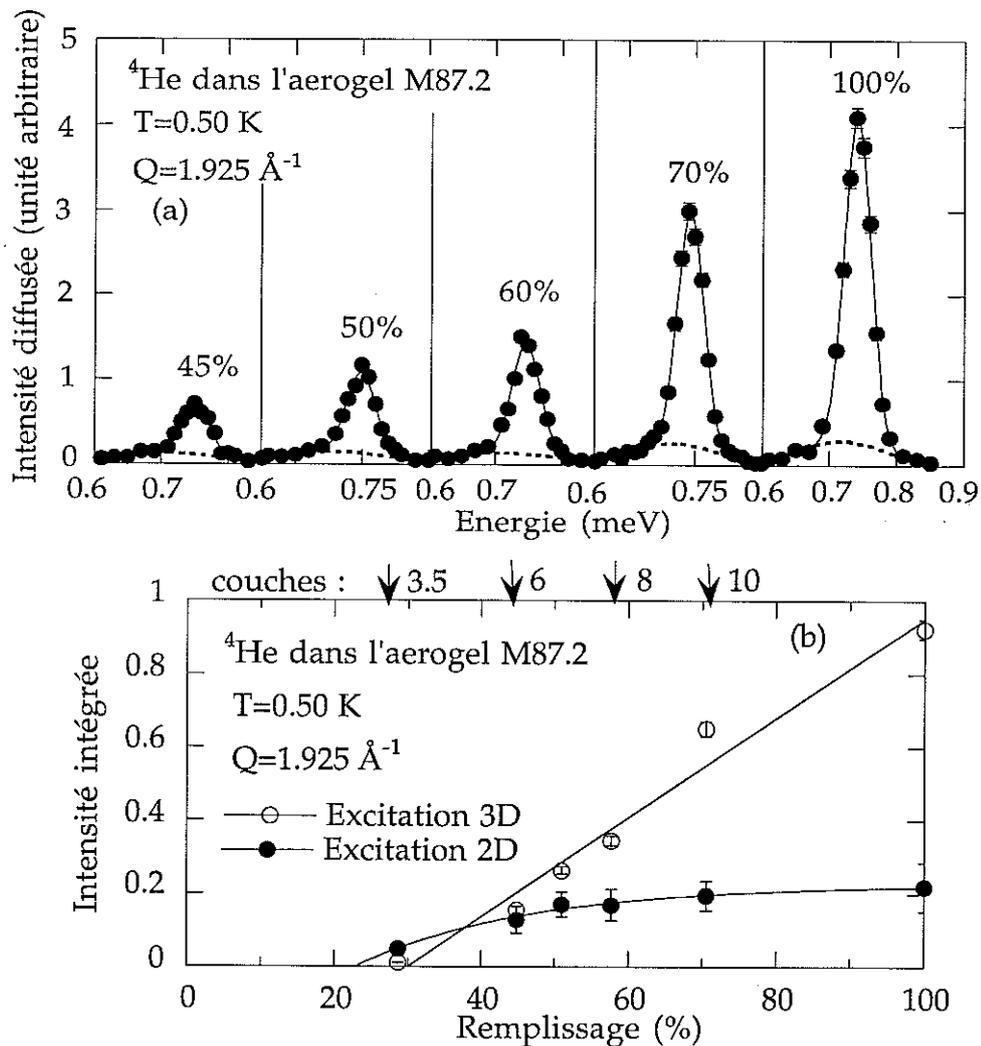
### Largeur

Pour des remplissages inférieurs à 60% (= 6 couches liquides), on observe une tendance vers un élargissement du pic du roton 3D, indiquant que le confinement du roton dans un film (épaisseur  $< 20 \text{ \AA}$ ) tend à diminuer sa durée de vie. Cet élargissement est toutefois très faible (de l'ordre de quelques  $\mu\text{eV}$ ), et donc difficile à mettre en évidence. Thomlinson et collaborateurs [Thomlinson 1980] ont observé un élargissement d'un ordre de grandeur supérieur à celui que nous avons obtenu.

On a aussi observé à faible remplissage ( $< 60\%$ ), un élargissement de la composante attribuée à une excitation 2D. Quand la cellule est complètement remplie, cette composante, comme on l'a présenté dans la partie 6.2, est environ trois fois plus large que la résolution. Aux faibles remplissages ( $< 6$  couches liquides), la largeur de cette composante est comprise entre quatre et cinq fois la résolution. Il est possible que cet élargissement supplémentaire soit lié à une interaction avec le roton 3D, alors confiné dans le film, ou bien à une diffusion par des aspérités de surface. Contrairement à ce que nous avons observé, l'excitation supplémentaire mise en évidence par Thomlinson et collaborateurs n'est pas élargie, quel que

soit le taux de remplissage. Les différences observées par rapport aux résultats de Thomlinson et collaborateurs sont peut-être dus au fait que nous avons utilisé un substrat différent. L'étude qu'ils ont reportée concerne un film d' $^4\text{He}$  sur du graphite. Le graphite présente une surface particulièrement plane, et le libre parcours moyen pour une excitation 2D est donc probablement beaucoup plus grand que dans notre échantillon d'aérogel.

### Intensité



**Figure 7.3** : Dépendance en fonction du taux de remplissage du facteur de structure dynamique de l' $^4\text{He}$  liquide dans l'aérogel M87.2 au niveau du roton (IN12) (a) (similaire à la figure 7.2a). On représente en (b) les intensités respectives des deux contributions 2D et 3D aux différents remplissages. La ligne qui passe par les points noirs (2D) correspond à un ajustement par l'expression de Thomlinson (voir texte).

Comme on peut le voir sur la figure 7.3b, l'intensité de l'excitation du type roton augmente linéairement avec le remplissage tandis que l'intensité attribuée à l'excitation 2D atteint rapidement sa valeur de saturation. L'intensité du roton 3D tend vers zéro pour un remplissage d'environ 3.5 couches, dont 2 solides. Ce remplissage correspond à celui auquel on commence à observer une excitation de type phonon-roton dans des films d' $^4\text{He}$  sur du graphite [Thomlinson 1980, Lauter 1992a,b]. Lauter et collaborateurs [Lauter 1992b] en déduisent que 1.5 couche d'hélium liquide ne contribue pas à l'intensité de l'excitation 3D. Ils décrivent cette quantité d'hélium liquide comme étant inerte. Celle-ci est toutefois probablement, au moins en partie, à l'origine de l'excitation 2D observée à plus basse énergie.

Nous avons ajusté la dépendance en remplissage de l'intensité de l'excitation 2D par l'expression proposée par Thomlinson et collaborateurs [Thomlinson 1980] :

$$I_{2D} = I_{\infty} \left( 1 - \exp \left[ -\frac{(n - n_0)}{\zeta} \right] \right) \quad (7.1)$$

où  $n_0$  représente l'épaisseur du film à laquelle l'excitation 2D apparaît,  $\zeta$  représente l'épaisseur moyenne de la couche dans laquelle cette excitation se propage et où  $I_{\infty}$  est la valeur à saturation de l'intensité de cette contribution. On obtient  $n_0 \approx 2.7$  et  $\zeta \approx 3.6$ . On trouve effectivement que, dans la limite de la précision de nos mesures, l'intensité de l'excitation 2D ne varie pas pour des remplissages supérieurs à  $n_0 + \zeta \approx 6$  couches (45% de remplissage). Son intensité est alors environ 25% de celle du roton. Si cette intensité consistait en une modification de la forme de raie comme nous l'avons évoqué dans la partie 6.2 (effet du désordre [Boninsegni 1998, Glyde 1998]), cette intensité devrait être proportionnelle à celle du pic principal. Ce n'est pas le cas, et donc l'étude de cette dépendance en remplissage nous permet de conforter l'hypothèse selon laquelle cette intensité supplémentaire est due à une ou plusieurs excitations se propageant dans l'hélium à proximité des surfaces de l'aérogel (excitations 2D). Le fait que cette intensité augmente entre 30% (3.5 couches) et 45% (6 couches) du remplissage total indique que les couches situées entre ces deux remplissages sont, au moins en partie, à son origine.

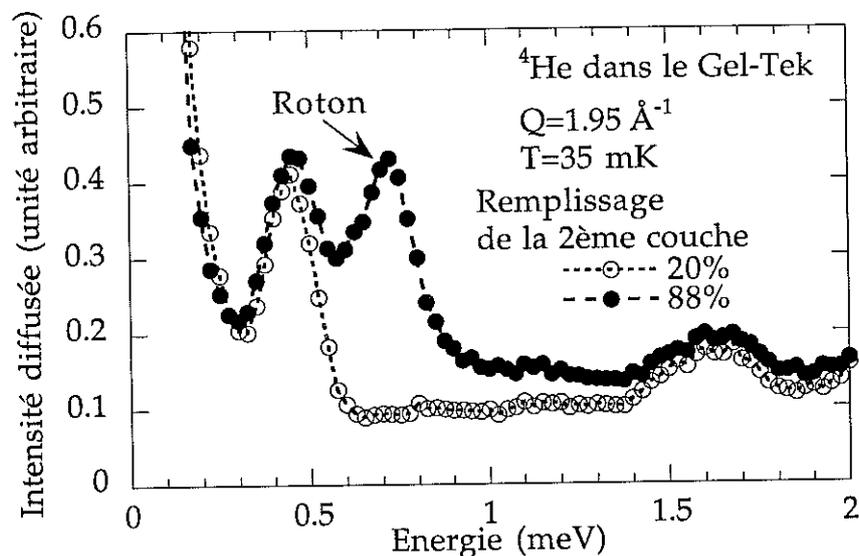
### 7.3 Gel-Tek

Dans le Gel-Tek, les pores sont beaucoup plus petits que dans les autres matériaux poreux utilisés (diamètre  $\approx 25$  Å), et d'autre part, la porosité étant assez réduite (environ 50%), la surface spécifique est beaucoup plus grande (environ  $800 \text{ m}^2/\text{cm}^3$  à comparer à environ  $170 \text{ m}^2/\text{cm}^3$  dans les échantillons de Vycor et d'aérogel de 87% de porosité). Ce matériau est donc particulièrement bien adapté à l'étude des films d' $^4\text{He}$  liquide. D'autre part, dans un échantillon complètement rempli, on a estimé la quantité d'hélium adsorbée dans les deux premières couches de l'ordre de 88 % de la quantité d'hélium totale introduite dans le milieu poreux. Le diamètre disponible pour l' $^4\text{He}$  liquide au sein des pores n'est plus alors que d'environ 12 Å, et on s'attend donc à ce que l'effet du confinement soit particulièrement important.

La densité superfluide a été mesurée dans ce matériau en utilisant la technique de l'oscillateur de torsion [Miyamoto 1996]. Pour un remplissage de 88% du remplissage total, correspondant à deux couches dont une solide, Miyamoto et Takano ont déterminé une température critique pour l'apparition de la superfluidité à travers l'échantillon de  $T_c = 725$  mK. La fraction superfluide de la densité est bien décrite dans toute la gamme de températures étudiée par un terme en  $T^2$ , représentant la contribution au fluide normal de phonons uni-dimensionnels thermiquement excités. Ce résultat est similaire à celui obtenu pour un échantillon de Vycor complètement rempli ( $T < 0.7$  K) [Kiewiet 1975]. Il se démarque du comportement en  $T^3$ , lié à des phonons bi-dimensionnels, et observé pour des films d' $^4\text{He}$  sur un substrat plan [Washburn 1975].

Nous avons étudié à basse température ( $35 \text{ mK} < T < 0.3$  K) la dépendance des spectres de diffusion en fonction du remplissage. Nous avons fait des mesures pour cinq taux de remplissage compris entre 56% et 83% du remplissage total (c'est à dire entre 20% et 88% du remplissage de la deuxième couche) ainsi que pour l'échantillon légèrement sur-rempli (environ 105% de remplissage). Nous avons également mesuré la diffusion par le Gel-Tek plein pour sept températures entre 35 mK et 2.5 K. Pour cause de problèmes liés à l'utilisation des équipements cryogéniques, nous n'avons pu mesurer la cellule vide à basse température. Pour remplacer celle-ci, nous avons utilisé les spectres mesurés au plus faible remplissage (environ 20% de la deuxième couche) à basse température. On a représenté sur la figure 7.4 les spectres obtenus au niveau du roton pour des remplissages de la deuxième couche de 20% et 88%. On observe à tous les  $Q$  un pic parasite à 0.45 meV et une contribution non identifiée entre 1.4 et 1.8 meV. Entre ces deux composantes, l'intensité diffusée au plus bas remplissage est à peu près plate. On peut donc utiliser les spectres

mesurés pour un remplissage de 20% de la deuxième couche en guise de bruit de fond. Nous avons soustrait ces spectres de ceux mesurés avec des taux de remplissage plus élevés.

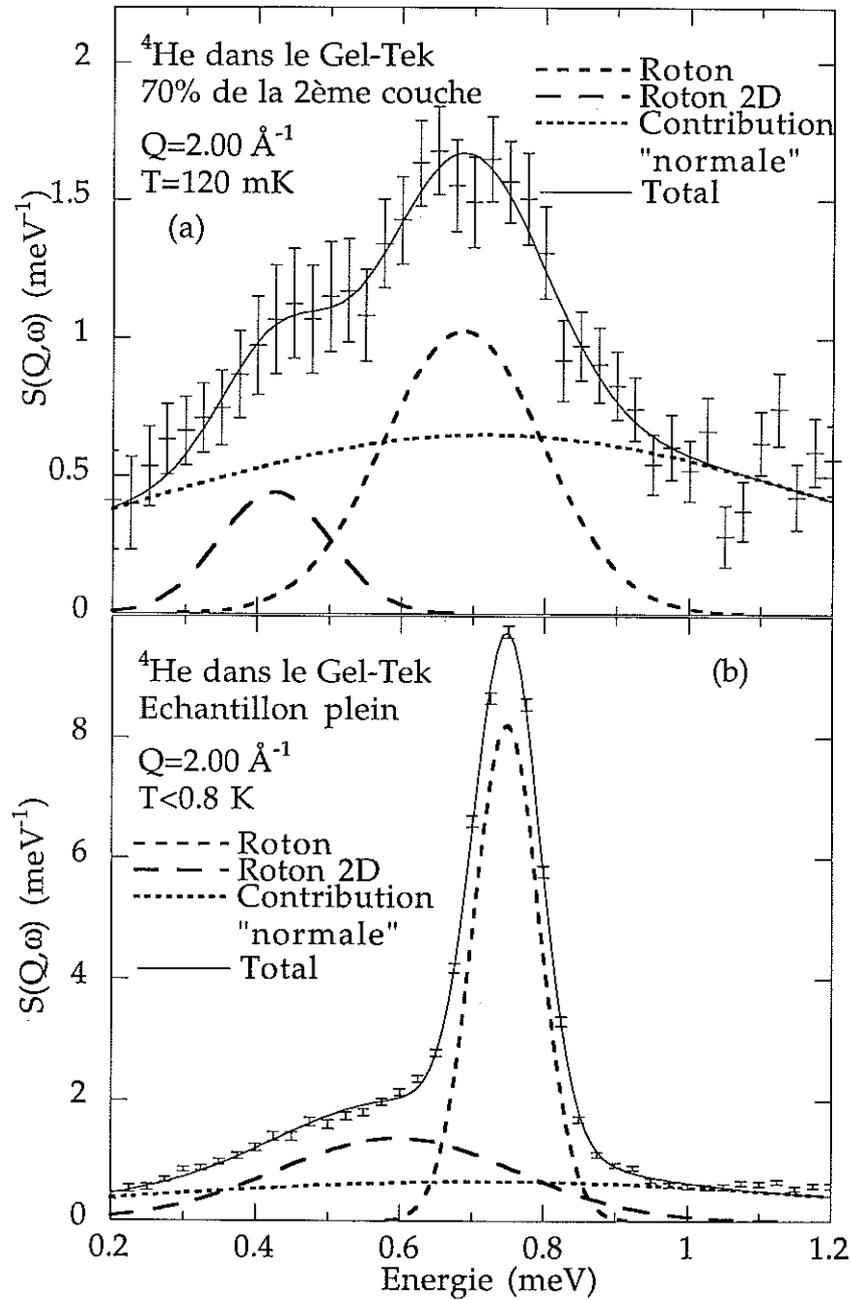


**Figure 7.4** : Intensité diffusée au niveau du roton par  $^4\text{He}$  dans le Gel-Tek (IN6). Un pic parasite est présent à 0.45 meV. On observe une contribution non identifiée entre 1.4 et 1.8 meV. Les barres d'erreur sont de la taille des points.

#### Description qualitative des spectres obtenus

Par rapport aux facteurs de structure dynamique de  $^4\text{He}$  liquide contenu dans les différents milieux poreux étudiés dans les parties précédentes (aérogel et Vycor), celui de  $^4\text{He}$  contenu dans le Gel-Tek présente une caractéristique nouvelle. Celle-ci se présente sous la forme d'une contribution large, indépendante du remplissage (au-delà de 50% de la deuxième couche) et de la température dans toute la gamme étudiée (35 mK - 2.5 K). On a interprété cette composante comme étant due à l'excitation de fluctuations de densité normales au sein de l'hélium, c'est à dire considérées comme découplées de la superfluidité et de l'existence d'un condensat de Bose. Au-delà de 70% de remplissage de la deuxième couche on voit apparaître à basse température une excitation de type phonon-roton sur cette composante large. C'est la première fois qu'une telle excitation est observée dans un film d'hélium aussi mince. A partir de ce remplissage, on observe aussi au niveau du roton une excitation supplémentaire du même type que celles observées dans l'aérogel et le Vycor et discutées dans le chapitre 6. Ces différentes composantes sont représentées sur les figures 7.5a et b. Nous allons discuter leurs caractéristiques dans les parties suivantes. Aux différents remplis-

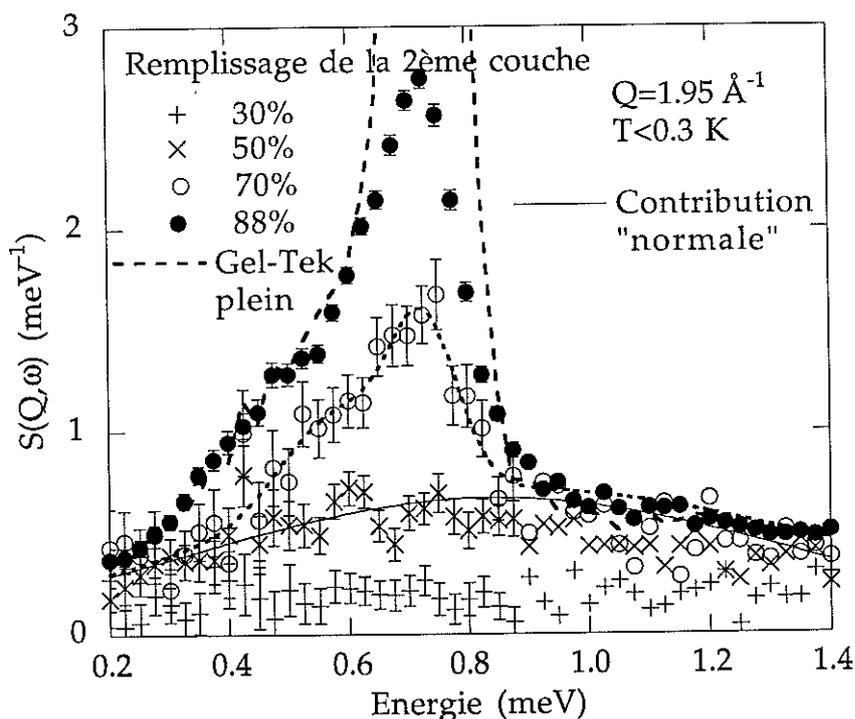
sages de la deuxième couche, nous n'avons pas observé d'excitations à l'interface liquide-vapeur (ripples) [Lauter 1992a].



**Figure 7.5** : Facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  dans le Gel-Tek au niveau du roton pour un remplissage de 70% de la deuxième couche (a) et pour le Gel-Tek plein (b) (IN6). En (b) la diffusion multiple a été soustraite. On a représenté en pointillés la contribution large "normale". L'intensité supplémentaire de basse énergie est représentée par des tirets longs.

### 7.3.1 Contribution "normale"

Au plus faible remplissage étudié (30% de la deuxième couche), on observe une diffusion très large et à peu près plate pour les grands vecteurs d'onde ( $Q > 1.5 \text{ \AA}^{-1}$ ). Cette diffusion est représentée au niveau du roton sur la figure 7.6. Au remplissage suivant (50% de la deuxième couche), cette diffusion large à grand  $Q$  s'est renforcée et prend une forme légèrement plus piquée vers 0.7 meV. Aux remplissages supérieurs, l'intensité de cette composante semble ne pas évoluer, dans la limite de la précision de nos données. Dans le Gel-Tek plein, on trouve que cette contribution n'est pas affectée par la température entre 35 mK et 2.5 K. Cette contribution pourrait donc correspondre à des fluctuations de densité indépendantes de la présence d'un condensat de Bose. On n'observe pas de telle contribution à grand  $Q$  dans l' $^4\text{He}$  en volume à basse température ( $T < 1 \text{ K}$ ) où les seules fluctuations de densité observées correspondent à l'excitation de quasi-particules. La présence de cette intensité dans le Gel-Tek à basse température indique qu'une certaine quantité d'hélium (environ 1.5 couche, dont 1 solide) est découplée du condensat de Bose.



**Figure 7.6 :** Facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  dans le Gel-Tek au niveau du roton pour différents taux de remplissage (IN6). La ligne en tirets représente le facteur de structure dynamique de  $^4\text{He}$  dans le Gel-Tek plein dont on a soustrait la diffusion multiple. Pour plus de lisibilité, on a omis les barres d'erreur pour des énergies supérieures à 0.9 meV.

La présence de cette contribution "normale" suggère qu'une fraction du liquide n'est pas superfluide, même aux plus basses températures mesurées. Elle est donc très probablement à l'origine de la réduction de la fraction superfluide de la densité à  $T=0$  K observée quand l'hélium est confiné dans des pores de petites tailles ou bien dans des films minces [Brewer 1974].

Les spectres de diffusion d'un film d' $^4\text{He}$  sur un substrat de graphite obtenus au roton par Lauter et collaborateurs [Lauter 1992b] indiquent la présence d'une contribution large similaire à celle observée dans le Gel-Tek. Il semble que cette contribution disparaisse quand le substrat de graphite est recouvert de deux couches de  $\text{H}_2$ , et que les couches d'hélium solide ne sont plus présentes. Cette contribution pourrait donc avoir son origine dans des mécanismes d'échange atomique entre l'hélium solide et liquide. De tels mécanismes d'échange atomique par effet tunnel ont déjà été proposés afin d'expliquer la résistance de Kapitza anormale à l'interface entre des solides et différents liquides quantiques ( $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$ ,  $\text{H}_2$ ) [Nakayama 1978].

### 7.3.2 Excitation principale à basse température

Pour un remplissage de l'ordre de 70% de la deuxième couche, on observe une excitation de type phonon-roton à basse température ( $T=120$  mK) pour des vecteurs d'onde supérieurs à  $Q=1.5 \text{ \AA}^{-1}$ . Cette excitation est représentée au niveau du roton sur la figure 7.5a. Ce remplissage se trouve dans la gamme dans laquelle Crowell et Reppy ont observé la superfluidité réentrante sur un substrat de graphite [Crowell 1993]. La superfluidité dans un film aussi mince que 70% d'une monocouche supporte donc des excitations de type tri-dimensionnel. A ce remplissage la statistique est insuffisante pour une analyse quantitative satisfaisante des spectres. Les résultats indiquent toutefois une diminution de l'énergie ainsi qu'un élargissement du roton par rapport à l' $^4\text{He}$  en volume.

Pour des remplissages de 88% de la deuxième couche (on a une statistique suffisante pour  $Q>0.90 \text{ \AA}^{-1}$ ) ainsi que pour la cellule pleine, on peut analyser quantitativement les spectres obtenus. Pour la cellule pleine, au maxon ( $Q=1.10 \text{ \AA}^{-1}$ ) la diffusion multiple est nettement séparée du pic de l'excitation. Son intensité est estimée à environ 5% de l'intensité du roton, comme pour l'aérogel M87.1 et le Vycor. On a soustrait des spectres obtenus avec la cellule pleine la contribution de diffusion multiple utilisée pour ces deux échantillons et discutée au chapitre 5. Nous avons ensuite ajusté aux spectres (88% de la deuxième couche et cellule pleine) une expression constituée de la somme de trois gaussiennes représentant respectivement le pic de l'excitation phonon-roton, la contribution large décrite ci-dessus et l'excitation 2D au niveau du roton. Les paramètres de la contribution large sont maintenus

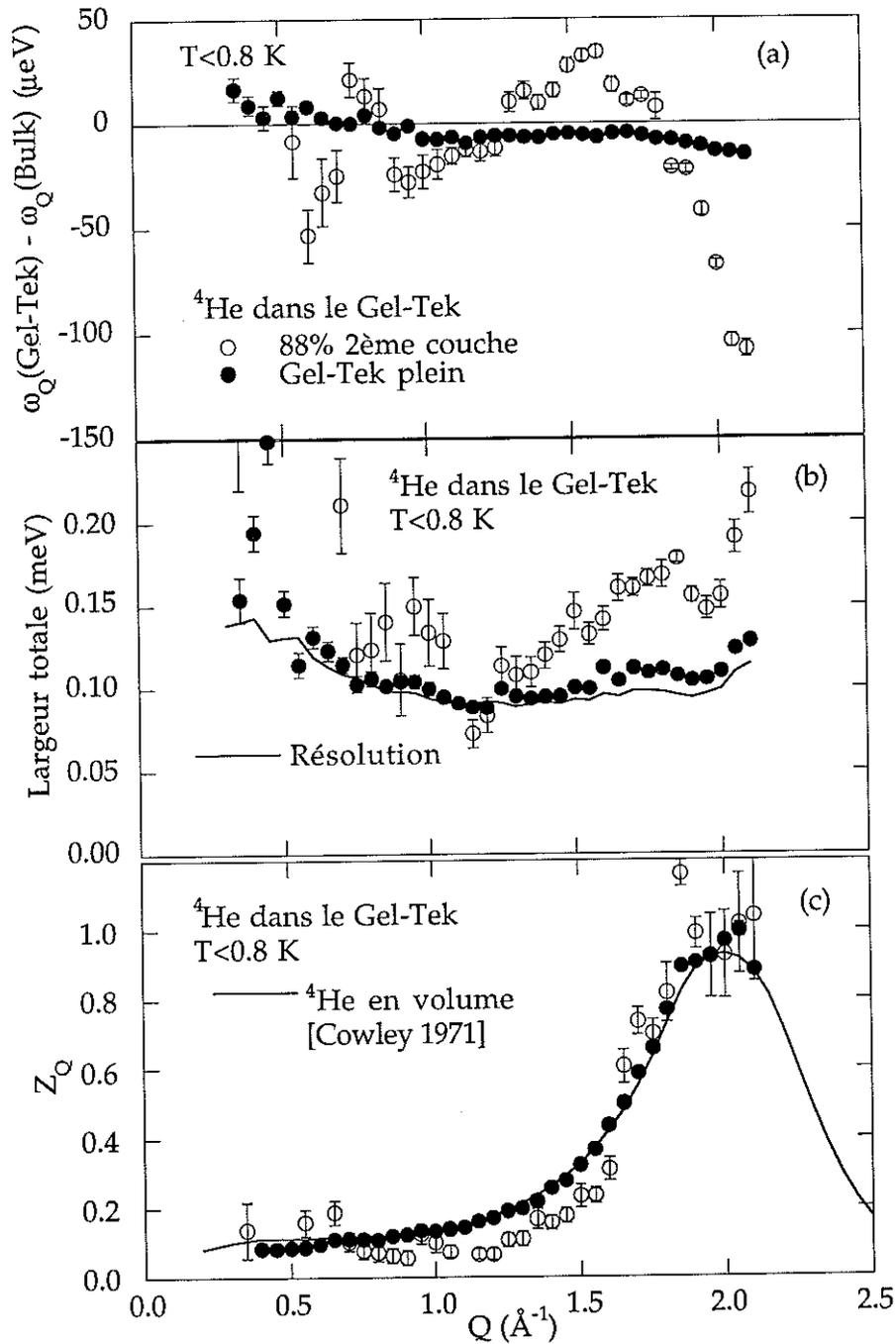


Figure 7.7 : Excitation 3D : Dépendance en fonction du vecteur d'onde du décalage de l'énergie des excitations par rapport à l' $^4\text{He}$  en volume (a), de la largeur totale (b), et du poids (c) des excitations pour deux remplissages différents. Aux deux remplissages, le poids de l'excitation est normalisé par rapport à l' $^4\text{He}$  en volume à  $Q=1.95 \text{ \AA}^{-1}$ .

fixés à ceux obtenus pour décrire la diffusion par la deuxième couche à demi-remplie. Deux exemples des ajustements réalisés sont donnés au niveau du roton pour un remplissage de 70% de la deuxième couche et pour la cellule pleine sur la figure 7.5.

### Energie

On a représenté sur la figure 7.7a, aux deux remplissages étudiés (88% de la deuxième couche et cellule pleine), la dépendance en fonction du vecteur d'onde du décalage de l'énergie de l'excitation 3D dans le Gel-Tek par rapport à l' $^4\text{He}$  en volume.

A basse température, les énergies des excitations de l'hélium dans la cellule pleine sont inférieures à celles de l'hélium en volume libre pour  $Q > 1.0 \text{ \AA}^{-1}$ . Le décalage par rapport à l' $^4\text{He}$  en volume augmente légèrement pour  $Q > 1.70 \text{ \AA}^{-1}$ , d'une façon similaire à ce que nous avons trouvé pour les excitations de l'hélium dans l'aérogel et le Vycor (voir figure 6.9).

Pour un remplissage de 88% de la deuxième couche, les énergies d'excitation chutent de façon encore plus marquée par rapport à l' $^4\text{He}$  en volume pour  $Q > 1.80 \text{ \AA}^{-1}$  et sont piquées environ  $100 \mu\text{eV}$  plus bas à  $Q = 2.05 \text{ \AA}^{-1}$ . Pour des vecteurs d'onde compris entre  $1.30 \text{ \AA}^{-1}$  et  $1.80 \text{ \AA}^{-1}$ , les énergies d'excitation dans le Gel-Tek sont supérieures à celles de l' $^4\text{He}$  en volume. Cette gamme de vecteurs d'onde correspond à une région de la courbe de dispersion de pente négative, c'est à dire où les excitations ont une vitesse de groupe négative, opposée à la direction de leur moment. Pour des vecteurs d'onde inférieurs à  $Q = 1.30 \text{ \AA}^{-1}$ , les énergies d'excitation sont à nouveau inférieures à celle de l' $^4\text{He}$  en volume. En-dessous de  $Q = 0.90 \text{ \AA}^{-1}$ , la statistique des données n'est pas suffisante pour obtenir des valeurs fiables des paramètres décrivant les excitations.

### Largeur

On a représenté sur la figure 7.7b la dépendance en fonction du vecteur d'onde de la largeur totale de l'excitation 3D dans le Gel-Tek.

Au-delà de  $Q = 1.50 \text{ \AA}^{-1}$ , on observe dans la cellule pleine un léger élargissement des excitations par rapport à la largeur de la résolution expérimentale (donnée par la largeur de l'excitation dans l' $^4\text{He}$  en volume). Cet élargissement est de l'ordre de  $7 \mu\text{eV}$  (mi-largeur à mi-hauteur) au vecteur d'onde du roton et se situe à la limite de notre résolution.

Dans le film de 88% d'une monocouche, les excitations sont clairement élargies pour des vecteurs d'onde supérieurs à  $Q = 1.4 \text{ \AA}^{-1}$ . Cet élargissement augmente avec  $Q$ , et au vecteur d'onde du roton ( $Q = 1.95 \text{ \AA}^{-1}$ ) est d'environ  $20 \mu\text{eV}$ , correspondant à une durée de vie d'environ 30 ps. Le confinement des excitations dans un film d'hélium aussi mince diminue

leur libre parcours moyen et donc aussi leur durée de vie. On s'attend à ce que leur durée de vie soit d'autant plus réduite que le film est mince.

### Intensité

L'intensité du roton 3D diffusée aux différents remplissages est représentée sur la figure 7.8. Nous avons par ailleurs estimé aux différents remplissages les quantités d'hélium liquide présentes dans la cellule. Si on suppose que la deuxième couche se solidifie quand la cellule est pleine, la quantité d'hélium liquide dans la cellule pleine devrait être inférieure à celle présente pour des taux de remplissage plus faibles. Ceci est dû à la faible taille des pores (environ 25 Å de diamètre) et à la grande surface spécifique du Gel-Tek. On observe toutefois que l'intensité du roton 3D croît linéairement avec le remplissage. Ce résultat implique que la deuxième couche reste liquide dans le Gel-Tek plein, probablement du fait de la nature amorphe du squelette de silice [Lie-Zhao 1986], ou bien du fait que la quantité de liquide déposée au-delà de la deuxième couche est insuffisante pour solidifier celle-ci.

Un calcul simple permet alors de mettre en évidence qu'à chaque remplissage une quantité d'hélium liquide correspondant à environ 60% de la deuxième couche ne contribue pas à l'intensité des excitations 3D. Cette quantité d'hélium correspond à celle attribuée à l'intensité de la composante large "normale" (voir partie 7.3.1). L'intensité de cette composante ne varie pas avec le remplissage, ce qui indique qu'elle implique la même quantité d'hélium quel que soit le remplissage.

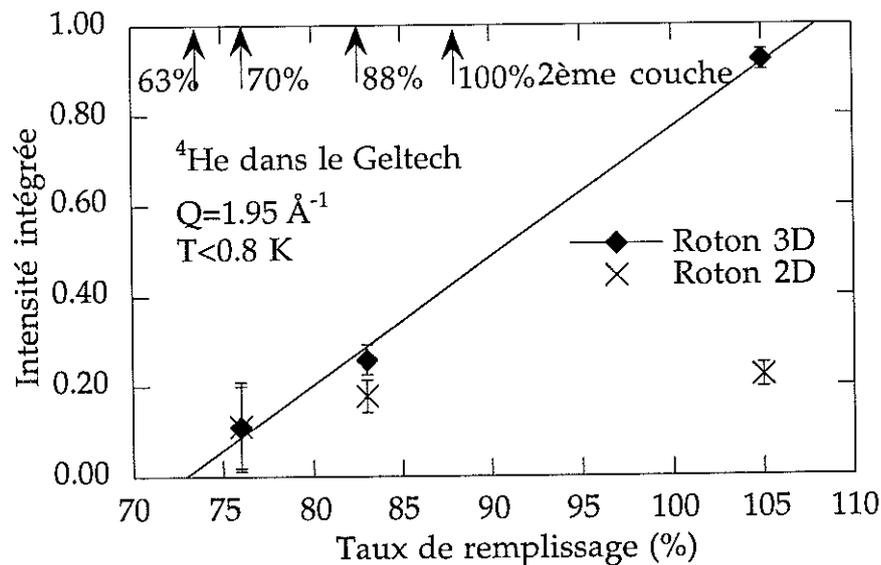


Figure 7.8 : Dépendance en fonction du taux de remplissage total du Gel-Tek de l'intensité intégrée des rotors 2D et 3D.

Nous avons normalisé l'intensité du roton ( $Q=1.95 \text{ \AA}^{-1}$ ) aux différents remplissages par rapport à la valeur reportée pour l' $^4\text{He}$  en volume [Cowley 1971] de façon à comparer les intensités des excitations aux autres vecteurs d'onde par rapport à celles de l' $^4\text{He}$  en volume. On a reporté la dépendance en vecteur d'onde des intensités des excitations 3D sur la figure 7.7c. Dans la cellule pleine, le poids respectif des différents vecteurs d'onde n'est pas modifié par rapport à l' $^4\text{He}$  en volume. Pour un remplissage de 88% de la deuxième couche, le poids des excitations diminue légèrement pour  $Q < 1.65 \text{ \AA}^{-1}$  en-dessous des valeurs reportées pour les excitations de l' $^4\text{He}$  en volume. Ce résultat est similaire à celui reporté pour des films d' $^4\text{He}$  de différentes épaisseurs sur du graphite [Lauter 1992b].

### 7.3.3 Excitation 2D

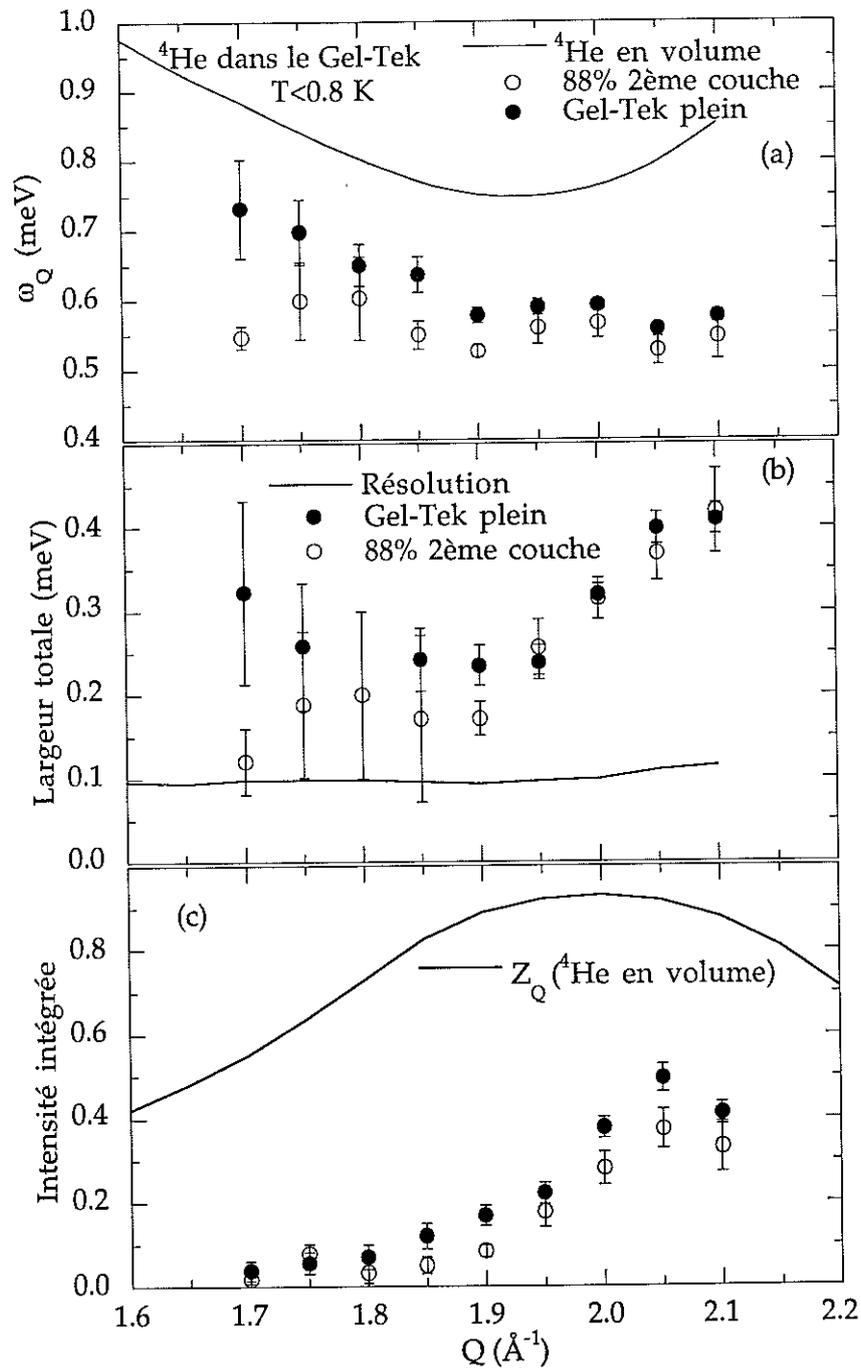
Au-delà d'un remplissage de 70% de la deuxième couche, on observe, pour des vecteurs d'onde supérieurs à  $Q=1.7 \text{ \AA}^{-1}$ , une excitation 2D du type de celle observée dans le Vycor. La présence de cette excitation n'est donc pas corrélée à la rugosité de surface des échantillons. En effet, comme on l'a vu dans la partie 4.3, le Gel-Tek utilisé ici présente une surface lisse contrairement à notre échantillon de Vycor. On a représenté cette excitation par un tiret long sur la figure 7.5.

#### Energie

Dans la limite de notre précision, l'énergie de l'excitation 2D présente une dispersion à peu près plate dans le film d'hélium étudié, tandis qu'elle montre une tendance à augmenter pour des vecteurs d'onde inférieurs à  $1.9 \text{ \AA}^{-1}$  dans la cellule pleine (voir fig. 7.9a). Au roton ( $Q=1.95 \text{ \AA}^{-1}$ ), elle est de  $0.56 \pm 0.02 \text{ meV}$  dans le film et  $0.59 \pm 0.01 \text{ meV}$  dans la cellule pleine. Ces valeurs sont en accord avec l'énergie de l'excitation 2D observée dans le Vycor (voir partie 6.2).

#### Largeur

Pour  $Q < 1.95 \text{ \AA}^{-1}$ , aux deux remplissages étudiés, la largeur de l'excitation 2D est comprise entre deux et trois fois la largeur de la résolution expérimentale (voir fig. 7.9b). Au-delà de ce vecteur d'onde, cette excitation montre une tendance à s'élargir jusqu'à environ quatre fois la résolution expérimentale pour  $Q=2.1 \text{ \AA}^{-1}$ . Ce résultat indique la possibilité que l'intensité observée ait en fait son origine dans plusieurs excitations, certaines d'entre elles n'apparaissant que pour des vecteurs d'onde supérieurs à celui du roton.



**Figure 7.9 :** Excitation 2D : Dépendance en fonction du vecteur d'onde de l'énergie (a), la largeur totale (b), et l'intensité intégrée (c) de l'excitation 2D pour deux remplissages différents. On a appliqué le même facteur de normalisation aux deux jeux de données. Ce facteur correspond à la normalisation de l'intensité intégrée du roton 3D dans le Gel-Tek plein par rapport à l' ${}^4\text{He}$  en volume.

### Intensité

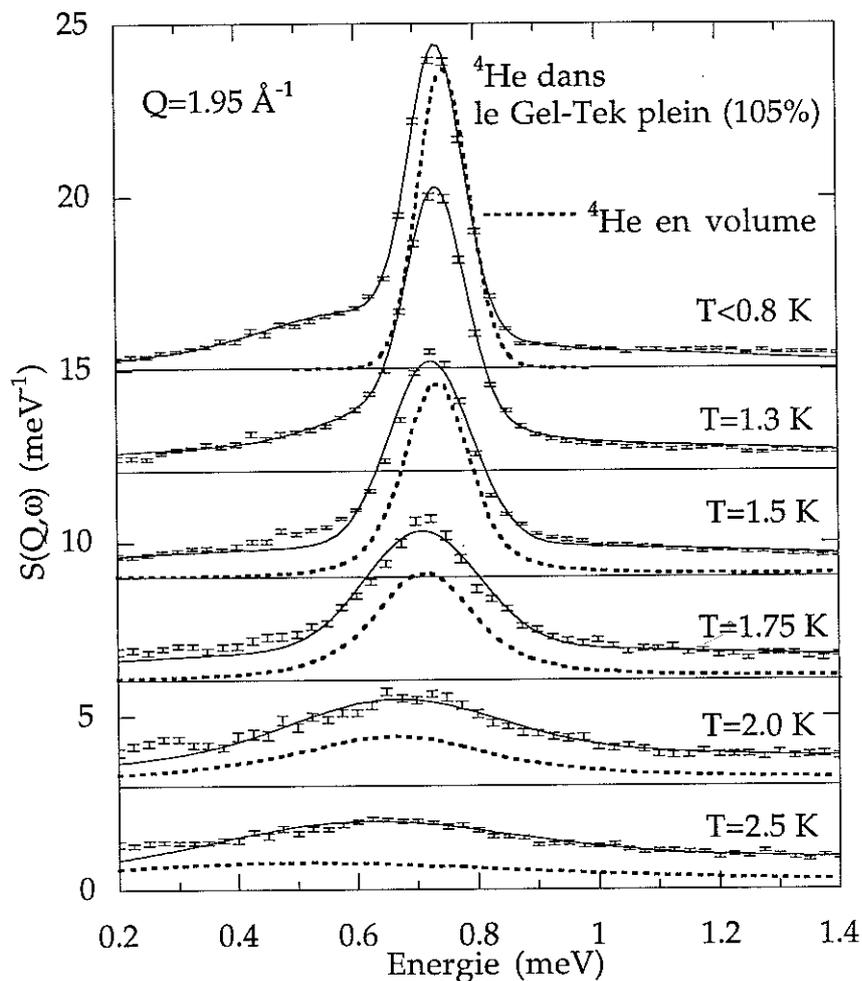
L'intensité de l'excitation 2D est légèrement plus faible dans le film que dans la cellule pleine (environ 80% plus faible) (voir fig. 7.8). On en déduit que cette excitation est probablement confinée dans la deuxième couche d'hélium. Lauter et collaborateurs [Lauter 1992] ont montré qu'une telle excitation subsiste dans un film d' $^4\text{He}$  sur du graphite préalablement recouvert de  $\text{H}_2$ , et donc sans couche d'hélium solide. Cette excitation, contrairement à la contribution large discutée plus haut, doit donc avoir son origine uniquement dans le liquide et ne fait pas intervenir de mécanismes d'échange avec le solide. On l'interprète comme un roton à caractère bi-dimensionnel, contrairement à l'excitation principale qui conserve son caractère tri-dimensionnel y compris dans un film mince d'hélium.

Comme nous l'avons observé dans l'aérogel et le Vycor plein, l'intensité de cette excitation 2D augmente plus rapidement avec le vecteur d'onde que l'excitation 3D (voir figures 6.6 et 7.9c). Au vecteur d'onde du roton ( $Q=1.95 \text{ \AA}^{-1}$ ), cette excitation a une intensité respectivement d'environ 70% et 25% de celle du roton 3D dans le film et dans la cellule pleine.

#### **7.3.4 Dépendance en température**

Pour un remplissage de 88% de la deuxième couche, nous avons mesuré le spectre de diffusion à 35 mK, 0.1 K et 0.75 K. Nous n'avons observé aucune différence entre les excitations observées à ces trois températures. Pour un tel remplissage, la température critique de transition superfluide doit se situer autour de  $T_c=0.7 \text{ K}$  [Miyamoto 1996]. La dépendance en température de l'excitation phonon-roton dans un film d'hélium liquide de remplissage inférieur à une monocouche apparaît donc comme complètement décorrélée de celle de la fraction de densité superfluide.

On a aussi étudié la dépendance en température de la diffusion par l'hélium dans le Gel-Tek légèrement sur-rempli (105% de remplissage). Selon notre hypothèse la deuxième couche d'hélium reste liquide, y compris quand le Gel-Tek est complètement rempli. On estime alors que la quantité d'hélium à l'extérieur du Gel-Tek s'élève à environ 10% de la quantité totale d'hélium liquide, soit environ 20% de la quantité d'hélium liquide contribuant à l'intensité des excitations de type phonon-roton. Nous avons mesuré l'intensité diffusée à 35 mK et à 0.8 K. Comme pour le film d'hélium, nous n'avons observé aucune différence entre les spectres mesurés aux deux températures. Les excitations 3D de l'hélium dans le Gel-Tek plein ne suivent donc pas le comportement de la fraction superfluide de la densité.



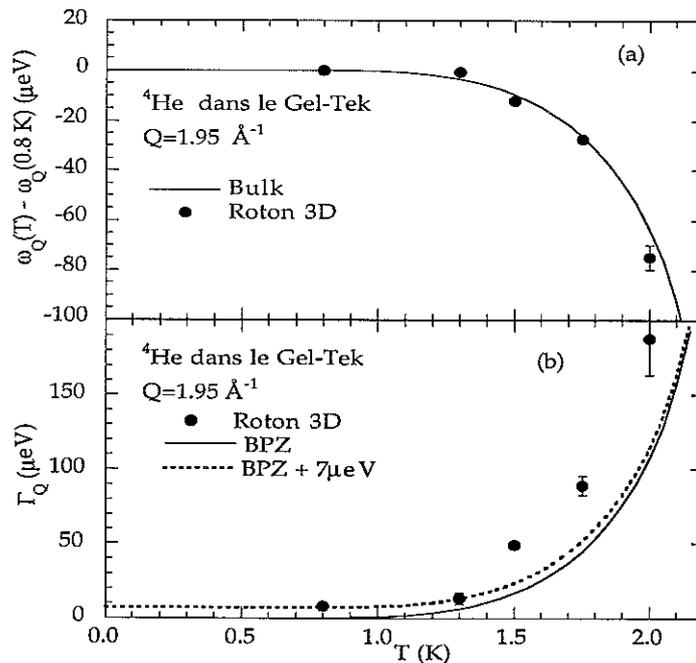
**Figure 7.10** : Dépendance en température du facteur de structure dynamique de l' $^4\text{He}$  dans le Gel-Tek complètement rempli au niveau du roton (IN6). La ligne continue représente le résultat de nos ajustements. La ligne pointillée représente le facteur de structure dynamique de l' $^4\text{He}$  en volume déterminé par Andersen et collaborateurs [Andersen 1994]. L'intensité intégrée du pic du roton est normalisée à basse température par rapport à celle de l' $^4\text{He}$  en volume.

A plus haute température, les excitations phonon-roton, superposées sur la contribution large indépendante de la température décrite plus haut, évoluent en fonction de la température d'une manière très similaire aux excitations de l' $^4\text{He}$  en volume. On a représenté cette évolution au niveau du roton sur la figure 7.10. L'intensité du roton dans le Gel-Tek décroît d'une manière semblable à celle du roton dans l' $^4\text{He}$  en volume. Ce comportement, selon l'interprétation de Glyde et Griffin [Glyde 1990, 1992b, 1993, 1994, Griffin 1987, 1993], indique qu'un condensat de Bose est présent dans le Gel-Tek au-delà de la température d'apparition de la superfluidité  $T_c$ . D'autre part, étant donné que les excitations dans le Gel-Tek

se comportent comme celles de l' $^4\text{He}$  en volume, la température d'apparition du condensat de Bose  $T_{\text{BEC}}$ , ainsi que sa dépendance en température ne semblent pas affectées par le confinement dans le Gel-Tek. Ce résultat confirme celui obtenu dans le Vycor (voir partie 6.3.2). On pourrait l'interpréter comme une indication que le condensat de Bose est localisé par le désordre, et forme la nouvelle phase du "verre de Bose" prévue par des études théoriques [Ma 1986, Fisher 1989, Trivedi 1992, Ma 1993].

Pour  $T=2.5$  K, dans la phase normale, la diffusion par le liquide normal est superposée sur la contribution large impliquant 60% de la deuxième couche.

Comme dans les aerogels et le Vycor, on trouve que la dépendance en température de l'énergie du roton dans le Gel-Tek est la même que dans l' $^4\text{He}$  en volume (cf fig. 7.11a). Contrairement à ce que nous avons observé dans les autres milieux poreux, son élargissement est plus rapide que celui du roton dans l' $^4\text{He}$  en volume (cf. fig. 7.11b). Ce résultat est très probablement dû à la réduction du libre parcours moyen des quasi-particules dans la géométrie restreinte des pores du Gel-Tek.



**Figure 7.11** : Dépendance en température du décalage en énergie et de l'élargissement du pic du roton 3D dans le Gel-Tek complètement rempli.

## 7.4 Conclusion

L'étude de la dépendance en remplissage du facteur de structure dynamique de l'hélium contenu dans des échantillons d'aérogel et de Gel-Tek nous a permis de confirmer que l'intensité supplémentaire de basse énergie observée au niveau du roton ( $Q=1.7-2.1 \text{ \AA}^{-1}$ ) trouve son origine dans les premières couches d'hélium à proximité des surfaces du milieu poreux. On l'a interprété comme une (ou plusieurs) excitation(s) à caractère bi-dimensionnel se propageant dans les premières couches de liquide.

Dans les deux milieux poreux utilisés, nous avons mis en évidence, dans des films d'hélium, différents effets du confinement sur les excitations phonon-roton à caractère tri-dimensionnel ainsi que sur le roton bi-dimensionnel.

Dans le Gel-Tek, nous avons observé une nouvelle contribution très large aux spectres de diffusion. Cette contribution est indépendante du remplissage au-delà d'un remplissage correspondant à environ 50% de la deuxième couche. Elle est indépendante de la température entre 35 mK et 2.5 K. On a interprété cette contribution comme trouvant son origine dans des mécanismes d'échange à l'échelle atomique entre la première couche, solide, et environ 60% de l'hélium liquide situé dans la deuxième couche.

Nous avons observé dans le Gel-Tek une excitation de type phonon-roton dans un film d' $^4\text{He}$  correspondant à un remplissage d'environ 70% de la deuxième couche. C'est la première observation d'une excitation de ce type dans un film d'hélium aussi mince.

On a trouvé que la dépendance en température de l'excitation phonon-roton dans le Gel-Tek complètement rempli est très similaire à celle observée dans l' $^4\text{He}$  en volume. Cette observation indiquerait, suivant l'interprétation de Glyde et Griffin, qu'un condensat de Bose serait présent dans le Gel-Tek à des températures supérieures à celle de l'apparition de la superfluidité. Un tel résultat pourrait être lié à une localisation du condensat par le désordre.



## CONCLUSION

Nous avons présenté une étude par diffusion inélastique de neutrons des excitations de  ${}^4\text{He}$  liquide dans différents milieux poreux (Vycor, aerogel et Gel-Tek). Ces milieux poreux présentent divers degrés de confinement et différents types de désordre vis à vis de  ${}^4\text{He}$  liquide. Nous avons caractérisé la structure de ces échantillons par diffusion de neutrons aux petits angles.

Pour réaliser cette étude, nous avons utilisé deux techniques de diffusion inélastique de neutrons : le spectromètre à trois axes et le spectromètre à temps de vol. Nous avons écrit des programmes en FORTRAN pour la transformation des données issues des expériences sur le spectromètre à temps de vol en données exploitables, ainsi que pour leur analyse. Dans ces données, nous avons identifié une composante parasite de diffusion multiple que nous avons soustraite des spectres obtenus.

Nous avons déterminé le facteur de structure dynamique de  ${}^4\text{He}$  liquide dans les différents milieux poreux complètement remplis à plusieurs températures, dans la phase superfluide et dans la phase normale. Nous avons en particulier reporté la première observation des excitations suivant la courbe de dispersion phonon-roton complète de  ${}^4\text{He}$  liquide dans un échantillon de Vycor. Dans tous les milieux poreux étudiés, les excitations phonon-roton sont très similaires à celles de  ${}^4\text{He}$  en volume. Nous avons en particulier trouvé la même dépendance en température des énergies d'excitation que dans  ${}^4\text{He}$  en volume. A part dans le Gel-Tek, où le confinement est le plus important, nous n'avons pas observé d'élargissement des excitations par rapport à  ${}^4\text{He}$  en volume. La dépendance en température des intensités d'excitation est aussi très semblable à celle des excitations de  ${}^4\text{He}$  en volume. Dans le Vycor et le Gel-Tek, la température critique d'apparition de la superfluidité est inférieure à

celle de l' $^4\text{He}$  en volume. Nous avons observé dans ces échantillons des excitations de type maxon-roton à des températures supérieures à la température d'apparition de la superfluidité. Si ces excitations sont liées à l'existence d'un condensat de Bose-Einstein, ces observations impliquent une séparation entre la température de condensation de Bose-Einstein et la température d'apparition de la superfluidité. Ce résultat pourrait permettre de mieux comprendre la nature de la transition de phase vers l'état superfluide de l' $^4\text{He}$  dans les milieux poreux.

Nous avons par ailleurs observé dans tous les échantillons complètement remplis, sauf dans un aerogel de 95% de porosité, de surface spécifique la plus petite, de l'intensité supplémentaire de basse énergie au niveau du roton.

Nous avons aussi déterminé la dépendance en remplissage du facteur de structure dynamique de l' $^4\text{He}$  liquide à basse température ( $T=35\text{ mK}-0.8\text{ K}$ ) dans un échantillon d'aerogel de 87% de porosité et dans le Gel-Tek. Ces dépendances en remplissage nous ont permis de mettre en évidence que l'intensité supplémentaire de basse énergie observée au niveau du roton correspond à une ou plusieurs excitations se propageant dans les premières couches de liquide à proximité des parois (excitation 2D). La présence de ces excitations permet, pour des températures supérieures à 1 K, de donner une explication à la réduction de la fraction superfluide de la densité observée dans ces milieux poreux

Nous avons d'autre part, dans le Gel-Tek, observé une contribution large indépendante de la température. On a trouvé que cette contribution implique environ 60% des atomes se trouvant dans la deuxième couche d'hélium à proximité du substrat. La présence de cette contribution permet de donner une origine à la réduction de la fraction superfluide de la densité observée aux plus basses températures quand l'hélium est confiné dans des pores de petites tailles ou bien dans des films minces.

Dans le Gel-Tek, nous avons aussi observé une excitation de type phonon-roton dans un film d' $^4\text{He}$  correspondant à un remplissage d'environ 70% de la deuxième couche. C'est la première observation d'une excitation de ce type dans un film d'hélium liquide d'épaisseur inférieure à une monocouche atomique. Nous avons par ailleurs observé divers effets du confinement des excitations phonon-roton et des excitations 2D dans un film d'hélium.

Hors du cadre de l'étude de l' $^4\text{He}$  dans les milieux poreux, nous avons étudié la dépendance en température du roton dans l' $^4\text{He}$  en volume. Nous avons confirmé que l'énergie du roton varie à basse température ( $T < 1.2\text{ K}$ ) plus lentement que ce qui est prévu théoriquement. Nous avons proposé que ce comportement pouvait être dû à l'interaction des rotons avec les phonons. Cette proposition nécessite toutefois un développement théorique.

## Bibliographie

- Agnolet 1989 G. Agnolet, D. F. McQueeney et J. D. Reppy, *Kosterlitz-Thouless transition in helium films*, Phys. Rev. B **39** (1989) 8934.
- Andersen 1991 K. H. Andersen, *A Neutron Scattering Study of Liquid Helium-4*, thesis of the University of Keele (England) (1991).
- Andersen 1994a K. H. Andersen et W. G. Stirling, *Collective excitations in liquid  $^4\text{He}$  : I. Experiment and presentation of data*, J. Phys. : Condens. Matter **6** (1994) 821.
- Andersen 1994b K. H. Andersen et W. G. Stirling, *Collective excitations in liquid  $^4\text{He}$  : II. Analysis and comparison with theory*, J. Phys. : Condens. Matter **6** (1994b) 5805.
- Andersen 1996 K. H. Andersen, J. Bossy, J. C. Cook, O. G. Randl, and J. L. Ragazzoni, *High-Resolution Measurements of Rotons in  $^4\text{He}$* , Phys. Rev. Lett. (1996) **77** 4043.
- Anderson 1999 C. R. Anderson, K. H. Andersen, J. Bossy, W. G. Stirling, R. M. Dimeo, P. E. Sokol, J. C. Cook et D. W. Brown, *High-resolution neutron-scattering study of the roton in confined superfluid  $^4\text{He}$* , Phys. Rev. B **59** (1999) 13588.
- Anglaret 1995 E. Anglaret, *Corrélations structure-propriétés vibrationnelles de matériaux fractals, les aerogels de silice*, thèse de l'Université de Montpellier II (1995).
- Azuah 1999 R. T. Azuah, H. R. Glyde, J. R. Beamish et M. A. Adams, *Excitations Beyond the Roton of Liquid  $^4\text{He}$  in Aerogel*, J. Low Temp. Phys. (à paraître).
- Bedell 1984 K. Bedell, D. Pines et A. Zawadowski, *Pseudopotential theory of interacting roton pairs in superfluid  $^4\text{He}$* , Phys. Rev. B **29** (1984) 102.
- Benham 1989 M. J. Benham, J. C. Cook, J.-C. Li, D. K. Ross, P. L. Hall et B. Sarkissian, *Small-angle neutron scattering study of adsorbed water in porous Vycor glass : Supercooling phase transition and interfacial structure*, Phys. Rev. B **39** (1989) 633.
- Bishop 1978 D. J. Bishop et J. D. Reppy, *Study of the Superfluid Transition in Two-Dimensional  $^4\text{He}$  Films*, Phys. Rev. Lett. **40** (1978) 1727.
- Bishop 1981 D. J. Bishop, J. E. Berthold, J. M. Parpia et J. D. Reppy, *Superfluid density of thin  $^4\text{He}$  films adsorbed in porous Vycor glass*, Phys. Rev. B **24** (1981) 5047.
- Blanc 1983 Y. Blanc, *Le spectromètre à temps de vol IN6, Caractéristiques techniques et performances*, Note interne ILL n°83BL21G (1983).
- Boninsegni 1998 M. Boninsegni et H. R. Glyde, *Excitations of liquid  $^4\text{He}$  in Disorder*, J. Low Temp. Phys. **112** (1998) 251.
- Brewer 1965 D. F. Brewer, A. J. Symonds et A. L. Thomson, *Gapless Surface Excitations in Liquid Helium*, Phys. Rev. Lett. **15** (1965) 182.
- Brewer 1970 D. F. Brewer, *Some Thermal, Magnetic, and Flow Properties of Adsorbed He and  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  Mixtures*, J. Low Temp. Phys. **3** (1970) 205.
- Brewer 1974 D. F. Brewer, *Some Recent Experimental Work on Helium in Restricted Geometries*, dans *Liquid and Solid Helium* (1974) (ed. par C. G. Kuper, S. G. Lipson et M. Revzen) J. Wiley p. 315.

- Brinker 1990 C. J. Brinker et G. W. Scherer, *Sol-Gel Science : The Physics and Chemistry of Sol-Gel Processing*, (1990) (ed. by H. B. Jovanovitch) Academic Press.
- Brooks 1977 J. S. Brooks et R. J. Donnelly, *The Calculated Thermodynamic Properties of Superfluid Helium-4*, J. Phys. Chem. Ref. Data **6** (1977) 51.
- Buchenau 1992 U. Buchenau, M. Monkenbusch, G. Reichenauer et B. Frick, *Inelastic neutron scattering from virgin and densified aerogels*, J. Non-Cryst. Solids **145** (1992) 121.
- Carneiro 1976 K. Carneiro, W. D. Ellenson, L. Passell, J. P. McTague et H. Taub, *Neutron-Scattering Study of the Structure of Adsorbed Helium Monolayers and of the Excitation Spectrum of Few-Atomic-Layer Superfluid Films*, Phys. Rev. Lett. **37** (1976) 1695.
- Carneiro 1981 K. Carneiro, L. Passell, W. Thomlinson et H. Taub, *Neutron-diffraction study of the solid layers at the liquid-solid boundary in  $^4\text{He}$  films adsorbed on graphite*, Phys. Rev. B **24** (1981) 1170.
- Chan 1988 M. H. W. Chan, K. I. Blum, S. Q. Murphy, G. K. S. Wong et J. D. Reppy, *Disorder and the Superfluid Transition in Liquid  $^4\text{He}$* , Phys. Rev. Lett. **61** (1988) 1950.
- Chan 1996 M. Chan, N. Mulders et J. Reppy, *Helium in aerogel*, Physics Today (08/1996) 30.
- Cho 1995 H. Cho et G. A. Williams, *Vortex Core Size in Submonolayer Superfluid  $^4\text{He}$  Films*, Phys. Rev. Lett. **75** (1995) 1562.
- Clements 1993a B. E. Clements, E. Krotscheck et H. J. Lauter, *Growth Instability in Helium Films*, Phys. Rev. Lett. **70** (1993) 1287.
- Clements 1993b B. E. Clements, J. L. Epstein, E. Krotscheck et M. Saarela, *Structure of boson quantum films*, Phys. Rev. B **48** (1993) 7450.
- Clements 1994a B. E. Clements, H. Forbert, E. Krotscheck et M. Saarela,  *$^4\text{He}$  on Weakly Attractive Substrates : Structure, Stability, and Wetting Behavior*, J. Low Temp. Phys. **95** (1994) 849.
- Clements 1994b B. E. Clements, H. Forbert, E. Krotscheck, H. J. Lauter, M. Saarela, C. J. Tymczak, *Dynamics of boson quantum films*, Phys. Rev. B **50** (1994) 6958.
- Clements 1996a B. E. Clements, H. Godfrin, E. Krotscheck, H. J. Lauter, P. Leiderer, V. Passioux et C. J. Tymczak, *Excitations in a thin liquid  $^4\text{He}$  film from inelastic neutron scattering*, Phys. Rev. B **53** (1996) 12242.
- Clements 1996b B. E. Clements, E. Krotscheck et C. J. Tymczak, *Multiphonon excitations in boson quantum films*, Phys. Rev. B **53** (1996) 12253.
- Coddens 1995 G. Coddens, J. De Kinder et R. Millet, *Time-of-flight inelastic neutron scattering study of liquid  $^4\text{He}$  in silica aerogels*, J. Non-Cryst. Solids **188** (1995) 41.
- Cooper 1967 M. J. Cooper et R. Nathans, *The Resolution Function in Neutron Diffractometry I. The Resolution Function of a Neutron Diffractometer and its Application to Phonon Measurements* Acta Cryst. **23** (1967) 357.
- Copley 1975 J. R. D. Copley et S. W. Lovesey, Rep. Prog. Phys. **38** (1975) 461.

- Courtens 1997 E. Courtens et R. Vacher, *Porous Silica : Model fractal materials, their structures and their vibrations in Amorphous Insulators and Semiconductors* (1997) (ed. by M. F. Thorpe and M. I. Mitkova) Kluwer Academic Publishers p.255.
- Cowley 1971 R. A. Cowley and A. D. B. Woods, *Inelastic Scattering of Thermal Neutrons from Liquid Helium*, Can. J. Phys. **49** (1971) 177.
- Crowell 1993 P. A. Crowell et J. D. Reppy, *Reentrant Superfluidity in  $^4\text{He}$  Films Adsorbed on Graphite*, Phys. Rev. Lett. **70** (1993) 3291.
- Crowell 1995 P. A. Crowell, F. W. van Keuls et J. D. Reppy, *Superfluid-Insulator Transition in  $^4\text{He}$  Films Adsorbed in Vycor Glass*, Phys. Rev. Lett. **75** (1995) 1106.
- De Kinder 1994 J. De Kinder, G. Coddens et R. Millet, *Study of elementary excitations of superfluid  $^4\text{He}$  in silica aerogels*, Z. Physik B **95** (1994) 511.
- Dimeo 1997 R. M. Dimeo, P. E. Sokol, D. W. Brown, C. R. Anderson, W. G. Stirling, M. A. Adams, S. H. Lee, C. Rutiser et S. Komarneni, *Effects of Disorder on the Collective Excitations in Helium*, Phys. Rev. Lett. **79** (1997) 5274.
- Dimeo 1998 R. M. Dimeo, P. E. Sokol, C. R. Anderson, W. G. Stirling, K. H. Andersen et M. A. Adams, *Localized Collective Excitations in Superfluid Helium in Vycor*, Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 5860.
- Donnelly 1981 R. J. Donnelly, J. A. Donnelly et R. N. Hills, *Specific Heat and Dispersion Curve for Helium II*, J. Low Temp. Phys. **44** (1981) 471.
- Donnelly 1997 R. Donnelly, *Rotons : a low-temperature puzzle*, Physics World (02/1997) 25.
- Eggington 1974 A. Eggington, *Superfluidity in restricted geometries*, in *The Helium Liquids*, Proceedings of the 15th Scottish Universities Summer School in Physics (1974) (ed. par J. G. M. Armitage et I. E. Farquhar) p. 175.
- Emmerling 1992 A. Emmerling et J. Fricke, *Small angle scattering and the structure of aerogels*, J. Non-Cryst. Solids **145** (1992) 113.
- Fåk 1992 B. Fåk et B. Dorner, *On the interpretation of phonon line shapes and excitation energies in neutron scattering experiments*, Note interne ILL n°92FA008S (1992).
- Fåk 1997 B. Fåk et B. Dorner, *Phonon line shapes and excitation energies*, Physica B **234-236** (1997) 1107.
- Fåk 1998 B. Fåk et J. Bossy, *Temperature Dependence of  $S(Q,E)$  in Liquid  $^4\text{He}$  Beyond the Roton*, J. Low Temp. Phys. **112** (1998) 1.
- Feynman 1954 R. P. Feynman, Phys. Rev. **94** (1954) 262.
- Feynman 1956 R. P. Feynman et M. Cohen, Phys. Rev. **102** (1956) 1189.
- Finotello 1988 D. Finotello, K. A. Gillis, A. Wong et M. H. W. Chan, *Sharp Heat-Capacity Signature at the Superfluid Transition of Helium Films in Porous Glasses*, Phys. Rev. Lett. **61** (1988) 1954.
- Fisher 1989 M. P. A. Fisher, P. B. Weichman, G. Grinstein et D. S. Fisher, *Boson localization and the superfluid-insulator transition*, Phys. Rev. B **40** (1989) 546.

- Fried 1998 D. G. Fried, T. C. Killian, L. Willmann, D. Landhuis, S. C. Moss, D. Kleppner et T. J. Greytak, *Bose-Einstein Condensation of Atomic Hydrogen*, Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 3811.
- Galasiewicz 1971 Z. M. Galasiewicz, *Helium 4*, (1971) Pergamon Press.
- Gibbs 1995 M. R. Gibbs, P. E. Sokol, R. T. Azuah, W. G. Stirling et M. A. Adams, *Neutron inelastic scattering from  $^4\text{He}$  in restricted geometries*, Physica B **213&214** (1995) 462.
- Gibbs 1997 M. R. Gibbs, P. E. Sokol, W. G. Stirling, R. T. Azuah et M. A. Adams, *The Collective Excitations of Superfluid  $^4\text{He}$  in Aerogel Glass*, J. Low Temp. Phys. **107** (1997) 33.
- Glyde 1987 H. R. Glyde et E. C. Svensson, *Solid and liquid helium in Neutron Scattering, Methods of Experimental Physics* Vol. 23 Part B (1987) (ed. by K. Sköld and D. L. Price) Academic Press.
- Glyde 1990 H. R. Glyde et A. Griffin, *Zero Sound and Atomiclike Excitations : The Nature of Phonons and Rotons in Liquid  $^4\text{He}$* , Phys. Rev. Lett. **65** (1990) 1454.
- Glyde 1992a H. R. Glyde, *Neutron Scattering from Liquid  $^4\text{He}$* , J. Low Temp. Phys. **87** (1992) 407.
- Glyde 1992b H. R. Glyde, *Density and quasiparticle excitations in liquid  $^4\text{He}$* , Phys. Rev. B **45** (1992) 7321.
- Glyde 1993 H. R. Glyde, *The Role of the Condensate in the Existence of Phonons and Rotons*, J. Low Temp. Phys. **93** (1993) 861.
- Glyde 1994 H. R. Glyde, *Excitations in Liquid and Solid Helium*, Oxford Series on Neutron Scattering in Condensed Matter **9** (1994) Clarendon Press.
- Glyde 1998 H. R. Glyde, B. Fåk et O. Plantevin, *Excitations of liquid  $^4\text{He}$  in disorder*, J. Low Temp. Phys. **113** (1998) 537.
- Götze 1976a W. Götze et M. Lücke, *A Comment on Rotons in Two-Dimensional Liquid Helium II*, J. Low Temp. Phys. **25** (1976) 671.
- Götze 1976b W. Götze et M. Lücke, *Dynamical structure factor  $S(q, \omega)$  of liquid helium II at zero temperature*, Phys. Rev. B **13** (1976) 3825.
- Griffin 1987 A. Griffin, *The effect of the Bose broken symmetry on the dynamics of superfluid  $^4\text{He}$  : a review*, Can. J. Phys. **65** (1987) 1368.
- Griffin 1993 A. Griffin, *Excitations in a Bose-Condensed Liquid* (1993) Cambridge University Press.
- Hasmy 1993 A. Hasmy, M. Foret, J. Pelous et R. Jullien, *Small-angle neutron-scattering investigation of short-range correlations in fractal aerogels : Simulations and experiments*, Phys. Rev. B **48** (1993) 9345.
- Hasmy 1994 A. Hasmy, E. Anglaret, M. Foret, J. Pelous et R. Jullien, *Small-angle neutron-scattering investigation of long-range correlations in silica aerogels : Simulations and experiments*, Phys. Rev. B **50** (1994) 6006.
- Hennion 1974 B. Hennion, *Résolution du spectromètre à trois axes dans Introduction à la spectrométrie neutronique*, Cours donnés au CEN-Saclay (09-10/1974) p.69.

- Höhr 1988 A. Höhr, H.-B. Neumann, P. W. Schmidt, P. Pfeifer et D. Avnir, *Fractal surface and cluster structure of controlled-pore glasses and Vycor porous glass as revealed by small-angle x-ray and neutron scattering*, Phys. Rev. B **38** (1988) 1462.
- Huang 1992 K. Huang et H.-F. Meng, *Hard-Sphere Bose Gas in Random External Potentials*, Phys. Rev. Lett. **69** (1992) 644.
- Huang 1993 K. Huang et H.-F. Meng, *Superfluid helium in fully saturated porous media*, Phys. Rev. B **48** (1993) 6687.
- Jackson 1971 H. W. Jackson, *Kinematics of Excitation Pair Contributions to Dynamic Structure*, Phys. Rev. A **4** (1971) 2386.
- Khalatnikov 1965 I. M. Khalatnikov, *An introduction to the theory of superfluidity* (1965) W. A. Benjamin, Inc.
- Kiewiet 1975 C. W. Kiewiet, H. E. Hall et J. D. Reppy, *Superfluid Density in Porous Vycor Glass*, Phys. Rev. Lett. **35** (1975) 1286.
- Lambert 1977 B. Lambert, D. Salin, J. Joffrin et R. Scherm, *Surface Effects on Neutron Scattering in Helium Films*, J. Phys. **38** (1977) L-377.
- Landau 1941 L. D. Landau, *The theory of superfluidity of helium II*, J. Phys. (U.S.S.R.) **5** (1941) 71, dans *Helium 4* par Z. M. Galasiewicz (1971) Pergamon Press p. 191.
- Landau 1947 L. D. Landau, *On the theory of superfluidity of helium II*, J. Phys. (U.S.S.R.) **11** (1947) 91, dans *Helium 4* par Z. M. Galasiewicz (1971) Pergamon Press p. 243.
- Landau 1949 L. D. Landau et I. M. Khalatnikov, *The theory of the viscosity of helium II : I. Collisions of elementary excitations in helium II et II. Calculation of the viscosity coefficient*, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **19** (1949) 637 et 709, dans *Collected papers of L. D. Landau* (1965) Pergamon Press p. 494 et p. 511.
- Lauter 1981 H. J. Lauter, *Excitations in Helium Films Adsorbed on Grafoil*, Physica **107B** (1981) 239.
- Lauter 1983 H. J. Lauter, H. Godfrin, C. Tiby, H. Wiechert et P. E. Obermayer, *On the nature of excitations in helium films*, Surf. Science **125** (1983) 265.
- Lauter 1987 H. J. Lauter, H. P. Schildberg, H. Godfrin, H. Wiechert et R. Haensel, *Neutron diffraction studies of two-dimensional quantum systems*, Can. J. Phys. **65** (1987) 1435.
- Lauter 1992a H. J. Lauter, H. Godfrin, V. L. P. Frank et P. Leiderer, *Ripplons in  $^4\text{He}$  Films Observed by Neutron Scattering*, Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 2484.
- Lauter 1992b H. J. Lauter, H. Godfrin et P. Leiderer,  *$^4\text{He}$  Films on Graphite Studied by Neutron Scattering*, J. Low Temp. Phys. **87** (1992) 425.
- Lee 1992 D. K. K. Lee et J. M. F. Gunn, *Dirty bosons : screening, inert layers and the Lifshitz tail*, J. Low Temp. Phys. **89** (1992) 101.
- Leverrier-Foret 1992 M. Leverrier-Foret, *Etude par diffusion élastique et inélastique des neutrons de la structure et de la dynamique vibrationnelle d'aérogels de silice*, thèse de l'Université Montpellier II (1992).
- Levitz 1991 P. Levitz, G. Ehret, S. K. Sinha et J. M. Drake, *Porous Vycor glass : The microstructure as probed by electron microscopy, direct energy transfer, small-angle scattering, and molecular adsorption*, J. Chem. Phys. **95** (1991) 6151.

- Li 1994 J.-C. Li et D. K. Ross, *Dynamical scaling for spinodal decomposition-a small-angle neutron scattering study of porous Vycor glass with fractal properties*, J. Phys. : Condens. Matter **6** (1994) 351.
- Lie-Zhao 1986 C. Lie-Zhao, D. F. Brewer, C. Girit, E. N. Smith et J. D. Reppy, *Flow and torsional oscillator measurements on liquid helium in restricted geometries under pressure*, Phys. Rev. B **33** (1986) 106.
- London 1954 F. London, *Superfluids* Vol. I, reprinted (1964) Dover.
- Ma 1986 M. Ma, B. I. Halperin, P. A. Lee, *Strongly disordered superfluids Quantum fluctuations and critical behavior*, Phys. Rev. B **34** (1986) 3136.
- Ma 1993 M. Ma, P. Nisamaneephong et L. Zhang, *Ground State and Excitations of Disordered Boson Systems*, J. Low Temp. Phys. **93** (1993) 957.
- Makivic 1993 M. Makivic, N. Trivedi et S. Ullah, *Disordered Bosons : Critical Phenomena and Evidence for New Low Energy Excitations*, Phys. Rev. Lett. **71** (1993) 2307.
- Manchester 1967 F. D. Manchester, *Solid Layers in the Adsorbed Helium Film and Mobility of the Film at Low Coverages*, Rev. Mod. Phys. **39** (1967) 383.
- Manousakis 1986 E. Manousakis et V. R. Pandharipande, *Theoretical studies of the dynamic structure function of liquid  $^4\text{He}$* , Phys. Rev. B **33** (1986) 150.
- Marshall 1971 W. Marshall and S. Lovesey, *Thermal neutron scattering* (1971) Oxford University Press.
- Mezei 1980 F. Mezei, *High-Resolution Study of Excitations in Superfluid  $^4\text{He}$  by the Neutron Spin-Echo Technique*, Phys. Rev. Lett. **44** (1980) 1601.
- Mezei 1983 F. Mezei et W. G. Stirling, *75th Jubilee Conference on Helium-4* (St Andrews, 1983) (ed. J. G. M. Armitage) World Scientific p.111.
- Miller 1962 A. Miller, D. Pines et P. Nozières, *Elementary Excitations in Liquid Helium*, Phys. Rev. **127** (1962) 1452.
- Mineev 1980 V. P. Mineev, *Dynamic form factor of superfluid  $^4\text{He}$* , JETP Lett. **32** (1980) 489.
- Miyamoto 1996 S. Miyamoto et Y. Takano, *Superfluidity in  $^4\text{He}$  Adsorbed in Porous Silica*, Proceedings of the 21st International Conference on Low Temperature Physics, Czech. J. Phys. **46** (1996) S1-137.
- Nakayama 1978 T. Nakayama, *Tunneling as a mechanism for the anomalous Kapitza resistance*, J. Phys. **C6** (1978) 256.
- Nozières 1990 P. Nozières et D. Pines, *The theory of quantum liquids Vol. II Superfluid Bose liquids* (1964, 1990) Addison-Wesley.
- Padmore 1974 T. C. Padmore, *Two-Dimensional Rotons*, Phys. Rev. Lett. **32** (1974) 826.
- Pistolesi 1998 F. Pistolesi, *Theory and Data Analysis for Excitations in Liquid  $^4\text{He}$  Beyond the Roton Minimum*, Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 397.
- Plantevin 1998 O. Plantevin, B. Fåk, H. R. Glyde, J. Bossy et J. R. Beamish, *Elementary excitations of liquid  $^4\text{He}$  in aerogel*, Phys. Rev. B **57** (1998) 10775.

- Pobell 1972 F. D. M. Pobell, M. H. W. Chan, L. R. Corruccini, R. P. Henkel, S. W. Schwenterly et J. D. Reppy, *Low-Temperature Superfluid Density in a Restricted Geometry*, Phys. Rev. Lett. **28** (1972) 542.
- Price 1987 D. L. Price and K. Sköld, *Introduction to neutron scattering in Neutron Scattering, Methods of Experimental Physics* Vol. 23 Part A (1987) (ed. by K. Sköld and D. L. Price) Academic Press.
- Reppy 1992 J. D. Reppy, *Superfluid Helium in Porous Media*, J. Low Temp. Phys. **87** (1992) 205.
- Rieutord 1990 F. Rieutord, *INX - Program for time-of-flight data reduction, User's guide*, document interne ILL (1990).
- Ruvalds 1970 J. Ruvalds et A. Zawadowski, *Theory of structure in the superfluid helium spectrum considering roton-roton resonances*, Phys. Rev. Lett. **25** (1970) 333.
- Ruvalds 1971 J. Ruvalds, *Interacting Rotons and Superfluidity in Liquid Helium*, Phys. Rev. Lett. **27** (1971) 1769.
- Schaefer 1986 D. W. Schaefer et K. D. Keefer, *Structure of Random Porous Materials : Silica Aerogel*, Phys. Rev. Lett. **56** (1986) 2199.
- Schaefer 1987 D. W. Schaefer, B. C. Bunker et J. P. Wilcoxon, *Are leached porous glasses fractal ?*, Phys. Rev. Lett. **58** (1987) 284.
- Schaefer 1990 D. W. Schaefer, C. J. Brinker, D. Richter, B. Farago et B. Frick, *Dynamics of Weakly Connected Solids : Silica Aerogels*, Phys. Rev. Lett. **64** (1990) 2316.
- Sears 1984 V. F. Sears, *Thermal Neutron Scattering Lengths and Cross Sections for Condensed Matter Research* (1984) internal document from Chalk River Nuclear Laboratories, Ontario, Canada.
- Shafer 1987 M. W. Shafer, D. D. Awschalom, J. Warnock et G. Ruben, *The chemistry of and physics with porous sol-gel glasses*, J. Appl. Phys. **61** (1987) 5438.
- Singh 1994 K. G. Singh et D. S. Rokhsar, *Disordered bosons : Condensate and excitations*, Phys. Rev. B **49** (1994) 9013.
- Sokol 1996 P. E. Sokol, M. R. Gibbs, W. G. Stirling, R. T. Azuah et M. A. Adams, *Microscopic origins of superfluidity in confined geometries*, Nature **379** (1996) 616.
- Solana 1972 J. Solana, V. Celli, J. Ruvalds, I. Tüttö et A. Zawadowski, *Theory of the Roton Lifetime in Superfluid Helium*, Phys. Rev. A **6** (1972) 1665.
- Squires 1978 G. L. Squires, *Introduction to the Theory of Thermal Neutron Scattering* (1978) Cambridge University Press.
- Stirling 1990 W. G. Stirling et H. R. Glyde, *Temperature dependence of the phonon and roton excitations in liquid  $^4\text{He}$* , Phys. Rev. B **41** (1990) 4224.
- Stirling 1991 W. G. Stirling, in *Excitations in Two-dimensional and Three-dimensional Quantum Fluids* (1991) (ed. by A. G. F. Wyatt and H. J. Lauter) Plenum Press p.25.
- Stunault 1992 A. Stunault, K. H. Andersen, Y. Blanc, B. Fåk, H. Godfrin, K. Guckelsberger and R. Scherm, *Time-of-flight spectroscopy : energy calibration and consistency check*, Physica B **180&181** (1992) 926.

- Tait 1979 R. H. Tait et J. D. Reppy, *Low-temperature heat-capacity measurements of  $^4\text{He}$  films adsorbed on a disordered substrate*, Phys. Rev. B **20** (1979) 997.
- Talbot 1988 E. F. Talbot, H. R. Glyde, W. G. Stirling et E. C. Svensson, *Temperature dependence of  $S(Q, \omega)$  in liquid  $^4\text{He}$  under pressure*, Phys. Rev. B **38** (1988) 11229.
- Thibault 1994 P. Thibault, *L'hélium 4 dans les aérogels de silice : effet du confinement sur la transition superfluide*, thèse de l'Université de Grenoble I (1994).
- Thibault 1995 P. Thibault, J. J. Préjean et L. Puech, *Silica-aerogel thermal expansion induced by submonolayer helium adsorption*, Phys. Rev. B **52** (1995) 17491.
- Thibault 1996 P. Thibault, J. J. Préjean et L. Puech, *Contraction of aerogels by superfluid order*, Proceedings of the 21st International Conference on Low Temperature Physics, Czech. J. Phys. **46** (1996) S1-149.
- Thomlinson 1980 W. Thomlinson, J. A. Tarvin et L. Passell, *Excitations in Few-Atomic-Layer Adsorbed Helium Films : The Two-Dimensional Roton*, Phys. Rev. Lett. **44** (1980) 266.
- Townsend 1997 C. Townsend, W. Ketterle et S. Stringari, *Bose-Einstein condensation*, Physics World (03/1997) 29.
- Tüttö 1973 I. Tüttö, *Theory of the Temperature Dependence of the Roton Energy*, J. Low Temp. Phys. **11** (1973) 77.
- Vacher 1988 R. Vacher, T. Woignier, J. Pelous et E. Courtens, *Structure and self-similarity of silica aerogels*, Phys. Rev. B **37** (1988) 6500.
- Van Hove 1954 L. Van Hove, Phys. Rev. **95** (1954) 249.
- Waller 1952 I. Waller et P. O. Fröman, *On neutron diffraction phenomena according to the kinematical theory*, Ark. Fys. **4** (1952) 183.
- Washburn 1975 T. E. Washburn, J. E. Rutledge et J. M. Mochel, *Domain of Two-Dimensional Excitations in Superfluid Helium Films*, Phys. Rev. Lett. **34** (1975) 183.
- Wilks 1967 J. Wilks, *The Properties of Liquid and Solid Helium* (1967) Clarendon Press.
- Wilks 1987 J. Wilks and D. S. Betts, *An Introduction to Liquid Helium* (1970, 1987) Clarendon Press.
- Williams 1990 G. A. Williams, *Comment on "Disorder and the Superfluid Transition in Liquid  $^4\text{He}$ "*, Phys. Rev. Lett. **64** (1990) 978.
- Williams 1993 C. E. Williams, *Small angle scattering from solids and solutions, Neutron and Synchrotron radiation for condensed matter studies (Hercules) Vol.1 p.235* (1993) (ed. by J. Baruchel, J. L. Hodeau, M. S. Lehmann, J. R. Regnard, C. Schlenker) Les Editions de Physique, Springer-Verlag.
- Wiltzius 1987 P. Wiltzius, F. S. Bates, S. B. Dierker et G. D. Wignall, *Structure of porous vycor glass*, Phys. Rev. A **36** (1987) 2991.
- Wong 1990 G. K. S. Wong, P. A. Crowell, H. A. Cho et J. D. Reppy, *Superfluid Critical Behavior in  $^4\text{He}$ -Filled Porous Media*, Phys. Rev. Lett. **65** (1990) 2410.
- Wong 1993 G. K. S. Wong, P. A. Crowell, H. A. Cho et J. D. Reppy, *Superfluid critical behavior in the presence of a dilute correlated impurity*, Phys. Rev. B **48** (1993) 3858.

- Woods 1977 A. D. B. Woods, P. A. Hilton, R. Scherm et W. G. Stirling, *A new determination of the roton energy in superfluid liquid helium*, J. Phys. C : Solid State Phys. **10** (1977) L45.
- Woods 1978 A. D. B. Woods et E. C. Svensson, *Temperature dependence of  $S(Q, \omega)$  in Superfluid  $^4\text{He}$* , Phys. Rev. Lett. **41** (1978) 974.
- Wyatt 1998 A. F. G. Wyatt, *Evidence for a Bose-Einstein condensate in liquid  $^4\text{He}$  from quantum evaporation*, Nature **391** (01/1998) 56.
- Zawadowski 1978 A. Zawadowski, *Bound excitations in  $^4\text{He}$* , dans *Quantum liquids* (1978) (ed. par J. Ruvalds et T. Regge) North Holland p. 293.
- Zhang 1993 L. Zhang, *Disordered boson systems : A perturbative study*, Phys. Rev. B **47** (1993) 14364.



## RÉSUMÉ

Nous nous sommes intéressés dans cette étude au comportement dynamique de l' $^4\text{He}$  superfluide dans différents matériaux poreux (Vycor, aerogel et Gel-Tek). Dans ce but, nous avons déterminé le facteur de structure dynamique de l' $^4\text{He}$  liquide confiné dans ces matériaux par diffusion inélastique des neutrons.

Dans les milieux poreux complètement remplis, les excitations phonon-roton sont très similaires à celles de l' $^4\text{He}$  en volume. En particulier, les énergies d'excitation suivent la même dépendance en température que dans l' $^4\text{He}$  en volume. A part dans le Gel-Tek, où le confinement est le plus important, nous n'avons pas observé d'élargissement des excitations par rapport à l' $^4\text{He}$  en volume. Dans le Vycor et le Gel-Tek, nous avons observé des excitations de type maxon-roton, indiquant la présence possible d'un condensat de Bose-Einstein, à des températures supérieures à la température d'apparition de la superfluidité. Nous avons observé dans ces milieux poreux et dans des aerogels de 87% de porosité de l'intensité attribuée à une ou plusieurs excitations se propageant dans les premières couches de liquide à proximité des parois (excitation 2D).

Dans l'échantillon de Gel-Tek, on a mis en évidence une contribution large indépendante de la température entre 35 mK et 2.5 K, impliquant environ 60% des atomes situés dans la deuxième couche d'hélium à proximité du substrat (la première couche est solide). Nous avons aussi observé dans le Gel-Tek une excitation de type phonon-roton dans un film d'hélium liquide d'épaisseur inférieure à une monocouche atomique. Nous avons observé d'autre part, dans l'aerogel et le Gel-Tek, divers effets du confinement des excitations phonon-roton et 2D dans un film d'hélium.

### Mots-clés

Helium, Superfluidité, Excitations, Diffusion inélastique des neutrons, Aerogel, Vycor, Film, Condensation de Bose-Einstein

