Cryostat à température variable entre 1 et 300 °K pour diffraction de neutrons

M. Sougi

► To cite this version:

M. Sougi. Cryostat à température variable entre 1 et 300 °K pour diffraction de neutrons. Revue de Physique Appliquée, 1972, 7 (1), pp.29-34. 10.1051/rphysap:019720070102900 . jpa-00243592

HAL Id: jpa-00243592

<https://hal.science/jpa-00243592>

Submitted on 1 Jan 1972

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

CRYOSTAT A TEMPÉRATURE VARIABLE ENTRE 1 ET 300 °K POUR DIFFRACTION DE NEUTRONS

M. SOUGI

Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique
Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, BP n° 2, 91, Gif-sur-Yvette

(Reçu le 6 décembre 1971)

Résumé. — On décrit un cryostat destiné à la diffraction de neutrons à des températures stables comprises entre 1 et 300 °K, éventuellement sous champ magnétique. L'autonomie de fonctionnement exigée par ce type d'expériences est obtenue au moyen d'une conductance thermique très faible entre la résistance de chauffage de l'échantillon et la source froide (hélium liquide). Toutefois les échanges thermiques entre l'échantillon et la source froide peuvent être contrôlés en agissant sur le vide d'isolement au moyen d'un dispositif à charbon actif.

Abstract. — We describe a cryostat designed for neutron diffraction work at stable temperatures from 1 to 300 °K which can be used in a magnetic field. The long time needed for these types of experiments is obtained from a very low thermal conductance between the resistor sample-heater and the cold source (liquid helium). Nevertheless thermal exchange between the sample and the cold source may be controlled by a charcoal device acting on the insulation vacuum.

I. Introduction. — Pour porter un échantillon à une température comprise entre 4,2 et 300 °K, il suffit de placer celui-ci dans une enceinte à vide immergée dans l'hélium liquide ; l'échantillon est alors relié au bain par une conductance thermique lui apportant une certaine puissance frigorifique. Il est alors possible d'obtenir la température désirée par chauffage de l'échantillon.

Par ailleurs on sait que la réduction de pression au-dessus d'un liquide produit l'abaissement de la température du liquide. Pour obtenir une température de l'échantillon inférieure à 4,2 °K, il suffit pour un échantillon en contact thermique avec l'hélium liquide de faire varier la pression au-dessus du bain.

Nous avons construit un ensemble cryogénique qui utilise les deux méthodes ci-dessus et qui présente les caractéristiques suivantes :

- 1) Possibilité de couvrir toute la gamme de température de 1 °K à 300 °K avec le même échantillon ;
- 2) Stabilité et homogénéité de la température de l'échantillon inférieures à 0,1 °K ;
- 3) Utilisation de deux conductances thermiques en parallèle :

a) celle constituée par les tubes en acier inoxydable auxquels est suspendu l'échantillon (conductance faible et approximativement proportionnelle à la température de l'échantillon),

b) celle donnée par la conductance d'un gaz d'échange (hélium) dont la pression peut atteindre quelque 10^{-1} torr en dissipant 0,1 W environ dans un dispositif à charbon actif. (En supprimant ce

chauffage la pression tombe à une valeur inférieure à 10^{-6} torr et la conductance devient nulle.) Toutefois ce dispositif ne permet pas de suivre un programme automatique d'abaissement de température.

4) Autonomie minimum d'une vingtaine d'heures sans apport complémentaire d'hélium liquide après le remplissage initial ;

5) Volume expérimental de l'ordre du cm^3 ;

6) Possibilité d'être utilisé à la manière d'un cryostat à hélium liquide classique une fois ôté le dispositif à température variable ;

7) Changement d'échantillon nécessitant un minimum d'opérations sans démontage ni réchauffement du cryostat ;

8) Possibilité d'appliquer un champ magnétique parallèlement ou perpendiculairement à l'axe des queues du cryostat.

II. Description de réalisation et l'appareillage. — L'ensemble cryogénique peut se décomposer en 2 sous-ensembles (Fig. 1).

II.1 CRYOSTAT A HÉLIUM LIQUIDE. — Il est entièrement métallique et à garde d'azote liquide. Le diamètre intérieur du col du réservoir d'hélium est de 25 mm et l'épaisseur du tube en acier inoxydable constituant le col de 0,5 mm. Les capacités respectives des réservoirs d'hélium et d'azote liquide sont de 3 et 5 l.

Les queues raccordées au corps du cryostat sont démontables de manière à pouvoir les adapter aux exigences particulières des expériences de diffraction

FIG. 1.

de neutrons [1], [2]. L'utilisation d'un électro-aimant dont le champ magnétique au niveau de l'échantillon peut être parallèle ou perpendiculaire à l'axe des queues impose à celles-ci un diamètre réduit (18 mm maximum) et une grande longueur (environ 400 mm sous brides). Dans la partie exposée au faisceau de neutrons l'épaisseur du tube constituant chacune des queues est de 0,25 mm. Les queues intérieure et extérieure sont en acier inoxydable amagnétique. Leur fixation sur le corps du cryostat doit être étanche. Ceci est réalisé par l'écrasement entre brides boulonnées d'un joint torique en perbunan pour la queue externe et d'un joint mince en téflon pour la queue interne. La queue écran en cuivre n'exigeant pas d'étanchéité mais un bon contact thermique avec la bride à 77 °K, les faces en contact des brides sont « indiumées » et pressées fortement ensemble par boulonnage. La partie la plus délicate du montage consiste à centrer et aligner les queues les unes par rapport aux autres, le centrage des fonds étant réalisé par des espaceurs en nylon.

II.2 ANTICRYOSTAT A TEMPÉRATURE VARIABLE. — (Fig. 2). — Il se compose de trois parties principales :

II.2a *Enceinte à vide*. — Entièrement en acier inoxydable, elle est de plus démontable pour permettre le changement d'échantillon. Sa fixation, étanche, sur une bride solidaire du reste de l'anticryostat est réalisée par soudage à l'alliage de Wood. Cette soudure dont la température de fusion est d'environ 65 °C évite un trop fort échauffement des éléments qui sont fixés sous la bride. Le tube constituant la partie inférieure de l'enceinte à vide pénètre jusqu'au fond de la queue interne du cryostat.

FIG. 2.

II.2b *Réservoir secondaire à hélium liquide*. — Il est situé à l'intérieur de l'enceinte à vide, également en acier inoxydable, de faible capacité (20 cm³) et son remplissage est effectué par l'intermédiaire d'une vanne aiguille immergée dans l'hélium liquide du cryostat. Le tube constituant la partie inférieure du réservoir secondaire descend dans l'enceinte à vide jusqu'à un embout en cuivre sur lequel il est brasé à l'argent. Sur cet embout est bobiné la résistance chauffante du porte-échantillon et un logement est prévu pour le bloc de cuivre dans lequel sont noyées les résistances thermométriques. Le démontage du bloc qui est fixé par des vis permet d'éviter de chauffer les résistances de carbone pendant la soudure du porte-échantillon sur l'embout. La résistance chauffante est en fil de manganine (86 Cu 12 Mn 2 Ni) de 0,1 mm de diamètre, isolé par de la soie. La résistance électrique du bobinage est de 37 Ω à la température ambiante. Le collage assurant le contact thermique avec leur support du fil résistant et des thermomètres est réalisé avec un vernis « basse température » ⁽¹⁾.

II.2c *Porte-échantillon*. — Il est constitué d'un tube en cuivre à fond plein. Ce porte-échantillon contient la poudre ou le monocristal à étudier et son ajustement

⁽¹⁾ General Electric 7031.

sur l'embout du réservoir secondaire assure le centrage et l'alignement de ces deux éléments. La fixation, étanche, du porte-échantillon sur l'embout du réservoir secondaire est réalisée par soudage à l'indium (température de fusion : 155 °C). La hauteur d'échantillon exposée dans le faisceau de neutrons est de 5 cm, ce qui correspond à un volume irradié de 1,4 cm³. Une fine tige en acier inoxydable brasée à l'argent sur le fond du porte-échantillon, centrée et alignée avec lui, pénètre dans un espaceur en nylon disposé au fond de l'enceinte à vide. Ce système permet le centrage du porte-échantillon au fond de l'enceinte à vide lors du montage de cette dernière sur sa bride.

Ces trois parties communiquent avec l'extérieur du cryostat par trois canalisations qui remontent dans le col du cryostat et aboutissent à des vannes d'isolement après avoir traversé le chapeau de l'anticryostat. Ce dernier coiffe l'entrée du col du cryostat en ne laissant sortir par un tube que les vapeurs d'hélium allant à la récupération. Les éléments suivants traversent également le chapeau de l'anticryostat : un tube de guidage du siphon de transfert de l'hélium liquide, un tube de guidage d'une jauge de niveau d'hélium liquide et la commande de la vanne aiguille immergée. Toutes les canalisations sont en acier inoxydable à paroi de 0,25 mm d'épaisseur donnant à l'ensemble une forte résistance thermique dans le col du cryostat. Quelques écrans à radiation en cuivre sont soudés sur les tubes à une cote où la température dans le col est de l'ordre de 77 °K. A leur sortie sur le chapeau de l'anticryostat et avant les vannes d'isolement on dispose sur la canalisation venant du réservoir secondaire d'un piquage de prise de pression et sur celle venant de l'enceinte à vide d'un passage isolé étanche pour les liaisons électriques. Tous les conducteurs électriques passent par conséquent à l'intérieur de l'enceinte à vide. Depuis le passage étanche ils descendent jusqu'à une plaquette de jonction située en dessous de la bride de l'enceinte à vide d'où ils sont redistribués vers les résistances chauffantes et thermométriques. Ces fils en manganine isolée sont collés au vernis « basse température » ⁽¹⁾ de loin en loin à l'intérieur du tube de liaison de l'enceinte à vide avec l'extérieur et sur le réservoir secondaire ainsi que sur tout le périmètre de la boucle qu'ils forment sous la bride de l'enceinte à vide.

L'anticryostat ainsi réalisé forme un ensemble rigide de diamètre extérieur 24,5 mm permettant de l'introduire aisément par le col du cryostat.

III. Mesure de la température de l'échantillon. — Les températures inférieures à 4,2 °K sont déterminées

à partir de la tension de vapeur de l'hélium 4 remplissant le réservoir secondaire au moyen de manomètres à mercure et à phtalate de butyle et d'une jauge de Mac Léod. On utilise d'autre part comme thermomètre secondaire une résistance en carbone ⁽²⁾ de 10 Ω à 0 °C (0,1 W) dans le but de disposer, après étalonnage, à la fois d'une grandeur thermométrique plus facile à suivre que le niveau d'un manomètre hydrostatique et d'une mesure continue de température.

Les températures entre 4,2 et 20 °K environ sont mesurées à l'aide d'une résistance en carbone de 100 Ω à 0 °C (0,1 W) préalablement étalonnée. La résistance électrique de ces thermomètres varie rapidement avec la température en dessous de 20 °K et elle suit la loi

$$T = \frac{\text{Log } R}{(A + B \text{ Log } R)^2} \quad [3]$$

Les 2 constantes *A* et *B* sont déterminées par étalonnage de la résistance aux températures de l'hélium et de l'hydrogène liquide. Les résistances carbone ne présentent qu'une fidélité médiocre après passage à la température ambiante ; nous les avons vieillies artificiellement pour stabiliser leurs caractéristiques en les cyclant une centaine de fois entre la température ambiante et 4,2 °K. De dimensions réduites (Ø 1,6 mm, longueur 4 mm), elles peuvent être aisément insérées dans notre montage.

Les températures supérieures à 20 °K sont mesurées par 2 résistances en platine ⁽³⁾ montées en série, de 100 Ω à 0 °C chacune. Nous avons contrôlé leurs courbes d'étalonnage aux températures de la glace fondante, de l'oxygène liquide et de l'hydrogène liquide. Le fil de platine est moulé dans une gaine de céramique de faibles dimensions (Ø 1,9 mm, longueur 12 mm).

Nous donnons ci-dessous un tableau des valeurs des résistances que prennent les capteurs thermométriques que nous avons utilisés à différentes températures. Le domaine d'utilisation de chacun d'eux est entouré d'un trait fort.

L'alimentation électrique de chaque résistance thermométrique se fait par trois conducteurs, supprimant ainsi toute erreur de mesure due à la résistance des fils de raccordement et l'effet de la variation de leur résistance due à la température.

La magnétorésistance des résistances en carbone, à température constante, varie linéairement avec le carré

⁽²⁾ Allen-Bradley Company.

⁽³⁾ DEGUSSA type W 60/50.

<i>T</i> (°K)	1	2	3	4,2	10	20,4	40	77,4	200	273
<i>R</i> (Ω) Carbone	900	175	88	57	18		12		10	
<i>R</i> (Ω) Carbone				1 324	401	224,5	125		100	
<i>R</i> (Ω) Platine					3	4	12,5	40,5	142	200

être réalisé sans retirer l'anticryostat au cas où le premier remplissage ne donnerait pas une autonomie suffisante.

L'adjonction de l'anticryostat augmente les pertes statiques à 4,2 °K de 40 %. Les pertes de l'ensemble sont à cette température de 12×10^{-3} W.

Ces opérations préliminaires terminées, on distingue alors 2 modes de fonctionnement pour obtenir des températures variables de l'échantillon.

IV.2 FONCTIONNEMENT ENTRE 4,2 ET 1 °K. — L'échantillon étant à 4,2 °K, on remplit le réservoir secondaire d'hélium liquide en ouvrant la vanne aiguille immergée dans l'hélium liquide du cryostat. Un groupe de pompage primaire constitué d'une pompe à palettes à un étage de débit nominal 25 m³/h et d'une robinetterie appropriée est connecté au réservoir secondaire et permet d'abaisser et de stabiliser la pression au-dessus du bain d'hélium liquide, cette pression servant à la mesure de la température. Le fond du réservoir secondaire ainsi que le porte-échantillon étant en cuivre, et l'échantillon sous He gazeux, la mesure de la température du liquide constitue une mesure de la température de l'échantillon. Le flux calorifique arrivant sur le réservoir secondaire et le porte-échantillon, qui conditionne la température minimum atteinte, est dû à plusieurs causes :

- 1) Conduction par le tube de pompage sur le réservoir secondaire.
- 2) Film super-fluide lorsque l'hélium est évaporé en dessous du point λ (2,17 °K).
- 3) Conduction par les conducteurs électriques.
- 4) Rayonnement.
- 5) Conduction par le gaz résiduel dans l'enceinte à vide.

Ces trois dernières causes apportent un flux calorifique négligeable. En effet, d'une part les fils électriques de faible diamètre sont en manganine (alliage peu conducteur de la chaleur) et le gradient de température entre leur point de collage sur la bride de l'enceinte à vide et sur le réservoir secondaire est $\Delta T/\Delta x \simeq 1,2$ °K/cm au maximum quand le réservoir secondaire est à 1 °K ; d'autre part l'enceinte à vide constituant une paroi à 4,2 °K, les pertes par rayonnement sont de l'ordre de 10^{-8} W et enfin la pompe à adsorption maintient une pression d'hélium résiduel inférieure à 10^{-6} torr dans l'enceinte à vide lorsqu'elle est à 4,2 °K.

Un calcul montre que les pertes à 1 °K par le film super-fluide sont environ 3 fois plus importantes que celles par conduction du tube de pompage de rapport $\frac{\text{longueur}}{\text{section}} = 65 \text{ cm}^{-1}$.

La quantité d'hélium 4 refoulée sur une cuve à eau est de un litre (TPN) par heure dans le cas de la température minimum atteinte, soit 1 °K. Ceci correspond à

un flux calorifique total de 10^{-3} W. Puisqu'environ le tiers de la masse initiale d'hélium liquide à 4,2 °K est nécessaire pour amener celui-ci à 1 °K, la masse d'hélium liquide résiduelle assure une autonomie, vérifiée par l'expérience, de 8 h. Quatre remplissages du réservoir secondaire peuvent être réalisés avant que le niveau d'hélium liquide du cryostat atteigne l'orifice d'admission de la vanne aiguille, ce qui donne une autonomie de 32 h à 1 °K sans apport complémentaire d'hélium liquide dans le cryostat.

IV.3 FONCTIONNEMENT ENTRE 4,2 ET 300 °K. — Dans ce mode de fonctionnement le réservoir secondaire est vide et le porte-échantillon se trouve relié à la source froide par le réservoir secondaire en acier inoxydable de grande résistance thermique de rapport $\frac{\text{longueur}}{\text{section}} = 850 \text{ cm}^{-1}$. Ceci permet d'obtenir des températures d'échantillon relativement élevées sans trop forte consommation d'hélium. La température de l'échantillon est réglée par la résistance chauffante intercalée entre le porte-échantillon et le réservoir secondaire. Un régulateur de température ⁽⁴⁾ compare à chaque instant le signal donné par le capteur thermométrique à variation de résistance, alimenté à courant constant par un oscillateur à basse fréquence, à une tension de consigne réglable. Le signal d'erreur amplifié subit une détection synchrone et après filtrage et correction commande un amplificateur de puissance fournissant le signal d'action à la résistance chauffante. Les performances du régulateur dépendent étroitement du pont de mesure des résistances thermométriques. Le régulateur utilisé permet l'emploi de résistances thermométriques à pentes positive (platine) et négative (carbone) ; la puissance calorifique dissipée dans celles-ci est très faible (10^{-8} W) ce qui élimine leur auto-échauffement. Le régulateur assure la stabilité de la température par une action proportionnelle, dérivée et intégrale, à $\pm 0,01$ °K. Avec les thermomètres utilisés et pour une résistance de consigne affichée sur le régulateur, la température de l'échantillon est déterminée à $\pm 0,1$ °K.

La figure 4 donne la consommation en hélium de l'ensemble cryogénique (courbe I) ainsi que la puissance calorifique dissipée dans la résistance chauffante (courbe II) en fonction de la température d'équilibre de l'échantillon. Les points expérimentaux ont été relevés pour un niveau d'hélium dans le cryostat plus bas que la bride de l'enceinte à vide, ce qui peut expliquer une consommation plus faible que celle attendue pour la puissance calorifique dissipée. En effet dans ces conditions expérimentales, une partie de la chaleur dissipée n'est pas intégralement transmise au liquide.

Lors d'une diminution de température de l'échan-

(4) ATNE (Application des techniques nouvelles en électronique).

FIG. 4.

tillon, la résistance thermique reliant le porte-échantillon à la source froide est diminuée par augmentation de la conduction gazeuse dans l'enceinte à vide par chauffage de la pompe à adsorption. Cette opération réduit considérablement le temps de changement de température.

D'après les consommations en hélium à différentes températures de l'échantillon et pour une quantité

d'hélium liquide disponible pour les variations thermiques de 2,8 l, les autonomies suivantes peuvent être espérées :

160 heures à	4,2 °K
150 heures à	40 °K
110 heures à	100 °K
80 heures à	150 °K
45 heures à	200 °K
25 heures à	250 °K.

Un gradient de température toujours inférieur à 0,1 °K sur toute la hauteur du porte-échantillon a été constaté au cours d'études effectuées entre 1 et 220 °K, par exemple dans le cas de $TbZn_2$ dont la structure magnétique change brusquement à 59,4 °K [6].

V Conclusion. — Nous avons mis au point un cryostat à température variable, de réalisation simple et économique répondant aux exigences spéciales de la diffraction des neutrons. Son fonctionnement satisfaisant a permis de mener à bien depuis deux ans l'étude de l'évolution thermique de plusieurs structures magnétiques [7], [8], [9].

Bibliographie

- [1] LEGER (L.), JAVELLAUD (J.), CARO (C.), GILGUY (R.), TESTARD (O.), Rapport CEA R. 3008, 1966.
- [2] MERIEL (P.) et TESTARD (O.), Rapport CEA R 2618, 1964.
- [3] MARKHAM (A. H.), NETZEL (R. G.), DILLINGER (J. R.), *Rev. Sci. Inst.*, 1957, **28**, 382.
- [4] CLEMENT (J. R.) et QUINELL (E. H.), *Rev. Sci. Inst.*, 1952, **23**, 213.
- [5] ROUBEAU (P.), DER NIGOHOSSIAN (G.) et AVENEL (O.), Colloque International « Vide et froid » SFITV Grenoble, 1969.
- [6] DEBRAY (D.), MERIEL (P.) et SOUGI (M.), Conference on Rare Earth and Actinides, Durham (England), 5-7 july 1971.
- [7] PLUMIER (R.) et SOUGI (M.), *Comptes rendus*, 1969, **268**, 1549.
- [8] HERPIN (P.), WHULER (A.), BOUCHER (B.) et SOUGI (M.), *Phys. Stat. Sol. (b)*, 1971, **44**, 71.
- [9] PLUMIER (R.) et SOUGI (M.), *Sol. State Comm.*, 1971, **9**, 413.