

PREMIER MINISTRE

**COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE**

6.1

**MESURE AUTOMATIQUE  
DES SUSCEPTIBILITES MAGNETIQUES  
DE 4°K A 1200°K**

*par*

*Georges RAPHAEL*

DIRECTION DES MATERIAUX  
ET DES COMBUSTIBLES NUCLEAIRES

Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses

Rapport CEA - R - 3722

**1969**

**SERVICE CENTRAL DE DOCUMENTATION DU C.E.A**

Ca

C.E.N-SACLAY B.P. n°2, 91-GIF-sur-YVETTE-France

CEA-R-3722 - RAPHAEL Georges

MESURE AUTOMATIQUE DES SUSCEPTIBILITES MAGNETIQUES DE 4 °K à 1200 °K

Sommaire. - Nous décrivons en détail un appareil permettant la mesure des susceptibilités magnétiques de 4 °K à 1200 °K par la méthode de FARADAY.

Quelques résultats préliminaires sur le platine et le titane montrent la précision et la sensibilité des mesures.

L'appareil a été adapté aux mesures sur les composés particulièrement dangereux du plutonium.

1969

36 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

---

CEA-R-3722 - RAPHAEL Georges

AUTOMATIC MAGNETIC SUSCEPTIBILITY MEASUREMENTS BETWEEN 4 °K AND 1200 °K

Summary. - We give a detailed description of a FARADAY magnetic susceptibility balance which operates from 4 °K to 1200 °K.

Some preliminary results on platinum and tantalum illustrate the precision and the sensitivity of the measurements.

The apparatus has been designed for measurements on the plutonium compounds which present severe health hazards.

1969

36 p.

---

Commissariat à l'Energie Atomique - France

A partir de 1968, les rapports CEA sont classés selon les catégories qui figurent dans le plan de classification ci-dessous et peuvent être obtenus soit en collections complètes, soit en collections partielles d'après ces catégories.

Ceux de nos correspondants qui reçoivent systématiquement nos rapports à titre d'échange, et qui sont intéressés par cette diffusion sélective, sont priés de se reporter à la lettre circulaire CENS/DOC/67/4690 du 20 décembre 1967 que nous leur avons adressée, et qui précise les conditions de diffusion.

A cette occasion nous rappelons que les rapports CEA sont également vendus au numéro par la Direction de la Documentation Française, 31, quai Voltaire, Paris 7<sup>e</sup>.

- Rapport CEA-R-3722 -

## PLAN DE CLASSIFICATION

1. APPLICATIONS INDUSTRIELLES DES ISOTOPES ET DES RAYONNEMENTS
2. BIOLOGIE ET MEDECINE
  2. 1 Biologie générale
  2. 2 Indicateurs nucléaires en biologie
  2. 3 Médecine du travail
  2. 4 Radiobiologie et Radioagronomie
  2. 5 Utilisation des techniques nucléaires en médecine
3. CHIMIE
  3. 1 Chimie générale
  3. 2 Chimie analytique
  3. 3 Procédés de séparation
  3. 4 Radiochimie
4. ETUDES DU DOMAINE DE L'ESPACE
5. GEOPHYSIQUE, GEOLOGIE, MINERALOGIE ET METEOROLOGIE
6. METAUX, CERAMIQUES ET AUTRES MATERIAUX
  6. 1 Fabrication, propriétés et structure des matériaux
  6. 2 Effets des rayonnements sur les matériaux
  6. 3 Corrosion
7. NEUTRONIQUE, PHYSIQUE ET TECHNOLOGIE DES REACTEURS
  7. 1 Neutronique et physique des réacteurs
  7. 2 Refroidissement, protection, contrôle et sécurité
  7. 3 Matériaux de structure et éléments classiques des réacteurs
8. PHYSIQUE
  8. 1 Accélérateurs
  8. 2 Electricité, électronique, détection des rayonnements
  8. 3 Physique des plasmas
  8. 4 Physique des états condensés de la matière
  8. 5 Physique corpusculaire à haute énergie
  8. 6 Physique nucléaire
  8. 7 Electronique quantique, lasers
9. PHYSIQUE THEORIQUE ET MATHEMATIQUES
10. PROTECTION ET CONTROLE DES RAYONNEMENTS. TRAITEMENT DES EFFLUENTS
  10. 1 Protection sanitaire
  10. 2 Contrôle des rayonnements
  10. 3 Traitement des effluents
11. SEPARATION DES ISOTOPES
12. TECHNIQUES
  12. 1 Mécanique des fluides - Techniques du vide
  12. 2 Techniques des températures extrêmes
  12. 3 Mécanique et outillage
13. UTILISATION ET DEVELOPPEMENT DE L'ENERGIE ATOMIQUE
  13. 1 Centres d'études nucléaires, laboratoires et usines
  13. 2 Divers (documentation, administration, législation, etc...)
14. ETUDES ECONOMIQUES ET PROGRAMMES

Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses  
Direction des Matériaux et des Combustibles Nucléaires  
Services des Eléments Combustibles au Plutonium  
et d'Etudes Radio-Métallurgiques  
Service du Plutonium  
Section d'Etudes des Céramiques à Base de Plutonium

MESURE AUTOMATIQUE  
DES SUSCEPTIBILITES MAGNETIQUES DE 4°K A 1200°K

par

Georges RAPHAEL

- Janvier 1969 -

Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du n° 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VII<sup>e</sup>.

The C.E.A. reports starting with n° 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VII<sup>e</sup>.

## TABLE DES MATIERES

	Pages
<b>INTRODUCTION . . . . .</b>	<b>1</b>
<b>I - RAPPEL DE QUELQUES DEFINITIONS . . . . .</b>	<b>2</b>
I.1 - Définition de la susceptibilité magnétique . . . . .	2
I.2 - Classification sommaire des corps d'après leur susceptibilité . . . . .	2
I.2.1 - Diamagnétiques . . . . .	2
I.2.2 - Paramagnétiques. . . . .	2
I.2.3 - Ferromagnétiques . . . . .	3
I.3 - Mesure de ces différentes susceptibilités. . . . .	3
I.3.1 - Méthode de Faraday . . . . .	3
I.3.2 - Différentes variables. . . . .	4
I.3.3 - Ordre de grandeur de la force à mesurer.	4
<b>II - DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE. . . . .</b>	<b>6</b>
II.1 - Schéma de principe . . . . .	6
II.2 - Description des divers constituants de l'appareillage . . . . .	7
II.2.1 - La balance . . . . .	7
II.2.2 - L'enregistreur . . . . .	9
II.2.3 - L'électroaimant et son alimentation. . .	10
II.2.4 - Comment faire varier la température. . .	10
1 - Basses températures. . . . .	10
1.1 - Le cryostat. . . . .	10
1.2 - Le four. . . . .	11
1.3 - Mesure des températures. . . . .	12

	Pages
2 - Hautes températures. . . . .	12
2.1 - Le four. . . . .	12
2.2 - Mesure des températures. . . . .	13
 III - MISE EN OEUVRE DE L'APPAREIL . . . . .	 14
III.1 - Description des différentes opérations . . . . .	14
III.2 - Le problème de la capsule pour les échantillons. .	15
 IV - PRECISION DONNEE PAR L'APPAREIL. . . . .	 17
IV.1 - Echantillon étalon . . . . .	17
IV.2 - Température. . . . .	17
IV.3 - Mesure des forces. . . . .	18
IV.4 - La capsule . . . . .	18
 V - QUELQUES RESULTATS . . . . .	 20
 VI - CONCLUSION . . . . .	 21

**MESURE AUTOMATIQUE  
DES SUSCEPTIBILITES MAGNETIQUES DE 4°K A 1200°K**

INTRODUCTION

Dans les laboratoires du CEN.FAR, nous avons entrepris l'étude du comportement magnétique de quelques composés d'uranium et de plutonium. Un certain nombre de mesures [1, 2, 3] ont déjà été faites à l'aide d'une balance de translation décrite par ailleurs [4, 11]. Les difficultés de réglage de ce dernier appareil nous ont conduit à construire un appareil différent, plus souple et plus robuste, sur lequel nous nous sommes attachés à rendre automatiques la plupart des opérations.

Pour mesurer les susceptibilités magnétiques, nous avons choisi la méthode de Faraday, ce qui nous impose de travailler sur des échantillons petits (1 cm de hauteur et 4 mm de diamètre) et de mesurer des forces relativement faibles. Nous avons aussi décidé de ne pas utiliser les techniques de boîtes à gants [5], classiques pour le plutonium et ses composés, ce qui nous impose, étant donné l'extrême toxicité des produits étudiés, de les enfermer dans une capsule parfaitement étanche.

La gamme des températures que nous avons décidé d'explorer s'étend de 4°K à 1200°K.

Après quelques rappels de définitions classiques sur le magnétisme, nous allons décrire le principe de notre appareil, les détails de ses différentes parties et quelques résultats illustrant ses possibilités.

## I - RAPPEL DE QUELQUES DEFINITIONS

### I-1. Définition de la susceptibilité magnétique.

Un corps quelconque, sous quelque état physique que ce soit, s'il est placé dans un champ magnétique  $\vec{H}$  acquiert une certaine aimantation ou intensité d'aimantation  $\vec{I}$  telle que :

$$\vec{I} = K \vec{H}$$

$K$  est la susceptibilité magnétique qui peut être rapportée, soit à l'unité de masse, soit à l'unité de volume. Dans le premier cas  $K = \chi$ , dans le second  $K = K_v$

### I-2. Classification sommaire des corps d'après leur susceptibilité.

#### I-2.1 - Diamagnétiques.

- Susceptibilité - négative
- petite  $\sim 10^{-6}$   $\mu_{\text{em}}/\text{g}$
  - pratiquement indépendante de la température.

#### I-2.2 - Paramagnétiques.

- Susceptibilité - positive
- faible  $\sim 10^{-6} - 10^{-4}$   $\mu_{\text{em}}/\text{g}$
  - indépendante du champ  $\vec{H}$
  - varie avec la température suivant une loi en  $\frac{1}{T}$  (paramagnétisme de Curie-Weiss)
  - est pratiquement indépendante de la température (paramagnétisme de Pauli des électrons de conduction d'un métal).

### I-2.3 - Ferromagnétiques.

Susceptibilité - positive

- très grande
- dépendante du champ
- dépendante de la température
- dépendante de l'histoire magnétique et thermique du corps.

### I-3. Mesure de ces différentes susceptibilités.

#### I-3.1 - Méthode de Faraday.

Considérons une substance de volume  $v$  et de susceptibilité  $K_v$  placée dans un champ magnétique d'intensité uniforme  $\vec{H}$ . Elle acquiert une certaine aimantation mais n'est soumise à aucune force. Plaçons là maintenant dans un champ non uniforme. Au point A le champ est  $\vec{H}$  et le gradient de champ  $\nabla \vec{H}$ . Si la substance est isotrope et non ferromagnétique, le travail qu'il faut fournir pour la placer dans le champ  $\vec{H}$  est :

$$W = - \int_V \left[ \int_0^H K_v H \, dH \right] \, dv$$

$$W = - \frac{1}{2} \int_V K_v H^2 \, dv$$

D'autre part, la force agissant sur cette substance est donnée par:

$$\vec{F} = - \nabla W$$

soit

$$\vec{F} = \frac{1}{2} \int_V K_v \nabla H^2 \, dv$$

Dans la méthode de Faraday, l'aimant employé est tel que  $\nabla H^2 = \text{cst}$  dans une région de l'espace situé entre ses pôles. Si la substance est placée dans cette région de l'espace et si elle est

astreinte à se déplacer dans une seule direction, la force devient :

$$\vec{F} = K_v \cdot v \cdot H \frac{\partial H}{\partial x}$$

Par définition :

$$K_v \cdot v = \chi \cdot m \quad \text{où } m \text{ est la masse de la substance.}$$

donc  $\vec{F} = \chi \cdot m \cdot H \frac{\partial H}{\partial x}$

### I-3.2 - Differentes variables.

- Le choix de la méthode de Faraday impose de mesurer une force F. Si la substance est placée dans une zone où  $H \frac{\partial H}{\partial x}$  est constante, la force d'origine magnétique ainsi créée est directement proportionnelle à la susceptibilité magnétique de la substance.

- La mesure de la force se fait avec une balance.

- La température varie entre les deux limites 4°K et 1200°K.

- Une valeur assez typique de  $H \frac{\partial H}{\partial x}$  pour l'aimant employé est  $1,5 \cdot 10^3 \text{ Oe}^2 \text{ cm}^{-1}$  dans un volume de l'ordre de  $1 \text{ cm}^3$ .

### I-3.3 - Ordre de grandeur de la force à mesurer.

Nous allons donner un ordre de grandeur de la valeur de la force F en choisissant comme exemple le dioxyde de plutonium  $\text{PuO}_2$ . La susceptibilité de  $\text{PuO}_2$  est de l'ordre de  $1,8 \cdot 10^{-6} \text{ uem/g}$ . Les masses d'oxyde étudiées sont de l'ordre de 0,250 g.

Dans ces conditions, la force est de l'ordre de :

$$F = 0,35 \times 1,8 \cdot 10^{-6} \times 1,5 \cdot 10^{-3} \sim 1 \text{ mg}$$

Si nous désirons mesurer cette force à 1 % près, nous devons disposer d'une balance capable de mesurer des poids de l'ordre du milligramme à quelques microgrammes près.

$\text{PuO}_2$  est un exemple de corps dont la susceptibilité magnétique est très faible. Certains corps que nous aurons à étudier peuvent avoir des susceptibilités bien plus fortes (1, 2, 3) et les forces dans ces cas-là peuvent être de l'ordre du gramme.

## II - DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE

### II-1. Schéma de principe.

Comme nous l'avons vu précédemment, le problème est ramené à la mesure de la force d'origine magnétique appliquée à un échantillon lorsque varient les deux paramètres :

- température
- $H \frac{dH}{dx}$

L'aimant est construit de façon à donner entre ses pôles un gradient de champ vertical.

Le schéma de principe de l'appareil est donné sur la figure 1. L'échantillon est suspendu à l'un des fléaux d'une balance, il est placé dans l'entrefer de l'aimant, dans la région du gradient de champ constant, à l'intérieur d'un cryostat (ou d'un four) qui permet de faire varier la température.

Une mesure de la force appliquée à l'échantillon en position dans l'entrefer à la température  $T$  est d'abord faite en l'absence de champ (c'est une mesure du poids de l'échantillon), puis en présence de champ (c'est la mesure des deux forces appliquées à l'échantillon).

La variation  $f$  de la force  $F$  nous permet en principe de calculer la susceptibilité par la formule :

$$\vec{f} = m \chi H \frac{\vec{dH}}{dx}$$

où  $\chi$  est la susceptibilité magnétique par gramme.

En fait, dans la pratique nous ne faisons pas de mesures absolues car  $H \frac{dH}{dx}$  est mal connu. Dans notre cas nous avons choisi de comparer la force d'origine magnétique exercée sur notre échantillon à celle exercée sur un morceau de platine très pur de susceptibilité magnétique connue par référence au sulfat de gadolinium anhydre.

### II-2. Description des divers constituants de l'appareillage.

#### II-2.1 - La balance.

Les forces à mesurer sont de l'ordre du milligramme au gramme, les plus faibles étant les plus fréquentes. La balance CAHN RG 19 que nous employons couvre cette plage, elle peut déceler des variations de force de l'ordre de  $10^{-7}$  g avec une portée maximale de 2 g.

La figure n° 2 donne le schéma de principe de la balance : un écran solidaire du fléau obstrue plus ou moins une fenêtre derrière laquelle est placée une cellule photoélectrique; lorsque la force  $F$  appliquée à l'autre fléau varie, l'écran se déplace et modifie l'éclairage de la cellule, faisant ainsi varier le courant qu'elle émet.

Ce courant est envoyé dans un amplificateur à deux étages, puis dans une bobine solidaire du fléau placée dans un champ magnétique. Les forces électromagnétiques induites tendent à ramener le fléau dans sa position d'équilibre.

A l'équilibre, le couple exercé par la force  $\vec{F}$  et le couple exercé par les forces électromagnétiques sont égaux. Comme la force électromagnétique et le courant dans la bobine sont proportionnels, il en résulte que le courant est proportionnel à la force  $\vec{F}$ . La mesure de la tension aux bornes de la bobine permet de connaître ce courant, donc cette force  $\vec{F}$ . En pratique, pour augmenter la précision et la sensibilité des mesures, seule une partie connue de cette tension est appliquée à un enregistreur très sensible.

Pour nos mesures, ce système est particulièrement intéressant, car seule la différence entre la force  $\vec{F}$  et le poids  $\vec{P}$  de l'échantillon (c'est-à-dire la force d'origine magnétique) nous intéresse. En ajustant convenablement la tension calibrée soustraite à la tension totale, ainsi que la sensibilité de l'enregistreur, la mesure de  $\vec{F} - \vec{P} = \vec{f}$  magnétique se fait directement avec la précision maximum.

Pour utiliser la sensibilité de la balance la meilleure, il est nécessaire de filtrer et d'atténuer la tension appliquée à l'enregistreur de façon à diminuer les fluctuations liées aux vibrations du système de mesure. Ce filtre est prévu par le constructeur de la balance (fig. 2).

Sur le schéma (fig. 2) nous voyons que trois boucles de suspension A, B, C, sont fixées sur le fléau. A et B servent à suspendre les échantillons, C les poids de tarage. Le système de pesée électromagnétique ne mesure réellement que la différence entre le couple des forces appliquées en A (ou B) et le couple des forces appliquées en C.

Les caractéristiques de la balance sont les suivantes :

	Boucle A	Boucle B
Capacité totale	1 g	2,5 g
Variation de force mesurable	200 mg	1.000 mg
Sensibilité	$10^{-7}$ g	$5 \times 10^{-7}$ g
Précision sur la force totale	$10^{-6}$ g	$5 \times 10^{-6}$ g
Précision sur $f$	$10^{-4}$ g	$10^{-4}$ g

Le corps de la balance est placé dans une enceinte à vide dont le plan est donné sur la figure 3. La mise en place de l'échantillon et le tarage se font par le hublot frontal. Les orifices latéraux permettent d'adapter les entrées pour le pompage, les passages de thermocouples et de courant.

#### II-2.2 - Enregistreur.

La variation de la force d'origine magnétique  $\vec{f}$  est enregistrée graphiquement. Nous avons employé un enregistreur Beckmann qui présente les caractéristiques suivantes :

- impédance d'entrée  $5.000 \Delta$  (ce qui correspond à l'impédance de sortie de la balance),
- temps de réponse 0,6 s à pleine échelle,
- 3 gammes de sensibilité calibrée 1 - 10 - 100 mV,
- 7 vitesses de déroulement de papier : 5", 2", 1", 0,5", 0,2", 0,1" par minute.

### II-2.3 - L'électroaimant et son alimentation.

La stabilité de l'électroaimant est prépondérante dans la précision des mesures. En effet, pour avoir des résultats reproductibles, il faut pouvoir reproduire très fidèlement un même champ et surtout une même quantité  $H \frac{dH}{dx}$ .

L'électroaimant Alpha 7500 que nous employons possède les caractéristiques suivantes :

- pôles à géométrie polygonale espacés de 1"3/8, soit 3,3 cm,
- champ maximum obtenu à 10 A : 7 k Oe
- $H \frac{dH}{dx}$  est constant sur un volume de 1 cm<sup>3</sup>.

L'alimentation de l'aimant est stabilisée et régulée, elle permet d'obtenir une stabilité de 0,01 %. La mise en place de l'échantillon dans le volume où  $H \frac{dH}{dx} = cst$  se fait uniquement en faisant varier la position de l'aimant. Il est mobile sur un rail dans le sens horizontal, et repose sur un piston commandé par un moteur qui permet de le positionner dans le sens vertical.

### II-2.4 - Comment faire varier la température.

#### 1 - Basses températures

##### 1.1 - Le cryostat

Pour les mesures de susceptibilité, il est intéressant d'obtenir des températures très basses, car à ces faibles températures il se passe souvent des phénomènes intéressants (ordre magnétique, influence très grande des impuretés magnétiques, etc...). Nous avons réussi à atteindre une température de l'ordre de 4°K en utilisant le cryostat représenté sur la figure 4.

- dans un premier réservoir isolé de l'extérieur par une enceinte où règne le vide, nous mettons de l'azote liquide, ce qui permet d'atteindre une température de 77°K;
- dans un deuxième réservoir plongeant dans le premier, mais séparé de celui-là par une enceinte où règne le vide, nous mettons de l'hélium liquide, ce qui permet d'atteindre une température de 4;2°K;
- il est possible de descendre à des températures plus basses et d'atteindre environ 3°K en pompant sur le réservoir d'hélium.

#### 1.2 - Le four.

Pour faire varier la température de 4°K à 300°K, nous avons adopté le dispositif suivant : l'échantillon est placé dans le cryostat à l'intérieur de deux tubes concentriques schématisés sur les figures 5 et 6.

- le premier sert simplement à isoler l'échantillon de l'hélium liquide;
- sur l'extrémité du second est placé un enroulement chauffant constitué par du fil de constantan gainé de soie et offrant une résistance électrique de 1100  $\Omega$ .

Les deux tubes sont en acier inoxydable, à l'exception de l'extrémité inférieure du tube intérieur qui est en cuivre, ce qui permet d'obtenir une température plus homogène dans la zone où se trouve l'échantillon.

L'alimentation du four est assurée par un rototransformateur. Pour obtenir une montée en température automatique, nous entraînons le

rototransformateur par un moteur électrique faisant un tour en 4 heures. Ce moteur est lui-même alimenté par un pulisseur permettant théoriquement de faire varier le temps de montée en température de 4 h à l'infini. La puissance totale à fournir pour atteindre la température ambiante est de quatre watts, ce que nous obtenons en affichant une ddp finale de 220 v.

#### 1.3 - Mesures des températures.

Les mesures de température se font à l'aide d'un thermocouple : or-fer, chromel. Ce thermocouple donne à la température de l'hélium liquide une variation de 15  $\mu$ v par degré  $\frac{1}{67}$ . La ddp fournie par le thermocouple est envoyée dans un potentiomètre enregistreur. Le schéma 6 montre la place du thermocouple par rapport à l'échantillon.

Le thermocouple et l'échantillon ne sont pas en contact, il faut vérifier s'ils ont tous les deux la même température. Pour cela nous avons remplacé l'échantillon par un autre thermocouple et fait un étalonnage à différentes températures. Nous n'avons pas observé de différences supérieures à 1 %. Si nous chauffons assez lentement, le thermocouple nous donnera la température de l'échantillon à moins de 1° près.

### 2 - Hautes températures.

#### 2.1 - Le four 25°C - 1200°C (figure 7)

Le four est constitué par un tube en acier inoxydable prolongé par une extrémité en inconel qui résiste à l'oxydation jusqu'à des températures de 1400°C. Sur cette extrémité en inconel est placé un enroulement chauffant d'une résistance de 40  $\Delta$  au mètre.

Cette résistance est isolée électriquement par une couche d'alumine, puis protégée par une gaine en inox; le tout est noyé dans un ciment, puis est revêtu d'un manchon en laine de quartz. Cet isolement thermique est excellent, il protège les pôles de l'aimant.

#### 2.2 - Mesure des températures.

La mesure des températures se fait à l'aide d'un thermocouple chromel-alumel relié à un enregistreur Mec. Le schéma n° 7 précise la place du thermocouple.

### III - MISE EN OEUVRE DE L'APPAREIL

#### III.1 - Description des différentes opérations.

Les opérations successives nécessaires avant toute mesure sont les suivantes :

- Réglage de la verticalité du cryostat ou du four.

Nous utilisons un fil à plomb spécial, dont la masselote est une petite ampoule électrique et dont le fil est double, en cuivre émaillé. Il est donc possible d'alimenter l'ampoule et ce fil à plomb, plongé dans le four, éclaire les parois du tube et permet un réglage facile et pratique de la verticalité.

- Réglage de la balance.
- Mise en place de l'échantillon.
- Réglage de la hauteur de l'aimant.

Pour avoir toujours le même gradient de champ pour une intensité donnée dans l'aimant, l'échantillon est placé dans une région telle que la force d'origine magnétique qui lui est appliquée soit maximum. Dans cette zone  $H \frac{dH}{dx}$  est constant. Nous voyons ici l'avantage d'avoir une balance de zéro car l'échantillon reste toujours à la même place pendant la manipulation.

- Pour des mesures entre 4°K et 300°K, il faut introduire une petite quantité d'hélium gazeux dans l'enceinte de mesure pour améliorer les échanges thermiques et remplir le cryostat d'azote.

- Pour les mesures à chaud, le four est constamment sous pompage secondaire pour éviter l'oxydation du container en titane. Pour plus de précautions nous avons placé une sécurité qui coupe le four lorsque le vide devient inférieur à  $10^{-5}$  Torr.

- Toutes ces opérations préliminaires étant terminées, le chauffage de l'enroulement chauffant (dans les mesures de 4°K à 300°K) ou le chauffage du four (dans les mesures de 300°K à 1200°K) sont mis en route. La température et le poids sont enregistrés. Le même "top" est marqué simultanément sur les deux enregistreurs à intervalles réguliers.

- Le principe de la manipulation est de mesurer des variations de force, c'est-à-dire la différence entre la force F (poids plus force d'origine magnétique) en présence de champ magnétique et la force due au poids de l'échantillon. Mais ce poids peut varier par suite de dépôt de molécules gazeuses sur le fil de suspension, d'une légère oxydation du container, de la variation de la poussée d'Archimède, etc... Pour parer à cet inconvénient, nous faisons alternativement un enregistrement sans champ et un enregistrement avec champ (figure 8). La coupure et la remise en route de l'aimant se font automatiquement à intervalles réguliers.

Dans ces conditions l'expérience peut se dérouler sans surveillance.

#### III.2 - Le problème de la capsule pour les échantillons.

Si le corps à étudier n'est ni oxydable, ni dangereux, ni radioactif,

l'échantillon à étudier est fixé à l'extrémité d'un fil de cuivre suspendu à l'une des boucles de la balance. Sinon, il faut placer l'échantillon dans une capsule et les difficultés à surmonter sont les suivantes :

Il faut trouver un matériau :

- léger,
- ayant une susceptibilité magnétique faible et constante,
- résistant aux basses et hautes températures,
- inattaquable chimiquement par l'échantillon.

Pour ces différentes raisons, nous avons choisi le titane. Les capsules ont la forme représentée par la figure 9. La fermeture étanche de ces capsules est assurée par un cordon de soudure à l'arc sous argon. Les capsules sont ensuite nettoyées soigneusement pour éliminer toute trace de particules radioactives.

Cette capsule répond à tous les critères précités, sauf un : sa susceptibilité magnétique est un peu forte et il a un changement de phase à  $880^{\circ}\text{C}$ . Nous avons essayé d'autres matériaux, en particulier le cuivre et le platine.

- Cas du cuivre : il a une susceptibilité magnétique faible, mais celle-ci n'est pas constante d'une capsule à une autre et de plus sa densité est deux fois plus forte que celle du titane.
- Cas du platine : il possède toutes les qualités précitées sauf une : sa densité est beaucoup trop élevée.

Pour toutes ces raisons, nous avons conservé le titane, mais le problème de la capsule reste posé.

#### IV - PRECISION DONNÉE PAR L'APPAREIL

L'appareil que nous venons de décrire sert à mesurer des susceptibilités magnétiques. La précision de cette mesure dépend des paramètres suivants :

- Connaissance de la susceptibilité magnétique de l'échantillon étalon,
- Mesure des températures,
- Mesure de la force d'origine magnétique,
- Susceptibilité magnétique du container.

Voyons maintenant séparément ces différentes causes d'erreur.

##### IV.1 - Echantillon étalon

L'échantillon étalon utilisé est un morceau de platine très pur dont la susceptibilité magnétique est égale à  $1,03 \cdot 10^{-6}$  uem avec une erreur relative de l'ordre de  $10^{-3}$  qui est négligeable devant les erreurs qui vont suivre.

Nous n'avons pas utilisé les étalons classiques, comme le sulfate de gadolinium anhydre, dont les susceptibilités magnétiques sont trop fortes.

##### IV.2 - Température

La précision sur la mesure des températures varie avec la

température. Elle est de l'ordre de 0,5° au voisinage des points fixes et diminue un peu au fur et à mesure que la température s'éloigne de ces points fixes (hélium, azote liquide et glace fondante). L'étalonnage des thermocouples se fait d'ailleurs à l'aide de ces trois points fixes.

#### IV.3 - Mesure des forces

L'erreur sur la mesure des forces peut provenir de deux sources :

- Reproductibilité des champs magnétiques créés par l'aimant.

Cette erreur est rendue négligeable par l'emploi d'une tension stabilisée au 1/10.000.

- Epaisseur du trait de plume sur le papier d'enregistrement.

En général, cette erreur reste inférieure à 0,5 %.

#### IV.4 - La capsule

La susceptibilité magnétique de l'échantillon est la différence entre la susceptibilité mesurée et la susceptibilité de la capsule :

$$m_1 \ X_1 = m_2 \ X_2 - m_3 \ X_3$$

m : masse

X : susceptibilité

1 : échantillon

2 : grandeur mesurée

3 : capsule

Or, la susceptibilité de la capsule  $m_3 \ X_3$  peut être grande et assez voisine de la susceptibilité mesurée, surtout pour des échantillons de masse  $m_2$  ou de susceptibilité magnétique  $X_2$  faibles. Dans ces conditions l'erreur relative sur  $X_1$  peut être importante.

V - QUELQUES RESULTATS

A titre d'exemples, nous présentons quelques mesures que nous avons faites sur  $\text{UO}_2$ , Pt, Ti et  $\text{PuO}_2$ .

-  $\text{UO}_{2,00}$  (fig. 10) est un corps paramagnétique assez fort qui suit la loi de Curie-Weiss et qui présente une transformation anti-ferromagnétique à basse température. Comparons nos résultats avec ceux de la bibliographie [77/87]

	Nos valeurs	Autres auteurs
Moment magnétique	3,28	3,20
Température de transition en °K	29°5	30°6

- Le platine (fig. 11) présente une susceptibilité magnétique indépendante de la température. La petite variation à basse température est due à des impuretés. Nous avons ici un moyen de contrôler la pureté de certains métaux.

- Le titane, comme nous l'avons vu précédemment, a une susceptibilité magnétique faible. Il présente un changement de phase à 882°C (fig. 12). Cette valeur correspond à celle de la bibliographie [97].

-  $\text{PuO}_2$  a une susceptibilité magnétique faible indépendante de la température [10] (fig. 13). Il représente un exemple spécifique des études que nous poursuivons au CEN.FAR.

VI - CONCLUSION

Cet appareil fonctionne maintenant depuis deux ans. Il nous a donné jusqu'à présent entière satisfaction.

Comme tout appareil de laboratoire il présente des points faibles :

- La capsule peut entraîner dans certains cas (susceptibilité magnétique faible) une erreur assez importante. Remarquons toutefois que ce problème n'existe que pour des échantillons radioactifs.

- Les changements du thermocouple et de l'enroulement chauffant dans l'appareil basse température sont assez délicats.

- L'appareil, s'il est très peu sensible aux vibrations verticales, est par contre assez sensible aux vibrations horizontales.

Mais, malgré ces quelques inconvénients, cet appareil donne toute satisfaction pour nos mesures de susceptibilité magnétique des composés de l'uranium et du plutonium. Nous soulignons quelques-unes de ses caractéristiques :

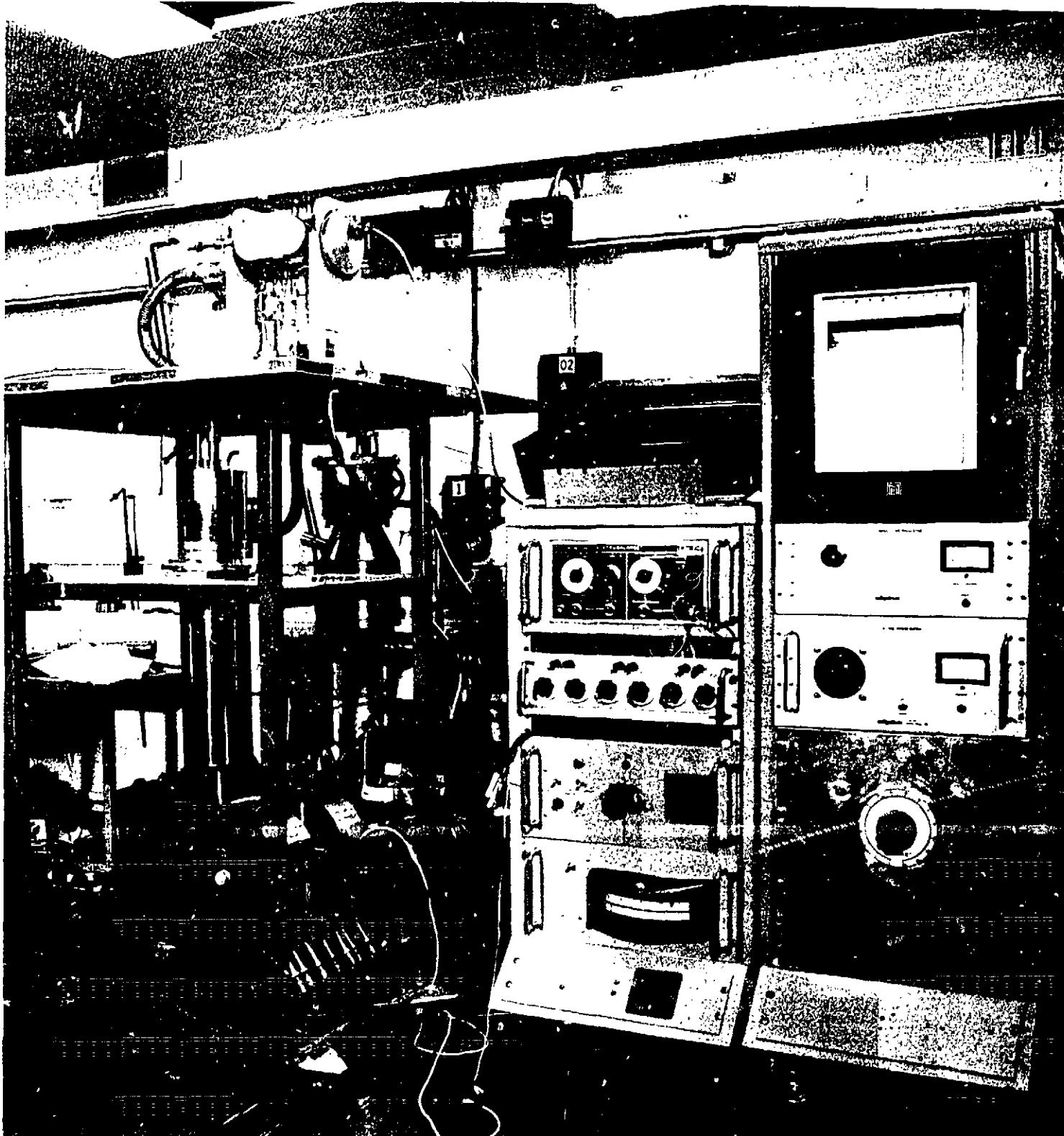
- il permet d'explorer une gamme de température assez étendue;
- il est assez robuste et donne une précision très acceptable, qui peut être améliorée suivant les échantillons étudiés;
- il fonctionne automatiquement et ne nécessite aucune surveillance;
- les dangers de contamination par les produits radioactifs sont réduits au maximum et sont pratiquement inexistantes.

LEGENDE DES FIGURES

- Fig. 1a - Vue générale  
Fig. 1b - Schéma de principe de l'appareillage  
Fig. 2 - Schéma de principe du corps de la balance  
Fig. 3 - Enceinte de la balance  
Fig. 4 - Cryostat  
Fig. 5 - Tube plongeant dans l'hélium  
Fig. 6 - Tube supportant l'enroulement chauffant  
Fig. 7 - Schéma du four  
Fig. 8 - Courbes d'enregistrement  
Fig. 9 - La capsule  
Fig. 10 - Susceptibilité magnétique de  $\text{UO}_2$  monocristallin  
Fig. 11 - Susceptibilité magnétique du platine  
Fig. 12 - Susceptibilité magnétique du titane  
Fig. 13 - Susceptibilité magnétique de  $\text{PuO}_2$

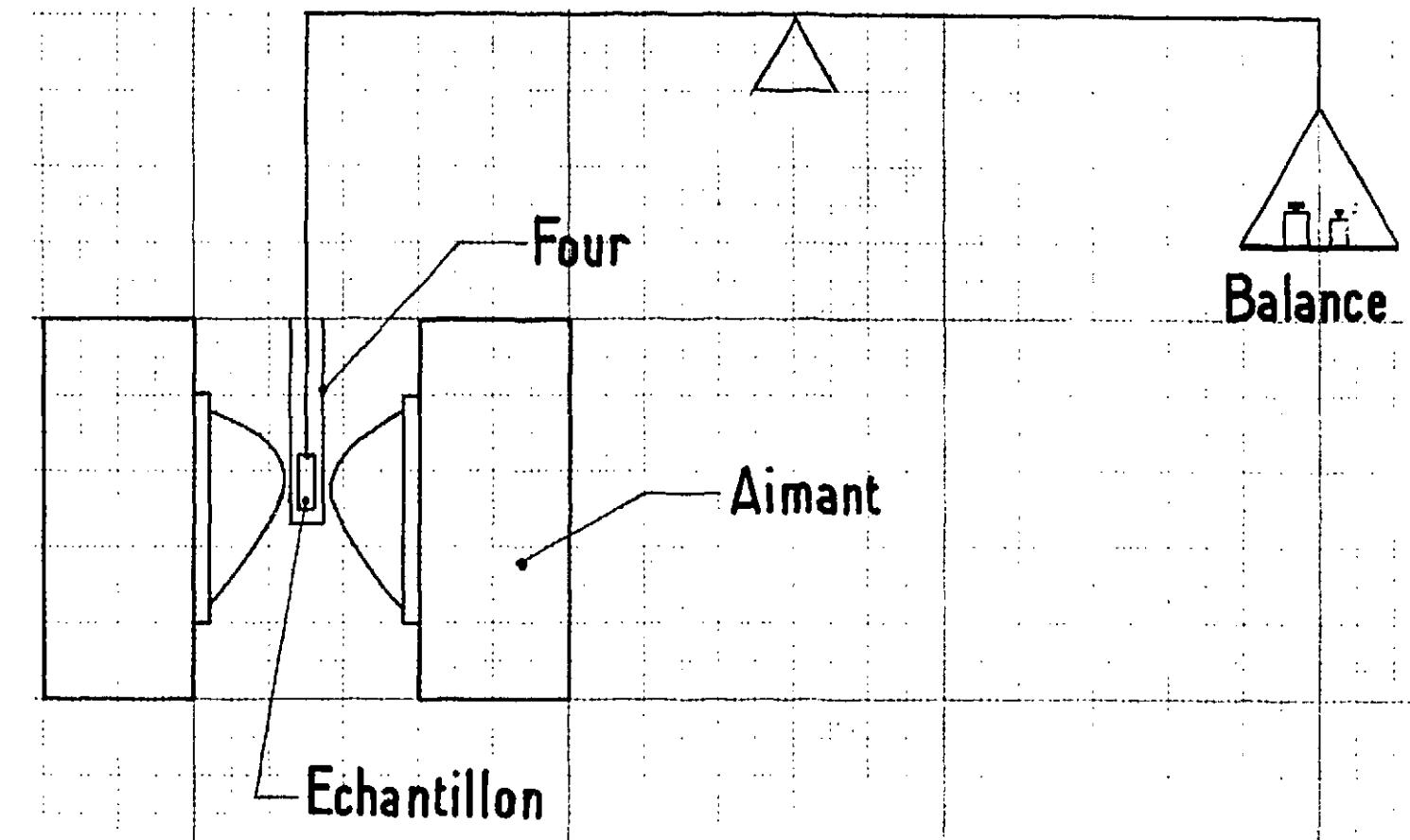
BIBLIOGRAPHIE

- L<sup>17</sup> P. COSTA et R. LALLEMENT  
J. Chem. Phys. Solids 25 559 (1964)  
L<sup>27</sup> C. de NOVION, P. COSTA et G. DEAN  
Physics Letters 19 455 (1965)  
L<sup>37</sup> R. LALLEMENT, P. COSTA et R. PASCARD  
J. Chem. Phys. Solids 26 1255 (1965)  
L<sup>47</sup> G. FOEX et R. FORRER  
J. de Phys. 7 180 (1926)  
L<sup>57</sup> E. GRISON et R. PASCARD  
Rapport CEA n° 809 (1958)  
L<sup>67</sup> J.T. SCHRIEMPF et A.I. SCHINDLER  
Cryogenics 5 174 (1965)  
L<sup>77</sup> M. JONES, J. GORDON and E.A. LONG  
J. Chem. Phys. 20 695 (1952)  
L<sup>87</sup> B.T.M. WILLIS et R.I. TAYLOR  
Phys. Letters 17 188 (1965)  
L<sup>97</sup> W.B. PEARSON  
Metal Physics and Physical Metallurgy Editor : G.V. RAYNOR  
4 872 (1958)  
L<sup>107</sup> G. RAPHAEL et R. LALLEMENT  
Solid State Communications 6, 383 (1968)  
L<sup>117</sup> A. BLAISE et M.A. PEUCH  
Rapport CEA n° 2187 (1962)

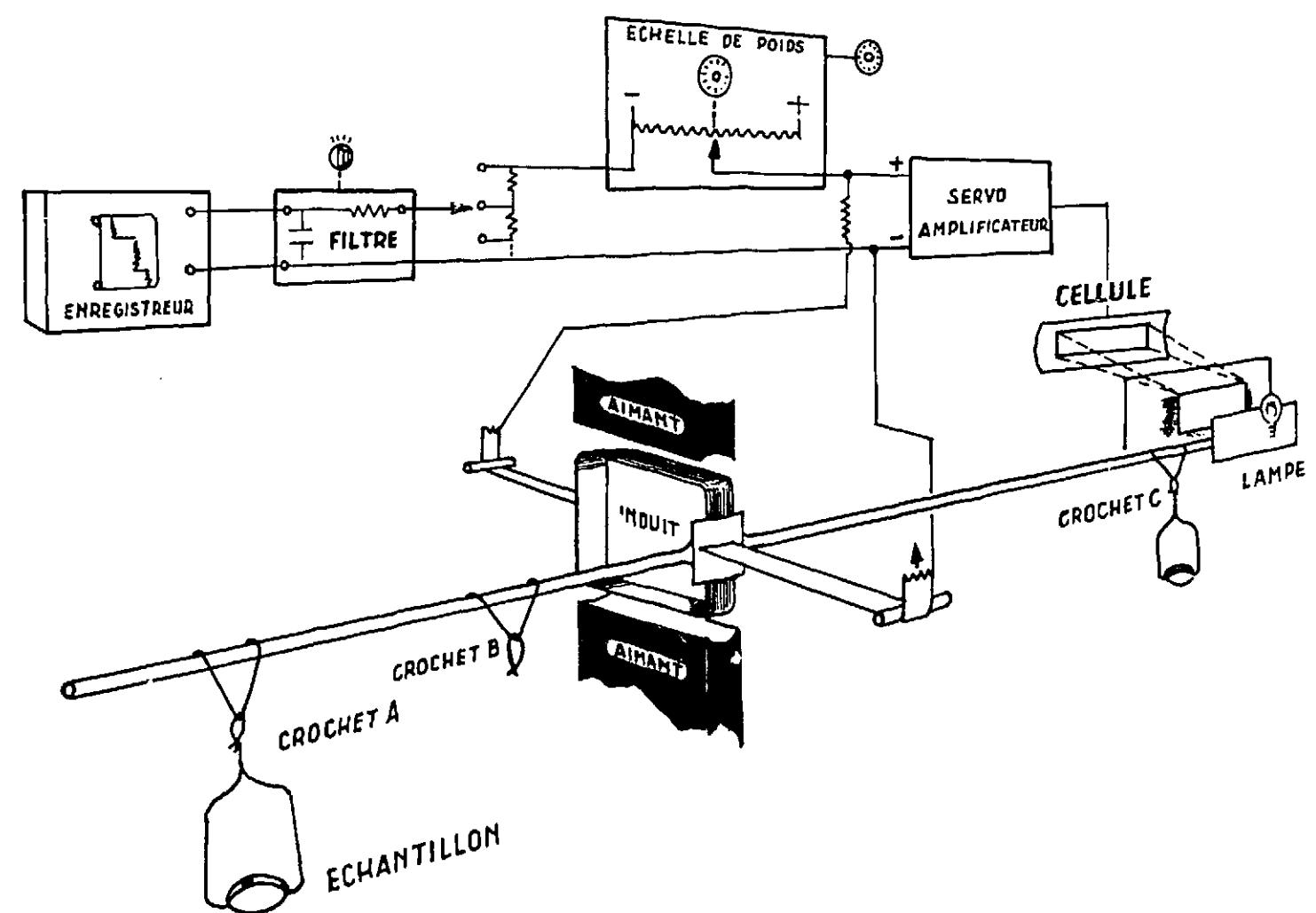


VUE GENERALE

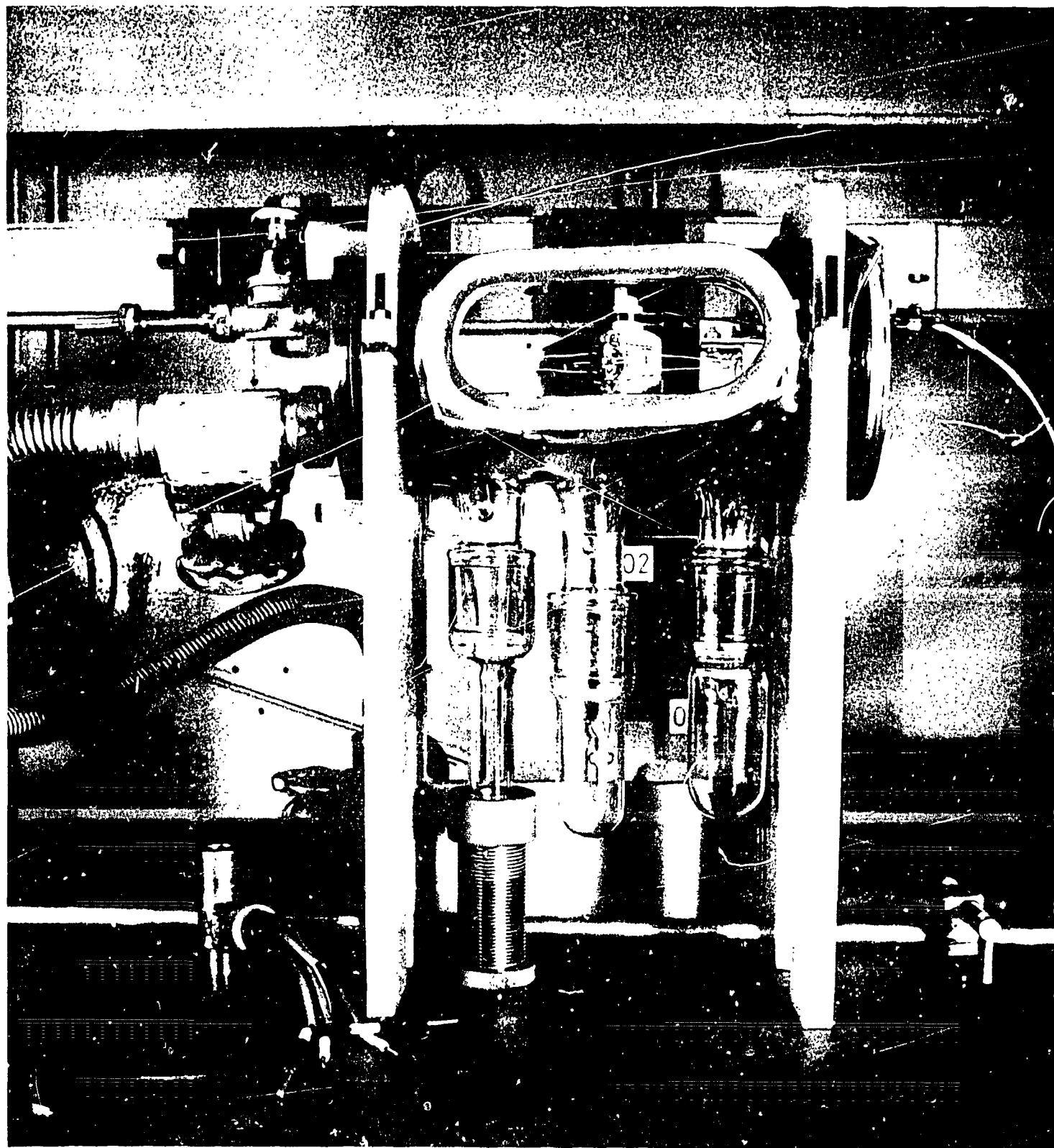
- Fig. 1 a -



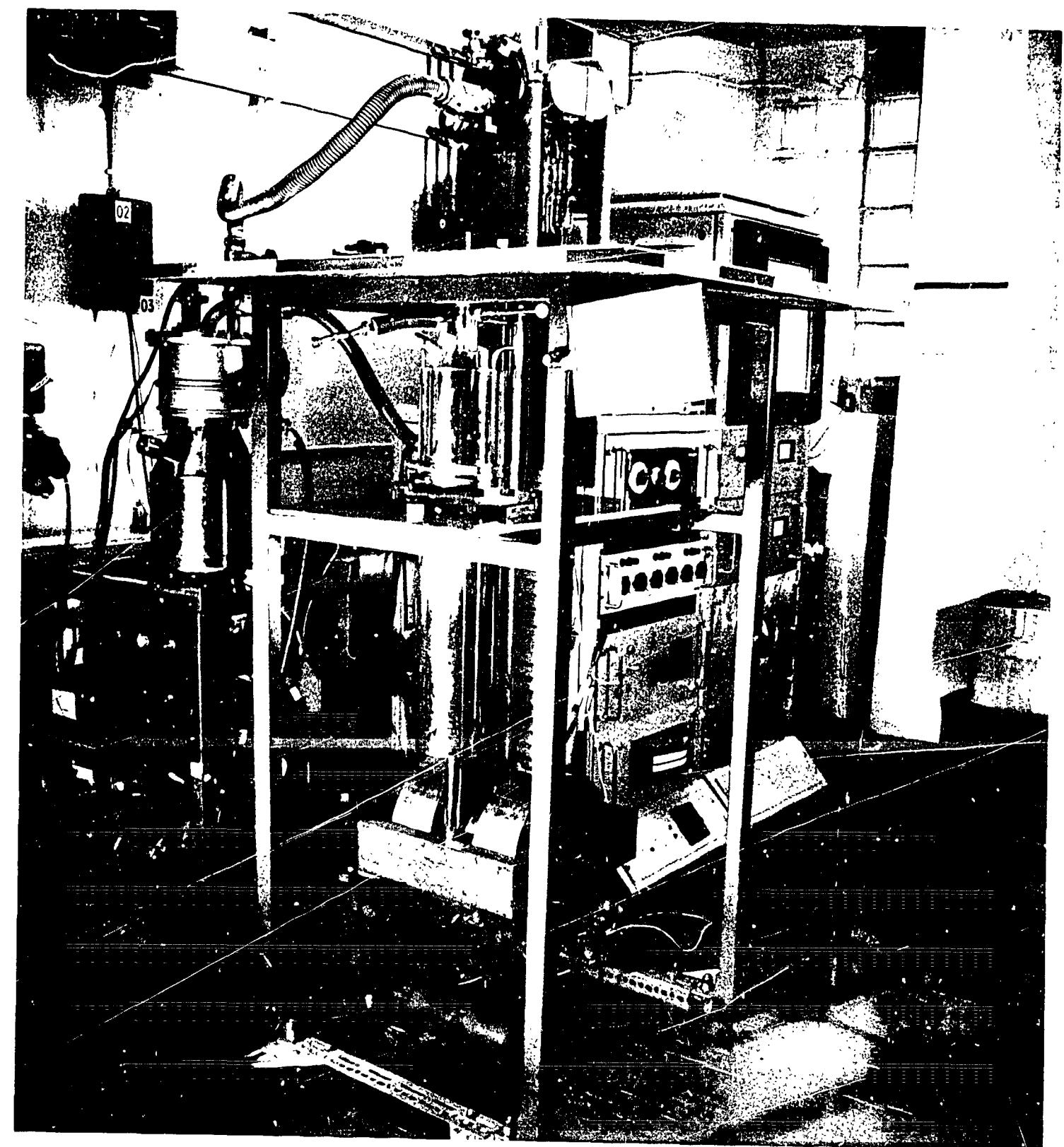
- Fig. 1 b -



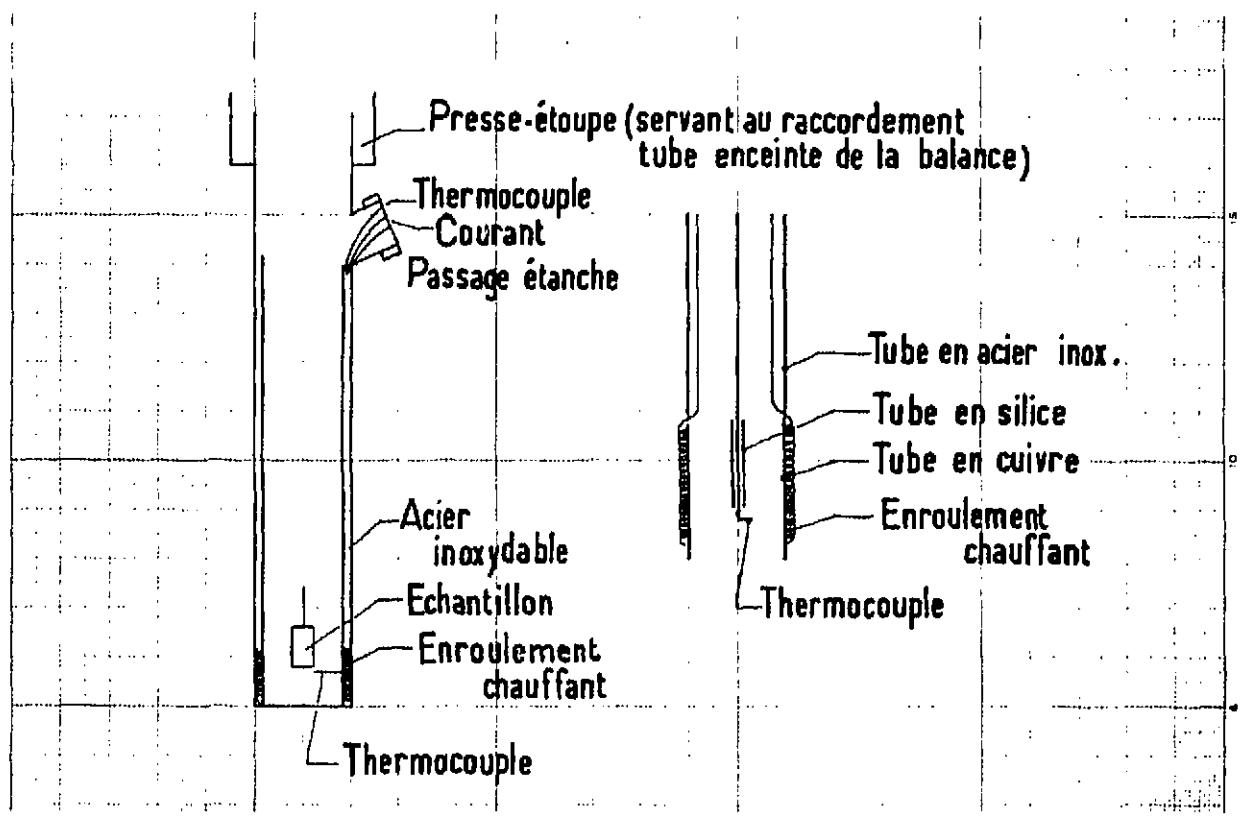
- Fig. 2 -



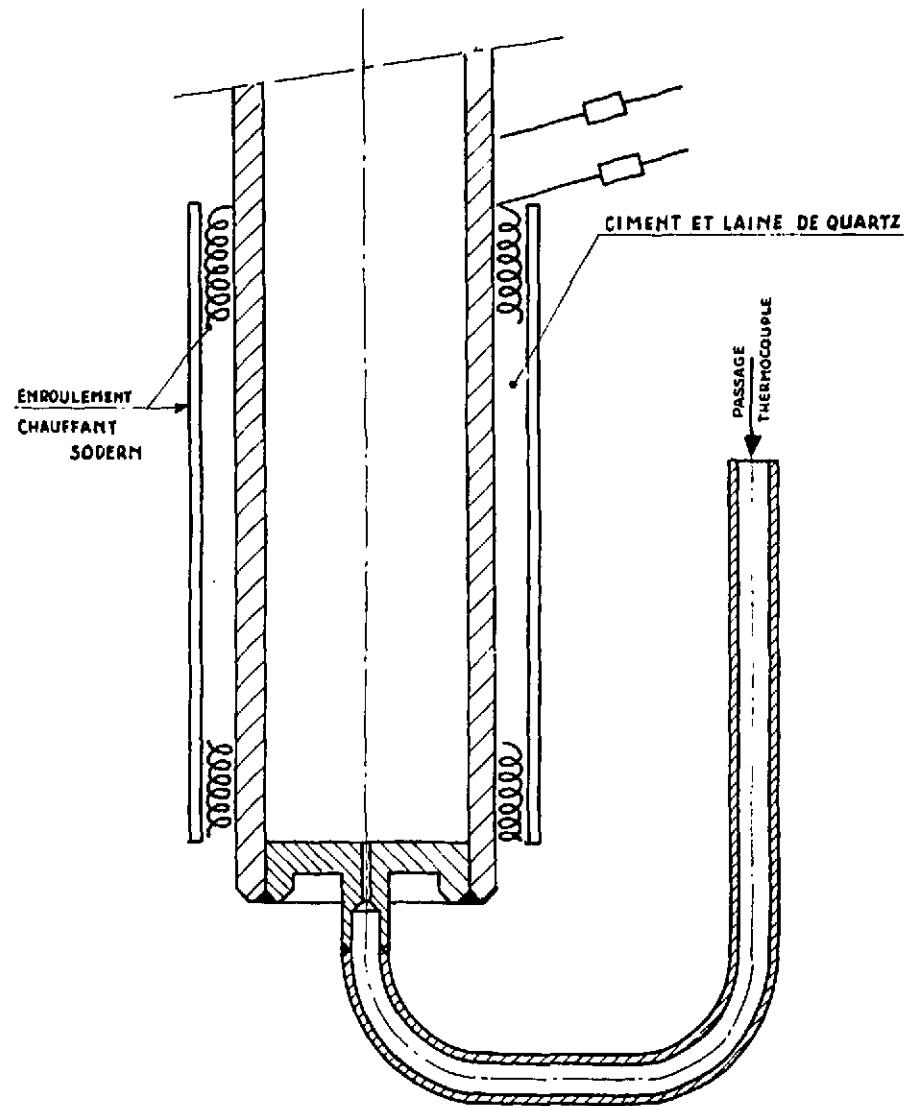
- Fig. 3 -



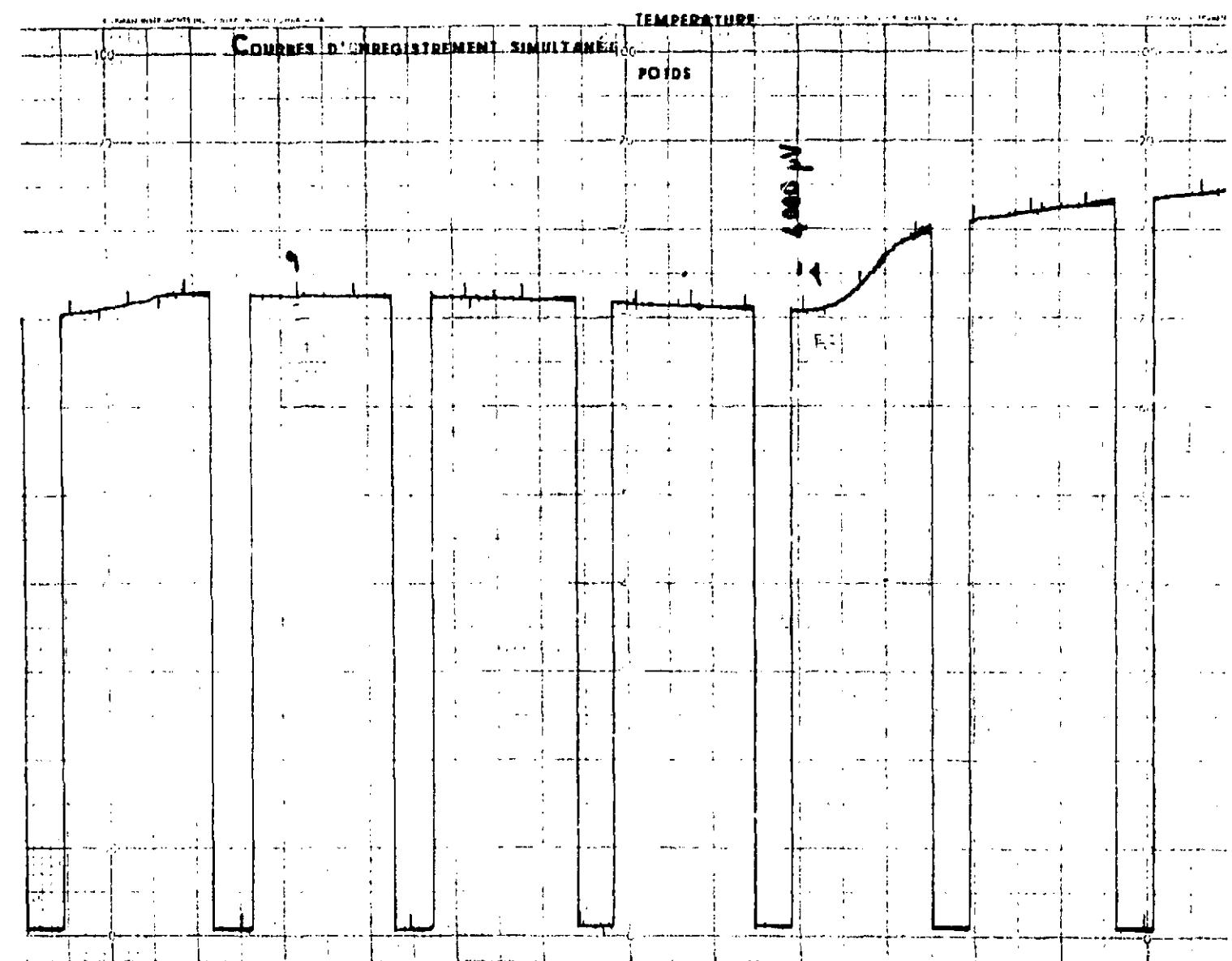
- Fig. 4 -



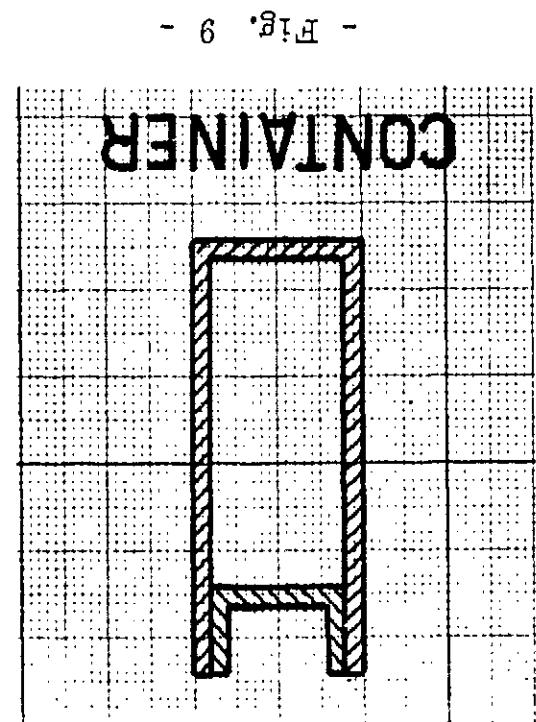
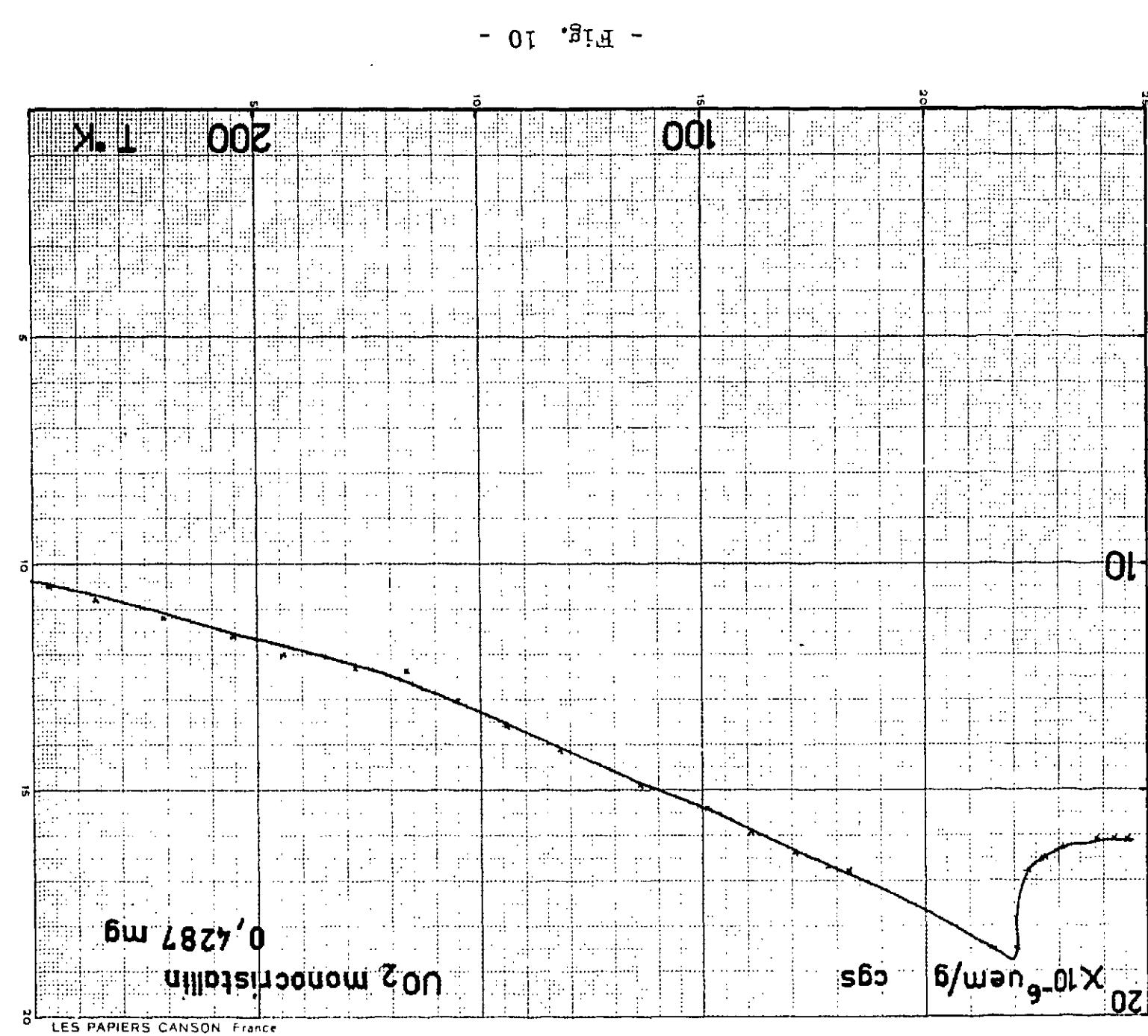
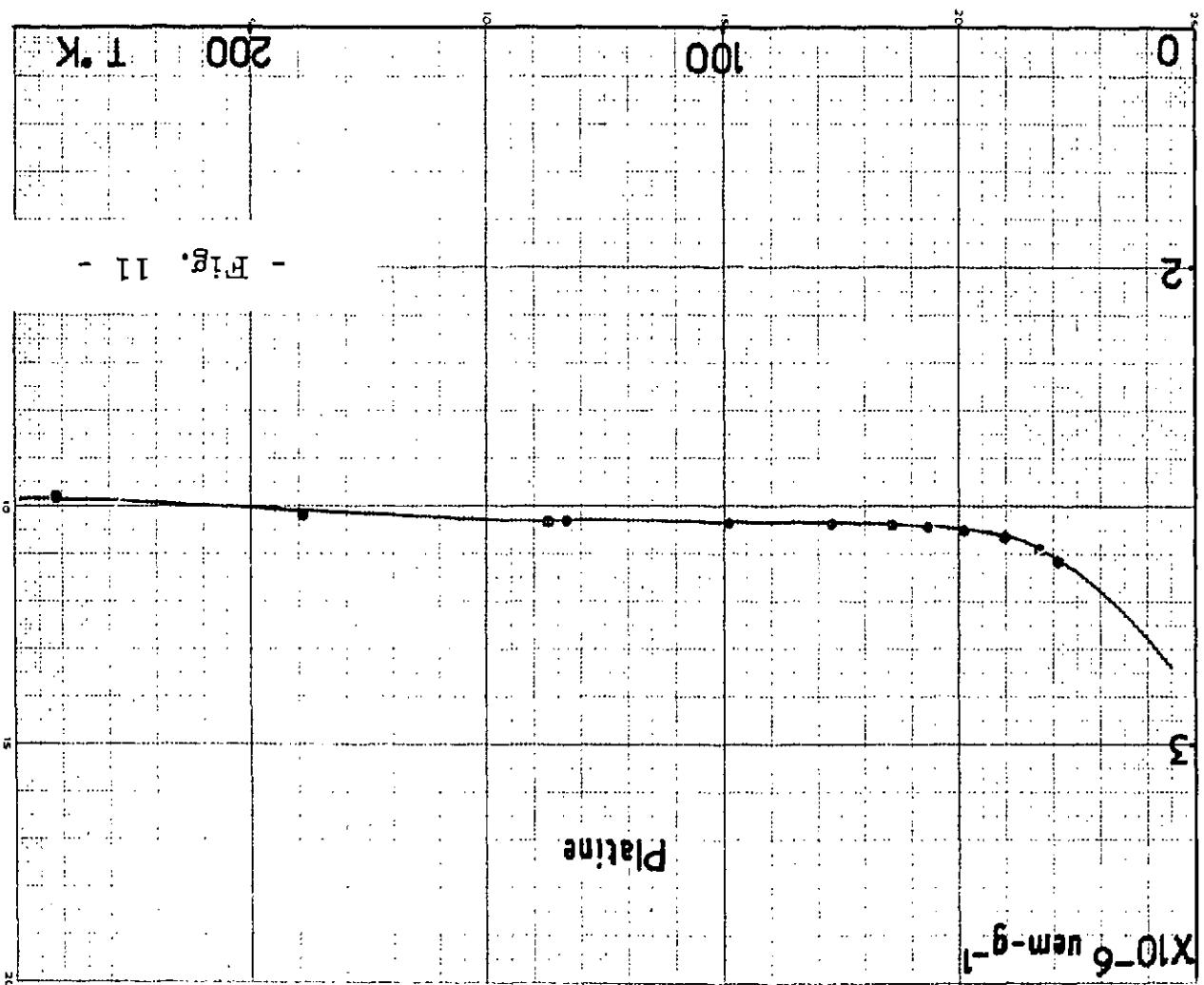
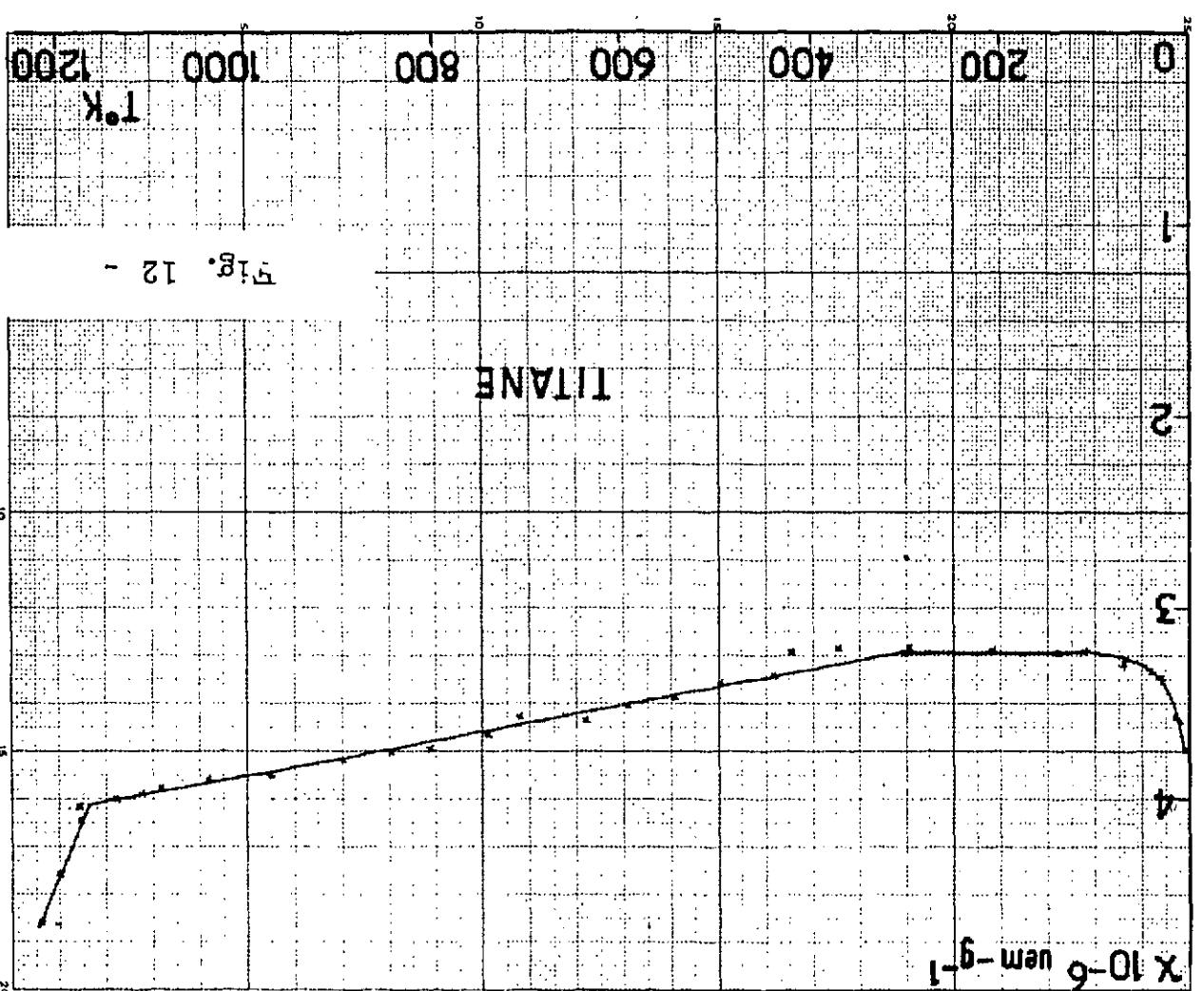
- Fig. 5 - 6 -



- Fig. 7 -



- Fig. 8 -



SUSCEPTIBILITE MAGNETIQUE DE Pu.O<sub>2</sub>

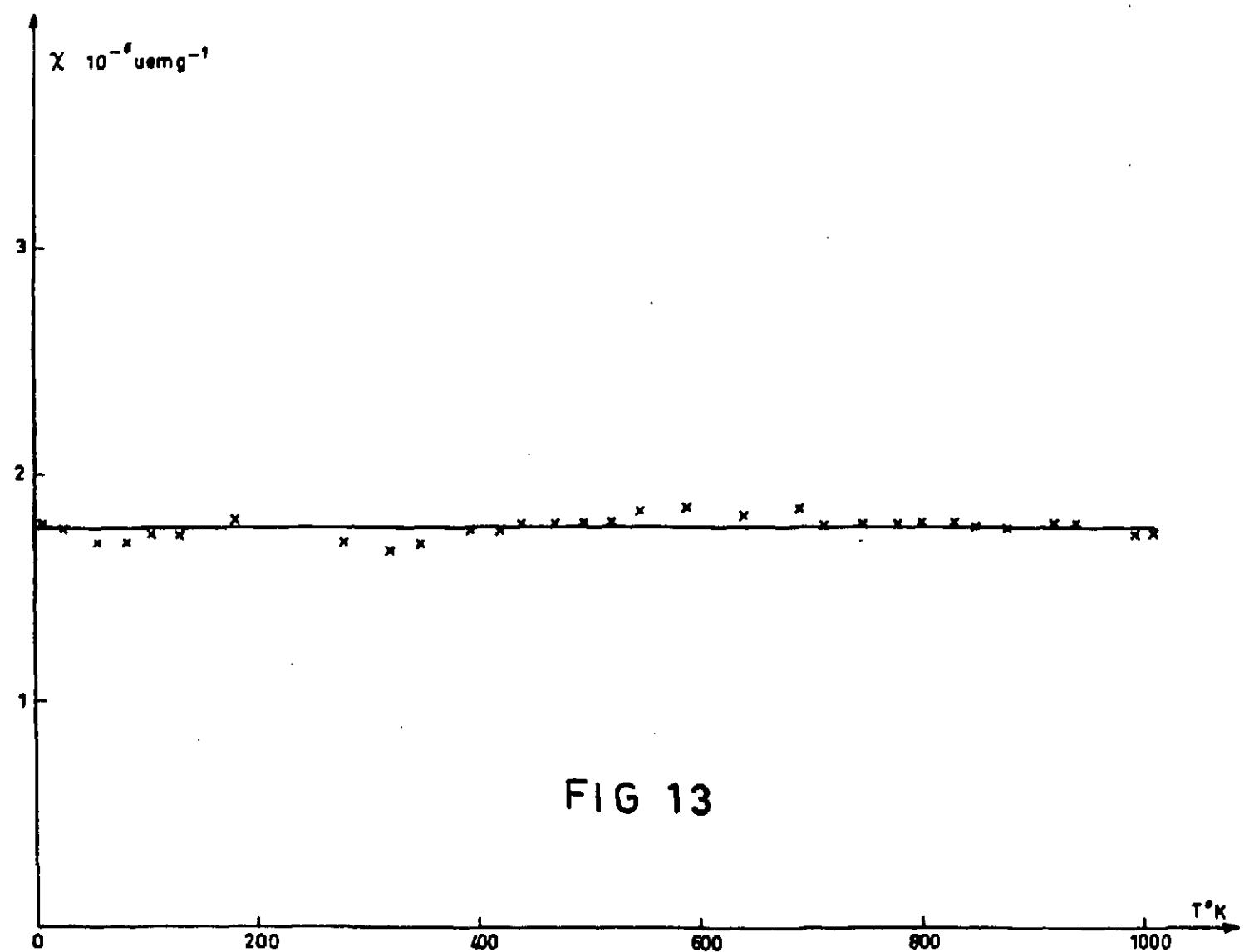


FIG 13

**FIN**