

Détection de Rayonnements à Très Basse Température

4^{ième} école d'Automne d'Aussois : Balaruc-les-Bains 14-20 novembre 1999

Réfrigérissement par Désaimantation Adiabatique

J. Bossy

DRTBT 1999 _ 04

Refroidissement par désaimantation adiabatique

J. Bossy CNRS-CRTBT

1- Introduction

Aujourd'hui le refroidissement par désaimantation adiabatique (RDA) évoque essentiellement la technique de désaimantation nucléaire adiabatique, qui a ouvert la porte des ultra-basses températures ($T < 1$ mK) et est toujours employée dans les laboratoires spécialisés dans la physique aux très basses températures.

Le RDA est une méthode plus universelle qui, grâce à un même principe, permet de construire des réfrigérateurs couvrant une gamme de température allant de 10 K à 10^{-9} K. Les réfrigérateurs à désaimantation fonctionnant dans la gamme 1 K-20 mK ont été utilisés dans les laboratoires jusqu'il y a environ quinze ans. Ils fonctionnent par désaimantation de sels paramagnétiques électroniques. Ils ont été remplacés par des réfrigérateurs à dilution qui, bien que d'un fonctionnement plus complexe, présentent l'énorme avantage de marcher en continu.

Cependant, un regain d'intérêt est porté aux réfrigérateurs de type RDA en vue d'applications pour la recherche spatiale. En effet, les astrophysiciens cherchent à refroidir des systèmes de détection des rayonnements, à une température inférieure à 100 mK. La simplicité des réfrigérateurs RDA ainsi que leur fiabilité en font de bons candidats pour de telles applications.

La technique de réfrigération par désaimantation nucléaire (DNA) repose sur les mêmes principes que le RDA, mais sa mise en oeuvre expérimentale est très différente. Le RDA s'applique à des systèmes composés de moments magnétiques électroniques, alors que la DNA concerne des systèmes magnétiques dans lesquels les moments sont portés par les noyaux des atomes. Les moments nucléaires étant 2000 fois plus petits que les moments électroniques, le magnétisme nucléaire apparaît à plus basse température et à plus fort champ.

2- Principe

2.1 - Effet magnétocalorique

La technique de refroidissement par RDA a été proposée indépendamment par Debye (1926) et Giaouque (1927). L'idée repose sur des idées simples qui utilisent les principes élémentaires de la thermodynamique des systèmes magnétiques. Nous allons montrer que le RDA est l'analogue d'une détente adiabatique dans un gaz transposée à un système magnétique.

En effet, pour un système solide magnétique à basse température, toute l'entropie est d'origine magnétique, de sorte que la variation d'énergie U est donnée par :

$$dU = T dS - MdH \quad (1),$$

où U est l'énergie interne, exprimée en fonction des variables indépendantes entropie S et aimantation M . Le champ magnétique appliqué H , et l'aimantation, sont les analogues du volume V et de la pression P dans le cas du gaz. On fait subir au système une transformation adiabatique, c'est-à-dire qui conserve l'entropie. Concrètement, le système est isolé et on fait varier le champ magnétique appliqué. Pour relier la variation de température à une variation de champ, il faut calculer la dérivée partielle de la température en fonction du champ à entropie constante :

$$(\partial T / \partial H)_S \quad (2)$$

Dans le cas de la détente adiabatique d'un gaz, la dérivée de la température par rapport à la pression à entropie constante est donnée par^{1,2} :

$$(\partial T / \partial P)_S = T / C_p (\partial V / \partial T)_P, \quad (3)$$

où C_p est la chaleur spécifique du gaz à pression constante.

Par pure analogie avec le gaz, nous obtenons, pour un système magnétique :

$$(\partial T / \partial H)_S = T / C_H (\partial M / \partial T)_H, \quad (4)$$

où C_H est la chaleur spécifique du système magnétique à champ constant. On voit directement, à partir de l'équation (4), qu'une variation de température induite par une variation de champ apparaît si l'aimantation du système dépend de la température.

2-2 Désaimantation des sels paramagnétiques

Les sels paramagnétiques sont des matériaux qui ont la propriété d'avoir une aimantation proportionnelle à H/T jusqu'à très basse température. C'est parce que les ions magnétiques qui les composent sont dilués de façon à abaisser le plus possible la température d'apparition de l'ordre magnétique. Le principe du RDA apparaît clairement si on examine le comportement de l'entropie de ces sels en fonction de la température, pour différents champs appliqués. Ces courbes sont représentées à la figure 1, pour des champs de 0.05 et 1 tesla.

Supposons qu'au moyen d'un réfrigérateur quelconque, par exemple un bain d'hélium pompé on atteigne le point X. Le sel est à la température T_i voisine de 1 K et dans un champ nul. On fait subir au sel une aimantation isotherme, c'est-à-dire qu'on monte progressivement le champ jusqu'à atteindre le champ $B_i=1$ tesla. C'est le trajet X->Y. Le sel est toujours en contact avec le bain d'hélium pompé qui absorbe la chaleur d'aimantation. Cette chaleur est représentée graphiquement par le rectangle XYZ'X'. On isole le sel du bain d'hélium, et on abaisse le champ jusqu'à $B_f=0.05$ tesla, en suivant le trajet Y->Z: c'est la désaimantation adiabatique. A la fin du processus la température du sel a baissé jusqu'à environ 50 mK. A cause des pertes thermiques résiduelles le sel se réchauffe progressivement en suivant la courbe d'entropie pour $B=0.05$ tesla. On voit bien à ce stade que la désaimantation ne permet pas d'obtenir un refroidissement en continu, et que le temps d'utilisation est limité.

3-Propriétés des sels paramagnétiques

Les sels sont en général constitués d'ions venant du groupe du fer (chrome, manganèse) ou d'une terre rare comme le cérium. La contribution au moment magnétique vient du spin (le moment orbital est bloqué). Les moments sont peu couplés entre eux et se comportent comme des spins libres. Toutes les propriétés thermodynamiques (chaleur spécifique, entropie, susceptibilité) se calculent sans difficulté à partir des principes de base de la mécanique statistique. La susceptibilité χ obéit à une loi de Curie,

$$\chi = \frac{a}{T},$$

où a est la constante de Curie. La chaleur spécifique est donnée par :

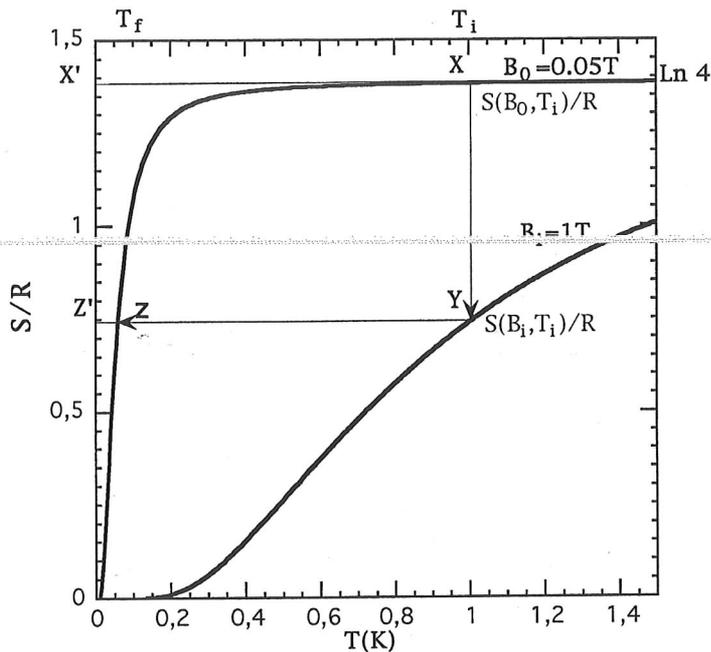


Figure 1: Courbes d'entropies pour l'alun de chrome potassium.

$$C_H(T, 0) = \frac{V}{T^2} (b + a H^2) ,$$

où b est le champ interne.

Le processus de désaimantation doit satisfaire la relation suivante:

$$dS = \left(\frac{\partial S}{\partial T} \right)_H dT + \left(\frac{\partial S}{\partial H} \right)_T dH = 0 ,$$

En utilisant les relations thermodynamique :

$$T \left(\frac{\partial S}{\partial T} \right)_H = C_H(T, H) , \text{ et}$$

$$\left(\frac{\partial S}{\partial H} \right)_T = V H \left(\frac{\partial \chi}{\partial T} \right)_H = - \frac{a V H}{T^2} ,$$

dS s'écrit:

$$dS = 0 = \frac{V}{T^3} (b + a H^2) dT - \frac{a V H}{T^2} dH , \text{ ce qui donne après intégration:}$$

$$\ln \frac{T_f}{T_i} = \frac{1}{2} \ln \frac{b + a H_f^2}{b + a H_i^2} , \text{ ou}$$

$$\frac{T_f}{T_i} = \left(\frac{b + aH_f^2}{b + aH_i^2} \right)^{\frac{1}{2}}$$

Cette dernière équation est d'un intérêt pratique fondamental, puisqu'elle relie les températures initiales et finales aux champs magnétiques initiaux et finaux. Elle n'est valable que dans le régime où $M = \chi H$, c'est-à-dire $\mu H/kT \gg 1$, où μ est le moment magnétique et k la constante de Boltzmann. Ces équations ne seront plus valables à très basse température et sous fort champ. Il faudra utiliser des expressions plus compliquées, faisant intervenir la fonction de Brillouin, mais les principes restent exactement les mêmes. La figure 2 montre les courbes d'entropie en champ nul pour différents sels.

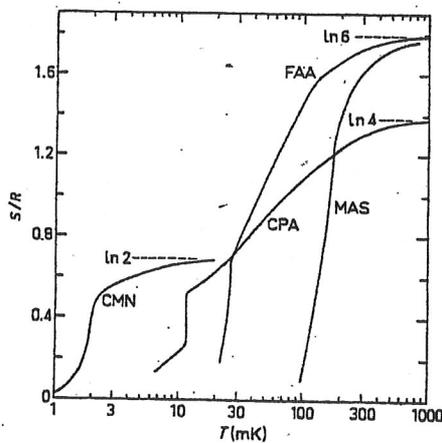


Figure 2: Courbes d'entropie pour l'alun de fer ammonium (FAA), le sulfate d'ammonium manganèse (MAS), l'alun de chrome potassium (CPA) et le nitrate de cérium magnésium.

On voit que, plus le spin est petit, et plus l'ordre magnétique apparaît à basse température. L'entropie disponible est, elle aussi, de plus en plus petite. Il existe donc un compromis entre température minimum et puissance disponible. C'est ce compromis qu'il faut optimiser quand on choisit un sel pour une application particulière. On peut très bien concevoir un RDA à deux étages comportant deux sels différents. La figure 3 peut être très utile pour concevoir un RDA à deux étages composés de FAA et CPA.

Le réseau cristallin sous-jacent a une contribution en général négligeable à la chaleur spécifique du sel. Cependant, il faut savoir que le réseau se met en équilibre très rapidement avec les spins. Ceci est important car ce sont les excitations thermiques du réseau (les phonons) qui transportent la chaleur rendue disponible par le sel désaimanté.

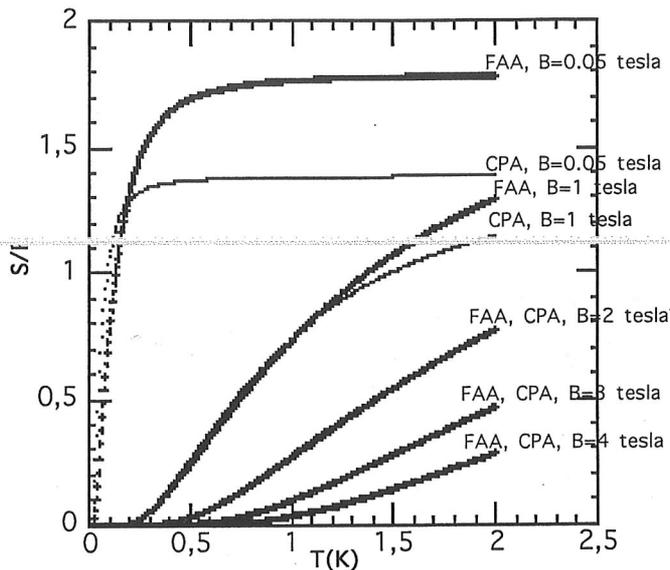


Figure 3 : Entropies du FAA et CPA.

4-Exemples de RDA.

4.1-Système classique

Le premier exemple est illustré sur la figure 4. C'est un appareil construit par D. Thoulouze⁵ au Centre de Recherches sur les Très Basses Températures. Il comporte deux étages montés en cascade et couplés à l'aide d'un interrupteur thermique supraconducteur en étain. Le premier étage est constitué de 0.55 ion gramme d'alun de fer ammonium (FAA). Il est couplé à l'échangeur par un interrupteur supraconducteur en plomb. Le deuxième est un alun de chrome potassium (CPA) de 0.11 ion gramme. Les deux sels sont pré-refroidis par une circulation d'hélium à 1.3 K. Les sels sont aimantés à l'aide de deux bobines supraconductrices différentes. Le FAA est désaimanté en premier et pré-refroidit le CPA. Il joue aussi le rôle d'un sel de garde qui absorbe une partie des pertes parasites. Les deux sels sont isolés à l'aide de l'interrupteur, et le CPA est désaimanté à son tour. La température minimale est de 20 mK.

Les sels étant de mauvais conducteurs thermiques, ils sont cristallisés sur une tresse de plusieurs milliers de fils d'argent (le cuivre étant attaqué par la solution pour la cristallisation) de 0.1 mm de diamètre. Le rajout d'une masse métallique à l'intérieur du sel introduit des pertes thermiques supplémentaires qui apparaissent au cours de la désaimantation à cause des courants induits par la variation de champ (courants de Foucault). Ces pertes sont proportionnelles à la vitesse de descente du champ, et sont données pour un fil cylindrique par :

$$P = \frac{\pi L R^4 \dot{B}^2}{8\rho}$$

où L est la longueur du fil R le rayon, ρ la résistivité, et B le champ.

Dans cet appareil, la thermométrie est aussi assurée par un sel paramagnétique : le nitrate de cérium magnésium (CMN). Il s'agit là d'une application très répandue des sels, et notamment du CMN. Ce sel permet non seulement d'atteindre les plus basses températures par désaimantation (2

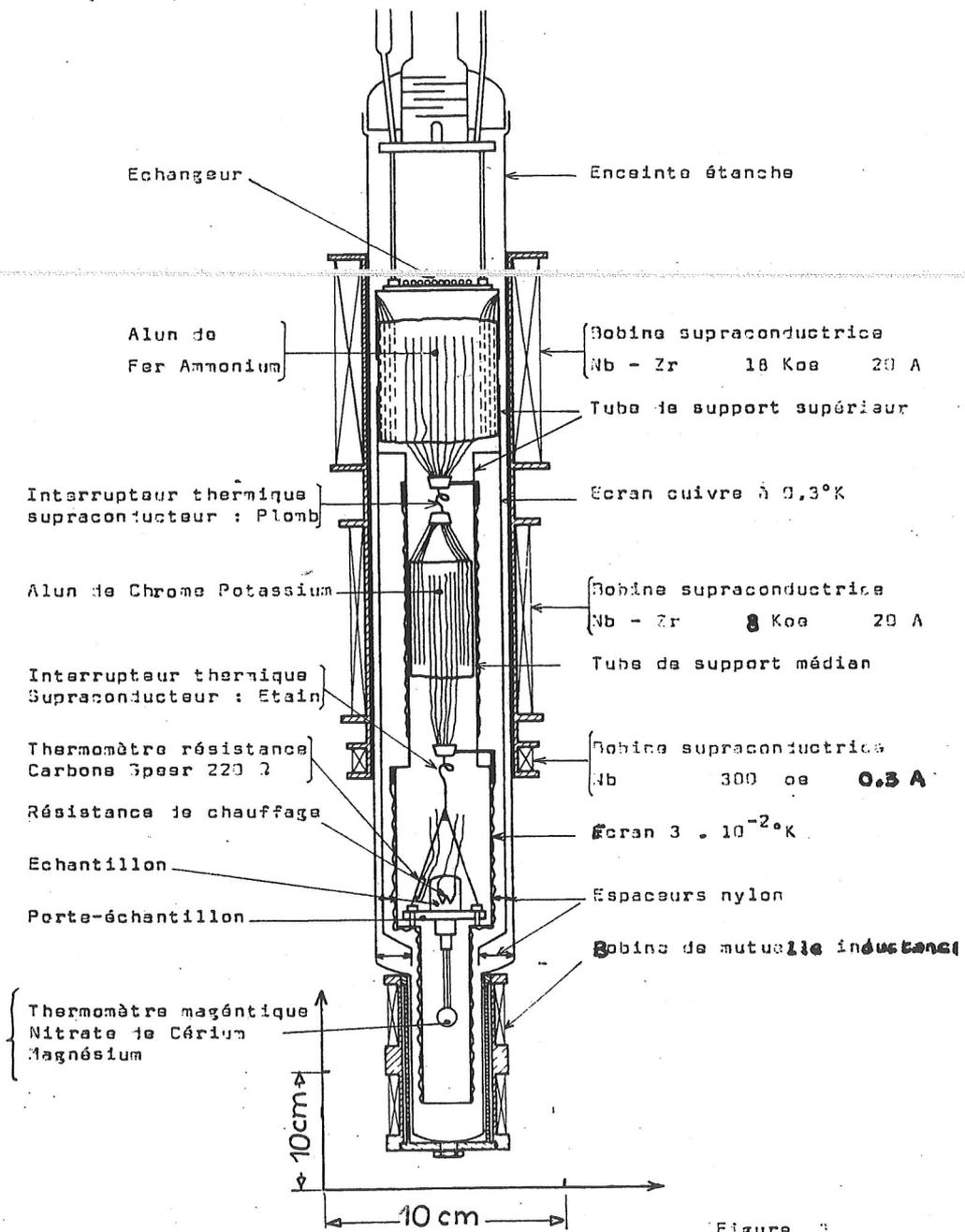


Figure 3

Figure 4 : Cryostat RDA construit par D. Thoulouze au CRTBT

mK), mais sert aussi de thermomètre à cause de la linéarité en $1/T$ de la susceptibilité dans une grande gamme de température.

4.2 - Application pour la recherche spatiale

Le RDA présente certains avantages par rapport aux autres techniques pour les applications spatiales. Le plus évident est qu'il peut se passer des fluides utilisés en cryogénie (azote, hélium), l'autre est qu'il fonctionne naturellement en gravité nulle. On trouve dans la littérature⁶⁻¹⁰ des projets élaborés (essentiellement américains), destinés à voler dans un avenir proche. Récemment, l'agence spatiale européenne (ESA) a lancé un appel d'offre pour la construction d'un RDA pouvant fonctionner à 10 mK avec une forte puissance, pour pouvoir encaisser des pertes importantes (10 μ W). On trouve également, depuis quelques mois, un RDA au catalogue d'un grand fabricant de matériels de cryogénie.

Les RDA destinés à être embarqués dans les ballons ou les satellites bénéficient de tous les progrès de la technologie. En ce qui concerne les aimants supraconducteurs, ils fournissent aujourd'hui des forts champs pour des faibles courants. Bobinés avec du fil multi filamentaire, ils permettent d'obtenir typiquement 1 tesla par ampère dans de l'hélium à 1.3 K¹⁰. Un point sensible des RDA repose sur la qualité de l'interrupteur thermique. Les solutions mécaniques développées ces dernières années se sont montrées très efficaces en termes de rapidité de couplage, minimisant les apports de chaleur et permettant un asservissement facile. Une autre solution, comme l'interrupteur à gaz est aussi très compétitive, mais de mise en œuvre plus compliquée. Le sel doit être suspendu rigidement dans la boîte à vide ou le calorimètre, tout en minimisant les apports de chaleur. Les suspensions réalisées avec des cordes de Kevlar donnent des résultats très satisfaisants. Des sels plus résistants à la déshydratation, notamment à haute température comme l'alun de chrome césium (CPA) ont été élaborés.

A la figure 4 nous avons reproduit le schéma d'un appareil destiné à être embarqué⁸. Il s'agit d'un RDA très compact, composé d'un grenat de gadolinium (GGG) et d'un sel, le CCA (alun de chrome césium). Ils sont désaimantés ensemble dans le même aimant depuis 4.2 K. Ils sont aussi raccordés ensemble au bain d'hélium par le même interrupteur. Le GGG va atteindre rapidement sa température d'ordre (T autour de 1 K), et sert de sel de garde. Le CCA va atteindre une température beaucoup plus basse ($T=100$ mK). Les courbes d'entropie de ces deux matériaux sont représentées à la figure 5.

5 Désaimantation nucléaire

Tout ce qui vient d'être dit sur la désaimantation des sels paramagnétiques peut être transposé à la désaimantation nucléaire. Les moments magnétiques nucléaire ont un comportement paramagnétique jusqu'à une température extrêmement basse, voisine de la température d'ordre ($T = 60$ nK pour le cuivre). Ils sont donc parfaitement adaptés au refroidissement magnétique pourvu qu'on puisse les polariser. En fait, une polarisation de l'ordre de 10% est suffisante. Elle peut être obtenue, par exemple, à une température de 10 mK et un champ de 8 teslas. Le cuivre possède le meilleur compromis entre les différentes qualités (moment, conduction thermique, pureté, etc.) pour être quasiment universellement employé comme matériau de désaimantation. Les courbes d'entropie en fonction de la température pour différents champs appliqués sont reportés à la figure 7. C'est grâce à cette technique qu'on a pu découvrir la superfluidité de l'³He liquide ($T_c=2.49$ mK), l'ordre magnétique nucléaire dans l'³He solide ($T_N = 0.97$ mK), ainsi que les ordres magnétiques dans les métaux, cuivre et argent ($T_N = 2$ nK).

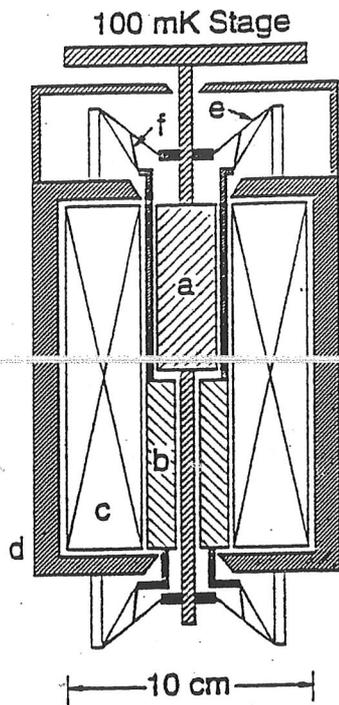


Figure 5: RDA pour applications astrophysiques construit par C. Hagmann et P.L. Richards.

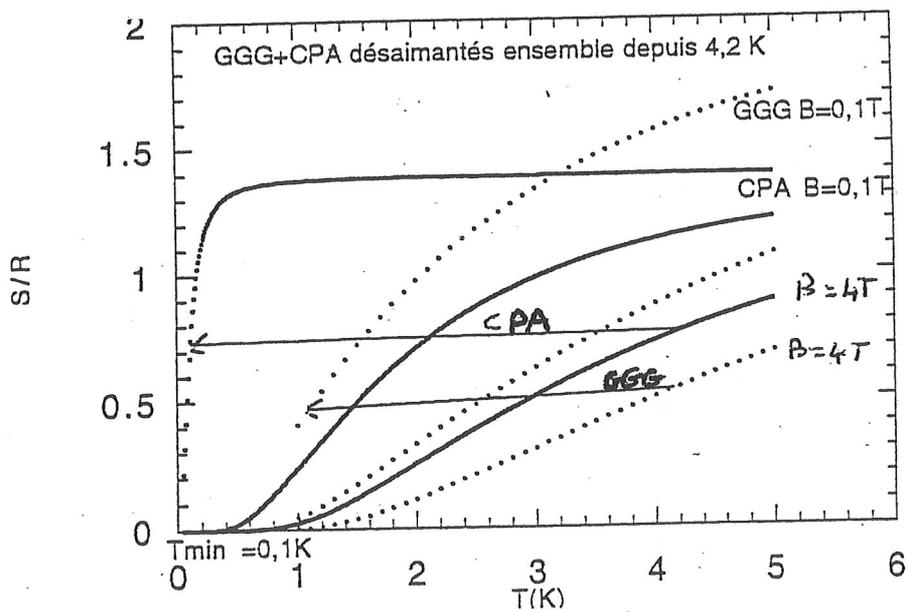


Figure 6: Entropie du CPA ou CCA et GGG

Il faut signaler qu'il existe une autre classe de matériaux avec lesquels on peut faire de la désaimantation. Ces matériaux ont une susceptibilité renforcée par couplage hyperfin. Le PrNi_5 (praséodyme, nickel) fait partie de cette famille et présente toujours un réel intérêt pour travailler entre 1 mK et 10 mK.

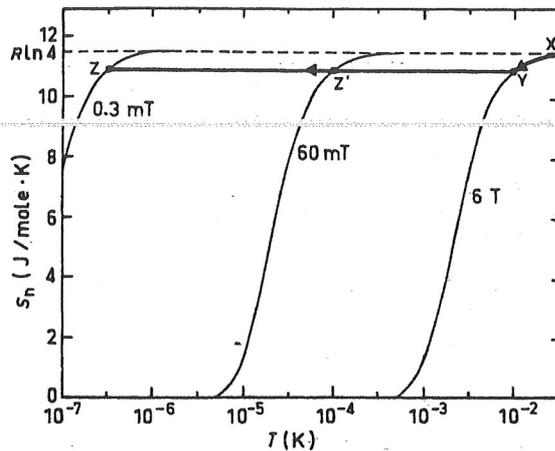


Figure 7: Entropie des spins nucléaires du cuivre

Bibliographie.

- 1- Physique statistique, Landau et Lifshitz.
- 2- Fundamentals of statistical and thermal physics, F. Reif.
- 3- O.V. Lounasmaa: Experimental principle and techniques below 1 K.
- 4- G.K. White: Experimental Techniques in low temperature physics. Editeur Oxford.
- 5- D. Thoulouze, thèse Grenoble. Mesure de chaleur spécifique nucléaire de métaux et alliages à partir de 0,02 K.
- 6- Development of an adiabatic demagnetization refrigerator for SIRTf. P.T. Timbie, G.M. Bernstein and P.L. Richards, *Cryogenics* **30**, 271, (1990).
- 7- Design of a spaceworthy adiabatic demagnetization refrigerator. A.T Serlemitsos, M. SanSebastian and E. Kunes, *Cryogenics* **32**, 117, (1992).
- 8- A two-stage magnetic refrigerator for astronomical application with reservoir temperature above 4 K. C. Hagmann and P.L. Richards, *Cryogenics* **34**, 221, (1994).
- 9- Paramagnetic salt pill design for magnetic refrigerators used in space applications. C. Hagmann, D.J. Benford, and P.L. Richards, *Cryogenics* **34**, 213, (1994).
- 10- The X-ray spectroscopometer (XRS): a multi-stage cryogenic instrument for the Astro-E X-ray astrophysics mission. S.M. Voltz, K. Mitsuda, H. Inoue, Y. Ogarawa, M. Hirabayashi and M. Koya, *Cryogenics*, **36**, 763, (1996).

3T → 1A.

Bohm 5.