

T H E S E

présentée

A L'UNIVERSITE SCIENTIFIQUE
ET MEDICALE DE GRENOBLE

pour obtenir

le grade de Docteur de 3^{ème} cycle

par

Hassan DANDACHE

ETUDE DE LA THERMODIFFUSION DANS LES MELANGES ISOTOPIQUES
DILUES D' He^4 DANS L' He^3 LIQUIDE

Soutenue le 14 Décembre 1972 devant la Commission d'Examen

MM.A. LACAZE	(Président
J. P. LAHEURTE	} Examineurs
R. MOREAU (I. N. P)	
M. PAPOULAR	

UNIVERSITE SCIENTIFIQUE
ET MEDICALE DE GRENOBLE

LISTE DES PROFESSEURS

Président : Monsieur Michel SOUTIF

Vice-Président : Monsieur Gabriel CAU

PROFESSEURS TITULAIRES

MM.	ANGLES D'AURIAC Paul	Mécanique des fluides
	AUBERT Guy	Physique
	ARNAUD Georges	Clinique des maladies infectieuses
	ARNAUD Paul	Chimie
	AYANT Yves	Physique approfondie
Mme	BARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM.	BARBIER Jean-Claude	Physique expérimentale
	BARBIER Reynold	Géologie appliquée
	BARJON Robert	Physique nucléaire
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BARRA Jean-René	Statistiques
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale
	BENOIT Jean	Radioélectricité
	BESSON Jean	Electrochimie
	BEZES Henri	Chirurgie générale
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques Pures
	BOLLIET Louis	Informatique (IUT B)
	BONNET Georges	Electrotechnique
	BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique
	BONNET-EYMARD Joseph	Pathologie médicale
	BONNIER Etienne	Electrochimie Electrometallurgie
	BOUCHERLE André	Chimie et Toxicologie
	BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
	BRAVARD Yves	Géographie
	BRISONNEAU Pierre	Physique du Solide
	BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
	CABANAC Jean	Pathologie chirurgicale
	CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologie
	CALAS François	Anatomie
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie
	CAU Gabriel	Médecine légale et Toxicologie
	CAUQUIS Georges	Chimie organique
	CHABAUTY Claude	Mathématiques Pures
	CHARACHON Robert	Oto-Rhino-Laryngologie
	CHATEAU Robert	Thérapeutique

MM.	CHENE Marcel	Chimie papetière
	COEUR André	Pharmacie chimique
	CONTAMIN Robert	Clinique gynécologique
	COUDERC Pierre	Anatomie Pathologique
	CRAYA Antoine	Mécanique
Mme	DEBELMAS Anne-Marie	Matière médicale
MM.	DEBELMAS Jacques	Géologie générale
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	DESSAUX Georges	Physiologie animale
	DODU Jacques	Mécanique appliquée
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	DUCROS Pierre	Cristallographie
	DUGOIS Pierre	Clinique de Dermatologie et Syphiligraphie
	FAU René	Clinique neuro-psychiatrique
	FELICI Noël	Electrostatique
	GAGNAIRE Didier	Chimie physique
	GALLISSOT François	Mathématiques Pures
	GALVANI Octave	Mathématiques Pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GERBER Robert	Mathématiques Pures
	GIRAUD Pierre	Géologie
	KLEIN Joseph	Mathématiques Pures
Mme	KOPLER Lucie	Botanique et Physiologie végétale
MM.	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques Pures
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LOUP Jean	Géographie
Melle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques Pures
MM.	MALGRANGE Bernard	Mathématiques Pures
	MALINAS Yves	Clinique obstétricale
	MARTIN-NOEL Pierre	Seméiologie médicale
	MASSEPORT Jean	Géographie
	MAZARE Yves	Clinique médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	MOURIQUAND Claude	Histologie
	MOUSSA André	Chimie nucléaire
	NEEL Louis	Physique du Solide
	OZENDA Paul	Botanique
	PAUTHENET René	Electrotechnique
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques Pures

MM.	PEBAY-PEYROULA Jean-Claude	Physique
	PERRET René	Servomécanismes
	PILLET Emile	Physique industrielle
	RASSAT André	Chimie systématique
	RENARD Michel	Thermodynamique
	REULOS René	Physique industrielle
	RINALDI Renaud	Physique
	ROGET Jean	Clinique de pédiatrie et de puériculture
	SANTON Lucien	Mécanique
	SEIGNEURIN Raymond	Microbiologia et Hygiène
	SENGEL Philippe	Zoologie
	SILBERT Robert	Mécanique des fluides
	SOUTIF Michel	Physique générale
	TANCHE Maurice	Physiologie
	TRAYNARD Philippe	Chimie générale
	VAILLAND François	Zoologie
	VALENTIN Jacques	Physique nucléaire
	VAUQUOIS Bernard	Calcul électronique
Mme	VERAIN Alice	Pharmacie galénique
M.	VERAIN André	Physique
Mme	VEYRET Germaine	Géographie
MM.	VEYRET Paul	Géographie
	VIGNAIS Pierre	Biochimie médicale
	YOCOZ Jean	Physique nucléaire théorique

PROFESSEURS ASSOCIES

MM.	BULLEMER Bernhard	Physique
	RADHAKRISHNA Pidatala	Thermodynamique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM.	BEAUDOING André	Pédiatrie
	BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques Appliquées
	BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
	BONNETAIN Lucien	Chimie minérale
Mme	BONNIER Jane	Chimie générale
MM.	CARLIER Georges	Biologie végétale
	COHEN Joseph	Electrotechnique
	COUMES André	Radioélectricité
	DEFASSEL Roger	Mécanique des Fluides
	DEPORTES Charles	Chimie minérale
	DESRE Pierre	Métallurgie

MM.	GAUTHIER Yves	Sciences biologiques
	GEINDRE Michel	Electroradiologie
	GIDON Paul	Géologie et Minéralogie
	GLENAT René	Chimie organique
	HACQUES Gérard	Calcul numérique
	JANIN Bernard	Géographie
Mme	KAHANE Josette	Physique
MM.	MULLER Jean-Michel	Thérapeutique
	PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et minéralogie
	POULOUJADOFF Michel	Electrotechnique
	REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
	REVOL Michel	Urologie
	REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
	ROBERT André	Chimie papetière
	SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
	SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
	SIBILLE Robert	Construction Mécanique
	SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme	SOUTIF Jeanne	Physique générale

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

Melle	AGNIUS-DELORD Claudine	Physique pharmaceutique
Melle	ALARY Josette	Chimie analytique
MM.	ANBLARD Pierre	Dermatologie
	AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
	ARMAND Yves	Chimie
	BEGUIN Claude	Chimie organique
	BELORIZKY Elie	Physique
	BENZAKEN Claude	Mathématiques Appliquées
Mme	BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques Pures
MM.	BLIMAN Samuel	Electronique (EIE)
	BLOCH Daniel	Electrotechnique
Mme	BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM.	BOUCHET Yves	Anatomie
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques Appliquées
	BOUVARD Maurice	Mécanique des Fluides
	BRIERE Georges	Physique expérimentale
	BRODEAU François	Mathématiques (IUT B)
	BRUGEL Lucien	Energétique
	BUISSON Roger	Physique
	BUTEL Jean	Orthopédie
	CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
	CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
	CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)
	CHIBON Pierre	Biologie animale
	COHEN-ADDAD Jean-Pierre	Spectrométrie physique
	COLOMB Maurice	Biochimie médicale
	CONTE René	Physique

MM.	CROUZET Guy	Radiologie
	DURAND Francis	Métallurgie
	DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme	ETERRADOSSI Jacqueline	Physiologie
MM.	FAURE Jacques	Médecine légale
	GAVEND Michel	Pharmacologie
	GENSAC Pierre	Botanique
	GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
	GIDON Maurice	Géologie
	GRIFFITHS Michaël	Mathématiques Appliquées
	GROULADE Joseph	Biochimie médicale
	HOLLARD Daniel	Hématologie
	HUGONOT Robert	Hygiène et Médecine préventive
	IDELMAN Simon	Physiologie animale
	IVANES Marcel	Electricité
	JALBERT Pierre	Histologie
	JOLY Jean-René	Mathématiques Pures
	JOUBERT Jean-Claude	Physique du Solide
	JULLIEN Pierre	Mathématiques Pures
	KAHANE André	Physique générale
	KUHN Gérard	Physique
Mme	LAJZEROWICZ Jeannine	Physique
MM.	LAJZEROWICZ Joseph	Physique
	LANCIA Roland	Physique atomique
	LE JUNTER Noël	Electronique
	LEROY Philippe	Mathématiques
	LOISEAUX Jean-Marie	Physique Nucléaire
	LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique Nucléaire
	LUU DUC Cuong	Chimie Organique
	MACHE Régis	Physiologie végétale
	MAGNIN Robert	Hygiène et Médecine préventive
	MARECHAL Jean	Mécanique
	MARTIN-BOUYER Michel	Chimie (CUS)
	MAYNARD Roger	Physique du Solide
	MICOUD Max	Maladies infectieuses
	MOREAU René	Hydraulique (INP)
	NEGRE Robert	Mécanique
	PARAMELLE Bernard	Pneumologie
	PECCOUD François	Analyse (IUT B)
	PEFFEN René	Métallurgie
	PELMONT Jean	Physiologie animale
	PERRET Jean	Neurologie
	PERRIN Louis	Pathologie expérimentale
	PFISTER Jean-Claude	Physique du Solide
	PHELIP Xavier	Rhumatologie
Melle	PIERY Yvette	Biologie animale
MM.	RACHAIL Michel	Médecine interne
	RACINET Claude	Gynécologie et obstétrique
	RICHARD Lucien	Botanique
Mme	RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire

MM.	ROMIER Guy	Mathématiques (IUT B)
	ROUGEMONT (DE) Jacques	Neuro-Chirurgie
	STIEGLITZ Paul	Anesthésiologie
	STOEBNER Pierre	Anatomie pathologique
	VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques Appliquées
	VEILLON Gérard	Mathématiques Appliquées (INP)
	VIALON Pierre	Géologie
	VOOG Robert	Médecine interne
	VROUSSOS Constantin	Radiologie
	ZADWORNY François	Electronique

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

MM.	BOUDOURIS Georges	Radioélectricité
	CHEEKE John	Thermodynamique
	GOLDSCHMIDT Hubert	Mathématiques
	YACOUD Mahmoud	Médecine légale

CHARGES DE FONCTIONS DE MAITRES DE CONFERENCES

Mme	BERIEL Hélène	Physiologie
Mme	RENAUDET Jacqueline	Microbiologie

Je tiens à assurer de ma respectueuse reconnaissance, Monsieur le Professeur A. LCAZE, qui a bien voulu m'accueillir dans son laboratoire et présider mon jury de thèse.

Messieurs R. MOREAU, Maître de Conférence et M. PAPOULAR, Maître de Recherche au C.N.R.S., ont bien voulu accepter de faire partie de mon jury de thèse ; leur présence m'est particulièrement agréable et je les en remercie sincèrement.

Monsieur J.P. LAHEURTE, Maître-Assistant, m'a confié ce travail ; qu'il trouve ici l'expression de ma sincère reconnaissance pour l'intérêt qu'il a toujours porté à mes recherches et pour l'aide constante et effective qu'il n'a pas cessé de me prodiguer.

Je remercie le C.N.R.S. libanais pour l'aide qu'il m'a accordée pour faire ce travail.

Mes remerciements vont aux chercheurs et techniciens du laboratoire du C.R.T.B.T.

Enfin, c'est Madame JULLIEN qui a assuré avec beaucoup de soin la dactylographie de cette thèse, et je l'en remercie sincèrement.

Ce travail se divise en deux parties :

A/ THEORIQUE

B/ EXPERIMENTALE

A/ THEORIQUE

I/ INTRODUCTION

II/ LIMITE DE SEPARATION DE PHASE

III/ DIFFUSION ET THERMODIFFUSION - APPROCHE PHENOMENOLOGIQUE

1/ Equation de mouvement

2/ Relation d'Onsager

3/ Coefficient de transport

4/ Diffusion D et rapport de thermodiffusion

IV/ CALCUL DES PROPRIETES DE TRANSPORT A PARTIR DE
L'EQUATION DE BOLTZMAN

1/ Diffusion

2/ Thermodiffusion

3/ Viscosité - conductibilité

V/ DISCUSSION ET CONCLUSIONS

../..

B/ EXPERIMENTAL

1/ INTRODUCTION

2/ RAPPORT DE THERMODIFFUSION k_T

3/ TECHNIQUES EXPERIMENTALES

- a/ Appareil cryogénique et mesure de T
- b/ Mesure des concentrations
- c/ Méthode expérimentale

4/ RESULTATS

5/ CONCLUSION

^

^

^

A/ ETUDE THEORIQUE

I N T R O D U C T I O N

Une étude théorique des propriétés de transport des solutions isotopiques d'hélium liquide diluées en ^4He a été faite par Zharkov et Silin⁽¹⁾ en 1959. Leurs résultats ont été obtenus en effectuant un certain nombre d'approximations dans la recherche des solutions de l'équation de Boltzmann. Leggett et Ter Haar⁽²⁾ ont brièvement discuté ces approximations en indiquant en particulier que l'utilisation de la même fonction de distribution pour les fermions (^3He) incidents et diffusés, conduisait à des résultats erronés. Il n'existait malheureusement pas de résultats expérimentaux permettant de vérifier les prévisions théoriques. Très récemment une étude expérimentale de l'effet Soret a été entreprise⁽³⁾ dans les mélanges riches en ^3He . Dans ces conditions, il nous a paru utile de reprendre les calculs théoriques⁽¹⁻²⁾ pour établir l'importance des approximations effectuées et déterminer à partir d'un calcul plus exact la dépendance en température des coefficients de transport.

Dans la section II, nous situons notre domaine d'étude dans le diagramme de phase des solutions isotopiques d'hélium.

Nous proposons ensuite (section (III)), une étude thermodynamique des propriétés de transport, à partir des relations d'Onsager, appliquées au mélanges riches en ^3He . Ce traitement a l'avantage d'être valable à toute température.

Nous calculons, dans la section IV, les propriétés de transport à partir de l'équation de Boltzmann. Pour cela nous sommes amenés à utiliser des modèles qui décrivent les

atomes d' ^4He et d' ^3He dans le liquide comme deux gaz de quasi-particules. Cette description limite la gamme de température dans laquelle ces calculs peuvent être appliqués, à $T \leq 0,1\text{K}$. Nos résultats sont comparés à ceux des références (1-2) et nous permettent de discuter les approximations effectuées de part et d'autre.

Dans la dernière section, nous corrélons les résultats thermodynamiques et ceux obtenus à partir de l'équation de Bottzmann. Il n'est malheureusement pas possible de confronter ces résultats théoriques aux mesures de thermo-diffusion décrites dans l'article précédent (3), car il s'agit de mesures de k_T effectif en régime d'instabilité (3). Nous montrons que k_T est lié à la variation de conductibilité thermique par rapport à l' ^3He pur, et nous concluons sur les perspectives d'investigation expérimentale ultérieure.

II - LA LIMITE DE SEPARATION DE PHASE

En dessous d'une température critique $T^* = 0,87(\text{K})$, les mélanges isotopiques d'hélium liquide peuvent se séparer en deux phases. Dans le diagramme de séparation de phase (fig.1), il apparaît que des solutions superfluides diluées en ^3He restent stables même à $T=0\text{K}$. Les propriétés de transport de ces mélanges ont été abondamment étudiées tant sur le plan expérimental que théorique (9,10). Par contre, les solutions non-superfluides diluées en ^4He se séparent complètement au zéro absolu. La phase légère est alors exclusivement constituée d' ^3He liquide pur. Les mesures de séparation de phase sous pression de vapeur saturante (8) ont permis de déterminer la branche droite de ce diagramme (fig.1). En dessous de $0,5\text{K}$, la concentration molaire d' ^4He , x , est liée à la température de séparation de phase par la relation

$$(1) \quad x = 0,85 T^{3/2} e^{-0,56/T}$$

L'étude des solutions stables diluées en ^4He est par conséquent limitée par la condition (1). De plus, pour éviter les effets pré-transitionnels, nous considérons à

T donné des mélanges dont la concentration d' ^4He est inférieure à celle de séparation de phase. A très basse température, $T_3 \approx 0,1\text{K}$ lorsque le caractère quantique de l' ^3He se manifeste nettement, le nombre d'impuretés ^4He est nécessairement très faible. Aussi leur influence est probablement extrêmement difficile à détecter. A plus haute température, le comportement de l' ^3He liquide ne peut plus être décrit simplement. Nous sommes alors conduits à faire appel à des considérations thermodynamiques et phénoménologiques pour expliquer les propriétés des mélanges.

III - DIFFUSION ET THERMODIFFUSION ; APPROCHE PHENOMENOLOGIQUE

Dans cette section, nous rappelons quelques résultats fondamentaux de thermodynamique irréversible, dans la présentation donnée par Landau et Lifshitz⁽¹¹⁾. Nous les appliquons ensuite dans la limite des solutions diluées. Définissons d'abord les notations. ρ : densité de la solution ; c : concentration massique d' ^4He ; m_3 et m_4 : masses isotopiques ; μ_3 et μ_4 : potentiels chimiques des deux isotopes en solution ; s : entropie par unité de masse ; i : flux de diffusion de masse ; \vec{q} : flux thermique. Enfin :

$$(2) \quad \mu = \frac{\mu_4}{m_4} - \frac{\mu_3}{m_3}$$

I - EQUATIONS DU MOUVEMENT

Il y en a six dans le cas général, soit une de plus que pour un fluide pur, puisqu'il y a un degré de liberté supplémentaire : la concentration. Mais, nous limitant ici au cas d'un fluide dépourvu de mouvement macroscopique, les trois équations d'accélération (Navier - Stokes) disparaissent et l'équation de continuité pour la densité totale se réduit à :

$$\rho = \text{constante}$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = 0$$

Restent l'équation de continuité pour la concentration :

$$(3) \quad \rho \frac{dc}{dt} + \text{div } \vec{i} = 0$$

et l'équation d'évolution de l'entropie :

$$(4) \quad \rho T \frac{ds}{dt} + \vec{i} \cdot \text{grad } \mu = - \text{div} (\vec{q} - \mu \vec{i})$$

2 - FLUX ET FORCES D'ONSAGER

Le choix de ces grandeurs physiques conjuguées est dicté par les deux dernières équations : les "flux" seront \vec{i} et $\vec{q} - \mu \vec{i}$. On peut montrer alors que les "forces" sont données par $\frac{1}{T} \nabla \mu$ et $\frac{1}{T^2} \nabla T$. Pour éliminer les facteurs température, on écrit la réponse irréversible linéaire sous la forme :

$$(5) \quad \begin{cases} \vec{i} = -\alpha_1 T \left(\frac{\nabla \mu}{T} \right) - \alpha_2 T^2 \left(\frac{\nabla T}{T^2} \right) \\ \vec{q} - \mu \vec{i} = -\beta_1 T \left(\frac{\nabla \mu}{T} \right) - \beta_2 T^2 \left(\frac{\nabla T}{T^2} \right) \end{cases}$$

Le théorème de réciprocity d'Onsager donne : $\beta_1 = \alpha_2 T$.
Les trois coefficients cinétiques indépendants α_1 , α_2 , β_2 s'expriment en principe à partir d'équations microscopiques de transport appropriées. Ce point fait l'objet de la section suivante.

3 - COEFFICIENTS DE TRANSPORT

On peut récrire le système (5) sous la forme :

$$(6) \quad \begin{cases} \vec{i} = -\rho D \left[\nabla c + \frac{k_T}{T} \nabla T \right] \\ \vec{q} = \left[k_T \left(\frac{\partial \mu}{\partial c} \right)_{T,P} - T \left(\frac{\partial \mu}{\partial T} \right)_{c,P} + \mu \right] \cdot \vec{i} - \kappa \nabla T \end{cases}$$

avec :

$$(7) \quad D = \frac{\alpha_1}{\rho} \left(\frac{\partial \mu}{\partial c} \right)_{T,P}$$

$$(8) \quad \rho \frac{k_T}{T} D = \alpha_1 \left(\frac{\partial \mu}{\partial T} \right)_{c,P} + \alpha_2$$

$$(9) \quad \kappa = \beta_2 - \frac{\alpha_2^2}{\alpha_1} \cdot T$$

Le système (6) définit clairement la signification physique des coefficients de transport κ , D et k_T . κ est la conductibilité thermique; D le coefficient de diffusion de masse; Dk_T le coefficient de thermodiffusion. k_T , nombre sans dimension, est le rapport de thermodiffusion. On peut vérifier⁽¹¹⁾ que, la source d'entropie étant nécessairement positive, $\kappa > 0$ et $\alpha_1 > 0$. Comme la dérivée thermodynamique $\left(\frac{\partial \mu}{\partial c} \right)_T$ est aussi toujours positive, on a également $D > 0$ d'après l'équation (7). Par contre, k_T peut être positif ou négatif suivant les valeurs relatives de α_1 , α_2 et $\left(\frac{\partial \mu}{\partial T} \right)_c$.

4 - DIFFUSION D ET RAPPORT DE THERMODIFFUSION k_T

Il est possible de poursuivre la discussion purement thermodynamique du coefficient de diffusion D et du coefficient k_T dans la limite des solutions diluées : $c \ll 1$.

Dans ce cas (12)

$$(10) \quad \mu_4 = kT \cdot \ln x + F(T)$$

où la concentration molaire x est liée à c par :

$$(11) \quad c = \frac{m_4 x}{m_4 x + m_3 (1-x)} \approx \frac{m_4}{m_3} x$$

Pour les solutions diluées en ${}^4\text{He}$, il faut remarquer que la relation (10) est valable à toute température. En effet, les mesures de séparation de phase^(8,13) indiquent clairement que même à très basse température le gaz de bosons reste suffisamment dilué pour que μ_4 conserve la forme du potentiel chimique d'un gaz classique. Dans le modèle du gaz de quasiparticules pour les impuretés la fonction $F(T)$ se met sous la forme⁽¹³⁾

$$(12) \quad F(T) = kT \ln(B/T^{3/2}) + B'$$

où B et B' sont des constantes.

Par ailleurs, la relation de Gibbs Duhem permet de relier les dérivées partielles de μ_3 et μ_4 :

$$(13) \quad \frac{1}{\rho} dP - s dT = \frac{(1-c)}{m_3} d\mu_3 + \frac{c}{m_4} d\mu_4$$

et ainsi de calculer $\left(\frac{\partial \mu}{\partial c}\right)_{T,P}$ en utilisant (11) et (10)

$$(14) \quad \left(\frac{\partial \mu}{\partial c}\right)_{T,P} \approx \frac{kT}{m_4 c}$$

Le coefficient de diffusion D (equ. 7) s'écrit alors :

$$(15) \quad D = \frac{\alpha_1 kT}{\rho m_4 c}$$

Pour déterminer k_T (equ. 7) il faut également calculer $\left(\frac{\partial \mu}{\partial T}\right)_{P,c}$.
A l'aide des relations (10), (12), et (13), on obtient :

$$(16) \quad \left(\frac{\partial \mu}{\partial T}\right)_{P,c} = \frac{\mu_4 - B'}{m_4 \cdot T} - \frac{3k}{2m_4} + s$$

En reportant (15) et (16) dans la relation (8), on trouve finalement :

$$(17) \quad k_T = c \left[\frac{\mu_4 - B'}{kT} - \frac{3}{2} + \frac{m_4}{k} \left(s + \frac{\alpha_2}{\alpha_1} \right) \right]$$

Dans la limite des solutions diluées, la diffusion de masse reste gouvernée par un coefficient D fini, ce qui suppose d'après (15) $\alpha_1 \sim c \rightarrow 0$. Mais la thermodiffusion disparaît, donc $k_T, \alpha_2 \rightarrow 0$, d'après (17).

Ces calculs thermodynamiques montrent que les coefficients D et k_T dépendent de α_1 et $\frac{\alpha_2}{\alpha_1}$, respectivement. Cette présentation thermodynamique a l'avantage d'être générale. Elle permet d'effectuer la liaison entre les régions haute et basse température.

Notons que dans la relation (17), le terme $\frac{\alpha_2}{\alpha_1}$ qui permet de calculer k_T a les dimensions d'une entropie par unité de masse. C'est le transfert d'entropie par unité de masse à température constante⁽¹⁴⁾. En effet dans les relations (5), écrivant $\nabla T=0$, on trouve :

$$(18) \quad \vec{q} = \left(\mu + \frac{\alpha_2}{\alpha_1} \cdot T \right) \vec{i} \quad \text{si } \nabla T=0$$

La somme des deux termes entre parenthèse est la chaleur de transfert Q^* . (De son étude, on peut tirer des informations sur les forces à courte et moyenne portée dont dépend en grande partie le comportement des phases condensées⁽¹⁵⁾).

Une discussion microscopique des coefficients de transport à haute température supposerait qu'on construise une équation de Boltzmann à partir d'une distribution convenable pour les particules d' ^3He dans la limite "pseudo-classique". Nous ne le ferons pas. Par contre, l'approche microscopique des coefficients k_T et D de thermodiffusion est faisable dans la limite mieux définie du liquide de Fermi, c'est-à-dire à température assez basse ($T \lesssim 0.1\text{K}$). C'est cette approche que nous présentons dans la section suivante.

IV - CALCUL DES PROPRIETES DE TRANSPORT A PARTIR DE L'EQUATION DE BOLTZMANN

Nous nous intéressons aux solutions homogènes diluées en ${}^4\text{He}$, avant la séparation de phase. Ces mélanges ne sont pas superfluides et le comportement des impuretés ${}^4\text{He}$ peut être décrit dans un modèle de gaz de quasiparticules dont le spectre d'énergie est ⁽¹³⁾ en dessous de $T=0,5\text{K}$:

$$(19) \quad \epsilon = -E_4 + \frac{q^2}{2m_4^*}$$

où l'énergie de liaison $-E_4$ ($E_4 \approx 6,61\text{K}$) et la masse effective m_4^* ($m_4^* \approx 4,5 m_4$) de l'atome d' ${}^4\text{He}$ sont constants ; q est le moment de l'impureté.

Dans la limite des solutions diluées, ce gaz de bosons peut être assimilé à un gaz classique. En effet, même à très basse température, les mélanges homogènes sont toujours suffisamment dilués, pour que la nature quantique de l' ${}^4\text{He}$ ne se manifeste pas à une température T supérieure à celle de séparation de phase ⁽¹³⁾. Dans ces conditions, la fonction de distribution des quasiparticules ${}^4\text{He}$ est, par unité de volume :

$$(20) \quad n_{i_0} = \frac{\rho c}{m_4} \left(\frac{2\pi\hbar^2\beta}{m_4^*} \right)^{3/2} e^{-(q^2\beta/2m_4^*)}$$

où $\beta = (kT)^{-1}$.

Le comportement de l' ${}^3\text{He}$ liquide à $T \lesssim 0,1\text{K}$ peut être décrit par la théorie du liquide de Fermi de Landau. L'énergie d'une quasiparticule d' ${}^3\text{He}$ peut s'écrire ⁽¹⁶⁾ :

$$(21) \quad \epsilon(p) = \epsilon_F + (p - p_F) \cdot v_F$$

où ϵ_F est l'énergie de Fermi à $T = 0\text{K}$, p_F et v_F étant respectivement l'impulsion et la vitesse à la surface de Fermi.

La fonction de distribution des quasiparticules d' ^3He s'écrit à l'équilibre :

$$(22) \quad n_{fo} = (e^{\beta(\varepsilon - \varepsilon_F)} + 1)^{-1}$$

Nous nous proposons de calculer les propriétés de transport des mélanges dilués en ^4He à partir de l'équation de Boltzmann dans le même esprit que Zharkov et Silin⁽¹⁾.

L'équation de Boltzmann pour les impuretés ^4He s'écrit :

$$(23) \quad \frac{\partial n_i}{\partial t} + \nabla_q E \cdot \nabla_p n_i - \nabla_q n_i \cdot \nabla_p E = J_{ii} + J_{if}$$

J_{ii} et J_{if} représentant respectivement les intégrales de collision pour la diffusion d'une particule ^4He par une autre particule ^4He où un fermion.

Comme d'habitude, dans ce genre de problème, on considère que les fonctions de distribution des quasiparticules varient peu par rapport à leurs valeurs à l'équilibre, sous l'influence de la perturbation.

$$(24) \quad \begin{cases} n_f = n_{fo} + \delta n_f \\ n_i = n_{io} + \delta n_i \end{cases}$$

Pour un fluide immobile, on peut alors réécrire, en utilisant (20) et (24), l'équation (23) sous la forme :

$$(25) \quad n_{io} \frac{\partial E}{\partial \vec{q}} \cdot \frac{\nabla c}{c} + n_{io} \frac{\partial E}{\partial \vec{q}} \left(\frac{q^2 \beta}{2 m_4^*} - \frac{3}{2} \right) \frac{\nabla T}{T} = J_{ii} + J_{if}$$

Pour évaluer les intégrales de collision Zharkov et Silin⁽¹⁾ ont été conduits à considérer deux régions. Dans la première, que nous qualifierons de faibles concentrations⁽¹⁷⁾, le nombre d'impuretés ^4He est toujours très faible comparé avec le nombre de quasiparticules ^3He . La conditions qui permet de définir cette région de faibles concentrations est⁽¹⁾:

$$(26) \quad c \ll \left(\frac{T}{T_F} \right)^2$$

où T_F est la température de Fermi.

En même temps, le domaine de température et concentration, dans lequel les mélanges sont homogènes, est limité par la condition de séparation de phase (1). Celle-ci pour des solutions suffisamment diluées peut aussi s'écrire :

$$(27) \quad C_{\max} \approx 1,1 T^{3/2} e^{-\frac{0,56}{T}}$$

En remplaçant dans la relation (26) C par sa valeur maximale (27) dans des mélanges homogènes stables, on obtient :

$$(28) \quad 1 \ll 0,4 T^{1/2} e^{\frac{0,56}{T}}$$

Il est très facile de vérifier que, dans la limite de validité de la théorie du liquide de Fermi $T \lesssim 0,1K$, la relation (28) est toujours vraie. Par conséquent, pour les mélanges dilués en ${}^4\text{He}$, la condition des faibles concentrations est toujours valable. Les calculs effectués dans l'autre limite⁽¹⁻²⁾ ne présentent donc qu'un intérêt purement académique. Aussi, pour les fortes concentrations, nous donnerons seulement le résultat essentiel de notre calcul : le temps moyen de collision d'un fermion par une impureté, t_{fi} .

Pour les mélanges dilués en ${}^4\text{He}$ à très basses températures, le nombre de collisions entre impuretés est donc beaucoup plus faible que celui entre fermions et impuretés. Il est alors possible en première approximation, de négliger J_{ii} par rapport à J_{if} , car le temps moyen pour observer une collision entre deux impuretés, t_{ii} , est beaucoup plus grand que celui d'une collision impureté-fermion, t_{if} .

Nous considérons la diffusion d'une impureté de moment \vec{q} par un fermion de moment \vec{p} , les particules diffusées ont les impulsions \vec{p}' et \vec{q}' . Le potentiel d'interaction est supposé avoir la forme d'un potentiel de contact, (ce qui est peut-être une approximation hâtive) :

$$(29) \quad V_{iF} = V_0 \delta(\vec{r}_i - \vec{r}_F)$$

où \vec{r}_i et \vec{r}_F sont les coordonnées de l'impureté et de l' ^3He et V_0 une constante.

Par ailleurs, on considère que les variations des fonctions de distribution par rapport à l'équilibre peuvent se mettre sous la forme⁽¹⁾ :

$$(30) \quad \begin{aligned} \delta n_F &= -n_{F0} (1 - n_{F0}) \Psi_F \\ \delta n_i &= -n_{i0} \Psi_i \end{aligned}$$

L'intégrale de collision s'écrit alors :

$$(31) \quad J_{iF} = \frac{8\pi}{h} \frac{V_0^2}{(2\pi h)^6} \int n_{F0} n_{i0} (1 - n_{F0}') (\Psi_i + \Psi_F - \Psi_i' - \Psi_F') \cdot \delta(\varepsilon + E - \varepsilon' - E') d\vec{p} d\vec{q}'$$

avec bien sûr la loi de conservation des impulsions :

$$(32) \quad \vec{p}' = \vec{p} + \vec{q} - \vec{q}'$$

I/ DIFFUSION

En présence d'un gradient de concentration seul, le courant d'impureté \vec{i} est déterminé par le coefficient de diffusion D.

$$(33) \quad \vec{i} = -\rho D \nabla c$$

Le gradient de température étant supposé nul, nous pouvons récrire la relation (25) pour ces mélanges :

$$(34) \quad n_{i0} \frac{\partial E}{\partial \vec{q}} \frac{\nabla c}{c} = J_{iF}$$

Pour des raisons de symétrie, on peut alors considérer que les variations des fonctions de distribution, par rapport à l'équilibre imposent⁽¹⁾ :

$$(35) \quad \begin{aligned} \Psi_i &= a_c(E) \vec{q} \cdot \vec{\nabla} c \\ \Psi_F &= b_c(E) \vec{p} \cdot \vec{\nabla} c \end{aligned}$$

Dans la limite des faibles concentrations, le temps moyen d'une collision entre fermions est t_{ff} , avec $t_{ff} \ll t_{if}$. Cette condition implique que la fonction de distribution des fermions varie beaucoup moins que celle des impuretés par rapport à l'équilibre⁽¹⁾. On peut alors négliger ψ_f par rapport à ψ_i et J_{if} s'écrit :

$$(36) \quad J_{if} = A \int n_{f0} (1 - n'_{f0}) \vec{\nabla}_c \cdot (\vec{q} - \vec{q}') \delta(E + \epsilon - E' - \epsilon') d\vec{p} d\vec{q}'$$

avec

$$A = \frac{8\pi}{\hbar} \frac{V_0^2 a_c n_{i0}}{(2\pi\hbar)^6}$$

Nous effectuons alors le changement de variable:

$$(37) \quad \vec{K} = \vec{q} - \vec{q}' = \vec{p}' - \vec{p}$$

en définissant les angles θ entre \vec{K} et \vec{q} et χ entre \vec{K} et \vec{p} .

A basse température, on ne s'intéresse qu'au processus de diffusion vers l'avant car le transfert d'impulsion est faible ; $K \ll p_f$.

Cette intégrale de collision peut alors se mettre sous la forme:

$$(38) \quad J_{if} = A \int \delta \left[\frac{q \cdot K \cos \theta}{m_1^*} - v_f K \cos \chi - \frac{K^2}{2m_1^*} \right] \vec{\nabla}_c \cdot \vec{K} n_{i(p)} (1 - n_{i(p+K)}) d\vec{p} d\vec{K}$$

Cette forme est similaire à celle obtenue par Leggett et Ter Haar⁽²⁾. Ils n'ont cependant pas introduit dans l'intégrale le produit $\vec{K} \vec{\nabla}_c$, qui provient de la dépendance de ψ_i et ψ'_i avec q et q' . D'autre part il faut souligner que ce résultat est différent de celui obtenu par Zharkov et Silin⁽¹⁾ qui néglige tout transfert d'impulsion ($K=0$), en prenant la même fonction de distribution pour les fermions incidents et diffusés. Même si à très basse température K est faible, cette approximation $K=0$ paraît conduire à des résultats erronés⁽²⁾. Intégrant ensuite sur $\cos \chi$, nous obtenons :

$$(39) \quad J_{if} = \frac{A}{v_f} \int \frac{\vec{\nabla}_c \cdot \vec{K} p^2 K dK dp d\cos \theta d\varphi_1 d\varphi_2}{[e^{\beta v_f (p - p_f)} + 1] [1 + e^{\frac{\beta(K^2 - 2qK \cos \theta)}{2m_1^*}}] e^{-\beta v_f (p - p_f)}}$$

A très basse température, nous avons $p = p_F$ et les intégrations sur p et φ_2 donnent⁽¹⁸⁾

$$(40) \quad J_{iF} = \frac{2\pi H}{V_F^2} p_F^2 \int \frac{\vec{\nabla}_c \cdot \vec{k} K (K^2 - 2qK \cos \theta) dK d\cos \theta d\varphi_1}{2m_4^* \left(e^{\frac{\beta}{2m_4^*} (K^2 - 2qK \cos \theta)} - 1 \right)}$$

L'intégration sur φ_1 permet ensuite d'écrire :

$$(41) \quad J_{iF} = 4\pi H m_3^{*2} \frac{\vec{\nabla}_c \cdot \vec{q}}{q} \int \frac{K^2 \cos \theta (K^2 - 2qK \cos \theta) dK d\cos \theta}{2m_4^* \left(e^{\frac{\beta}{2m_4^*} (K^2 - 2qK \cos \theta)} - 1 \right)}$$

où la masse effective du fermion est : $m_3^* = p_F / v_F$

Puisque K est petit nous pouvons, dans la limite $T \rightarrow 0$ considérer que $\beta q K / m_4^* < 1$. Intégrant alors sur θ , nous obtenons⁽¹⁹⁾

$$(42) \quad J_{iF} \approx 4\pi^2 m_3^{*2} H \frac{\vec{\nabla}_c \cdot \vec{q}}{q} \int \left[\frac{K^2}{2m_4^*} e^{-\frac{\beta K^2}{2m_4^*}} - \frac{1}{\beta} \left(e^{-\frac{\beta K^2}{2m_4^*}} - e^{-\frac{\beta K^2}{m_4^*}} \right) \right] \frac{2\beta K}{m_4^*} dk$$

Pour terminer, l'intégration sur K nous fournit J_{iF}

$$(43) \quad J_{iF} \approx 4\pi^2 m_3^{*2} H m_4^{*2} \frac{\vec{\nabla}_c \cdot \vec{q}}{\beta^3 q^2}$$

Portant ce résultat dans l'équation (34), on obtient l'incrément δn_i :

$$(44) \quad \delta n_i = - \frac{2\pi^3 \beta^3 \hbar^3}{V_0^2 m_3^{*2} m_4^{*3}} n_{i0} q^2 \frac{\vec{\nabla}_c \cdot \vec{q}}{c} \vec{q}$$

Le courant d'impureté se calcule facilement à partir de :

$$(45) \quad \vec{T} = \frac{1}{(2\pi\hbar)^3} \int \vec{q} \delta m_i d\vec{q}$$

Nous trouvons alors en portant (44) dans (45) et avec (20) :

$$(46) \quad \vec{T} = - \frac{30\pi^3 \hbar^7 \rho \vec{\nabla}_c}{m_4^* k T V_0^2 m_3^{*2} m_4}$$

Le coefficient de diffusion D se déduit de la comparaison des relations (46) et (33). Il s'écrit :

$$(47) \quad D = \frac{30\pi^3 \hbar^7}{m_4^* m_4 V_0^2 m_3^{*2}} \cdot \frac{1}{kT}$$

Nous voyons ainsi que $D \propto T^{-1}$, alors que chez Zharkov et Silin⁽¹⁾ D ne dépend pas de la température. Ceci confirme que les approximations de la référence⁽¹⁾ sont trop grossières.

Bien que Leggett et Ter Haar dans leur très bref commentaire trouvent également $D \propto T^{-1}$, il faut remarquer que le fait de négliger la dépendance de $\psi_i - \psi'_i$ avec K , ne leur permet d'aboutir à ce résultat que dans la limite $\frac{q^2}{m_4} \gg kT$. Cette condition très restrictive n'est pas nécessaire dans notre calcul, où nous avons pris en compte l'influence de K dans $\psi_i - \psi'_i$. Dans le tableau I nous comparons les résultats des calculs pour les temps moyens entre collisions des quasiparticules.

2/ THERMODIFFUSION

Le coefficient de thermodiffusion $k_T \cdot D$ relie le courant d'impureté au gradient de température, en l'absence du gradient de concentration :

$$(48) \quad \vec{j}_i = - \rho k_T D \frac{\vec{\nabla} T}{T}$$

Le rapport de thermodiffusion k_T se calcule facilement en prenant cette fois :

$$(49) \quad \delta n_i = - n_{i0} a_T(E) \vec{q} \cdot \vec{\nabla} T$$

L'intégrale de collision (25) est dans ce cas liée à ∇T par :

$$(50) \quad J_{iF} = n_{i0} \frac{\partial E}{\partial \vec{q}} \left(\frac{q^2}{2m_4^* kT} - \frac{3}{2} \right) \frac{\nabla T}{T}$$

Reprenant le calcul, comme dans le cas du coefficient de diffusion, on trouve finalement :

$$(51) \quad k_T = + 2 c .$$

alors que Zharkov et Silin⁽¹⁾ avaient obtenu $k_T = c$. C'est la différence des formes obtenues pour δn_i qui est responsable de cet écart.

3/ Enfin, il faut souligner que dans la limite basse température examinée dans cette section, les autres propriétés de transport sont peu affectées par la présence des impuretés. En utilisant la valeur de t_{if} , que nous avons obtenue dans le calcul du coefficient de diffusion, l'influence des impuretés se détermine directement⁽¹⁾. La viscosité des solutions s'écrit à basse température :

$$(52) \quad \eta = \eta_F + \eta_i$$

où $\eta_F \sim T^{-2}$ est la viscosité de l'³He liquide⁽²⁰⁾. La contribution de l'⁴He est négligeable.

$$(53) \quad \eta_i = c \cdot \frac{T}{T_F} \cdot \eta_F$$

La conductibilité thermique est :

$$(54) \quad \kappa \sim \kappa_F + \kappa_i$$

κ_F , la conductibilité de l'³He liquide⁽²⁰⁾, est $\sim T^{-1}$ tandis que les impuretés contribuent aussi $\sim T^{-1}$ mais :

$$(55) \quad \kappa_i < c\kappa_F$$

V - DISCUSSION ET CONCLUSIONS

1 - Le calcul microscopique de la section présente aboutit donc à :

$$(56) \quad D \sim T^{-1}, \quad k_T = +2c$$

Insistons sur le fait que ces résultats sont obtenus moyennant un certain nombre de simplifications, dont l'approximation du potentiel de contact (eq. (29)). En tout état de cause, ce calcul n'est valable que dans la limite où l' ^3He peut être considéré effectivement comme un liquide de Fermi, c'est-à-dire à très basse température. La relation (28) montre alors que (suffisamment loin de la séparation de phase) :

$$c \sim 10^{-5} \quad \text{pour } T < 0.1\text{K} \quad (\text{A})$$

Il s'agit donc, pour le moment, d'une limite théorique qui ne peut en aucun cas rendre compte des résultats expérimentaux rapportés dans l'article précédent⁽³⁾ :

$$k_T^{\text{eff}} \text{ de l'ordre de } -10c, \text{ pour } c \sim 2\% \text{ et } 0,6 < T < 2\text{K} \quad (\text{B})$$

Comme on l'a vu, ces mesures, effectuées en régime d'instabilité⁽³⁾, n'ont donné qu'un rapport de thermodiffusion effectif. Une géométrie expérimentale différente permettrait probablement d'éviter les effets de convection et d'accéder à k_T réel. Une telle mesure, effectuée à $T=1\text{K}$, relèverait de l'approche phénoménologique de la section III. Reportée dans l'expression (17) de k_T , elle permettrait d'évaluer le terme en $\frac{\alpha_2^2}{\alpha_1}$, lequel contribue également à K (eq. 9) sous la forme :

$$(57) \quad \kappa = \beta_2 - \left(\frac{\alpha_2}{\alpha_1}\right)^2 \frac{\rho m_4 c}{k} D$$

Dans cette expression le 2e terme représente une diminution de conductibilité par rapport à l' ^3He pur, à condition

de pouvoir négliger l'effet des impuretés d' ^4He sur le coefficient cinétique β_2 .

2 - Comme nous l'avons déjà indiqué, la description thermodynamique de la section III reste valable dans la limite "théorique" des basses températures : conditions (A). Dans cette limite, on obtient des expressions pour α_1 en égalant (15) et (47)

$$(58) \quad \alpha_1 = \frac{\rho c 30\pi^3 \hbar^7}{m_4^* m_3^2 v_0^2 (kT)^2}$$

et $\frac{\alpha_2}{\alpha_1}$ à partir de (17) et (51) :

$$(59) \quad \frac{\alpha_2}{\alpha_1} = \frac{7}{2} \frac{k}{m_4} - s - \frac{k}{m_4} \ln \left[\frac{\rho c}{m_4} \left(\frac{2\pi\hbar^2}{m_4^* kT} \right)^{3/2} \right]$$

en utilisant l'expression du potentiel chimique μ_4 donnée dans la réf. (13). La concentration c est alors extrêmement faible et, dans l'eq. (17) (ou (59)), $\frac{\alpha_2}{\alpha_1}$ doit compenser le terme en $\ln c$ introduit par $\mu_4 - B'$, puisque $k_T = 2c$. Ainsi, dans les conditions (A), α_1 et α_2 varient comme $T^{-2}c$ et $T^{-2}c \ln c$ respectivement.

Il est clair que des mesures de thermodiffusion poussées aux plus basses températures, jusqu'à 300 mK par exemple, seraient souhaitables.

3 - En dehors d'expériences de thermodiffusion (et de conductivité thermique), il est difficile de proposer d'autres mesures de coefficients de transport dans la limite des solutions diluées en ^4He . Le coefficient D notamment n'est guère accessible (21) puisque le noyau ^4He est dépourvu de spin. Par contre, on peut envisager des mesures de D et k_T , comme de η et K , dans la région tricritique. Une expérience d'échos de spin ne nous renseignerait que sur la self diffusion de ^3He . Le coefficient de diffusion mutuelle lui, devrait s'annuler au point tricritique T^* car sa variation est probablement

dominée par l'inverse de la compressibilité osmotique $\left(\frac{\partial \mu}{\partial c}\right)$ qui varie à peu près comme $(T-T^*)^{(22)}$. Il serait accessible, en principe, par diffusion inélastique de lumière cohérente. Mais une telle expérience serait assez délicate du fait que $(n-1) \ll 1$, n étant l'indice de réfraction de l'hélium liquide. Enfin, nous montrons par ailleurs ⁽²³⁾ que k_T devrait diverger comme $(T-T^*)^{-1}$.

R E F E R E N C E S

- 1/ V.N. ZHARKOV et V.P. SILIN - J.E.T.P. 37-I43 (1959)
Sov. Phys. J.E.T.P. 37-IO (1960)
- 2/ A.J. LEGGETT et D. TER HAAR - Phys. Lett. 11 -129 (1964)
- 3/ H. DANDACHE et J.P. LAHEURTE
- 4/ E.H. GRAFF, D.M. LEE et J.D. REPPY, Phys. Rev. Lett.
19, 417 (1967)
- 5/ E.M. IFFT, D.O. EDWARDS, R.E. SARWINSKI et M.M. SKERTIC
Phys. Rev. Lett. 19, 831 (1967)
- 6/ R. DE BRUYN OUBOTER, K.W. TACONIS, C. Le PAIR et
et J.J.M. BEENAKKER, Physica 26, 853 (1960)
- 7/ T.R. ROBERTS et S.G. SYDORIAK, Phys. Fluids 3, 895 (1960)
- 8/ J.P. LAHEURTE et J.R.G. KEYSTON, Cryogenics 11-485 (1971)
- 9/ I.M. KHALATNIKOV et V.N. ZHARKOV, J.E.T.P. 32 - 1108 (1957)
Sov. Phys. J.E.T.P. 5-905 (1957)
- 10/ C. EBNER et D.O. EDWARDS, Physics Reports 2C-2 (1971), pour une
revue détaillée récente des propriétés des mélanges dilués
en ³He
- 11/ L.D. LANDAU et E.M. LIFSHITZ - Fluids Mechanics Ch.VI
Pergamon Press -- OXFORD - PARIS (1963)
- 12/ L.D. LANDAU et E.M. LIFSHITZ - Physique Statistique Ch. IX -
Editions MIR-MOSCOU 1967
- 13/ W.F. SAAM et J.P. LAHEURTE, Phys. Rev. A 4(3) - 1170 (1971)

- 14/ S.R. DE GROOT et P. MAZUR, Non equilibrium - Thermodynamics North-Holland - Pub Co. Amsterdam (1969) Ch; XI
- 15/ G. BRUHAT - Thermodynamique Masson et Cie - Paris (1968)
p. 837
- 16/ A.A. ABRIKOSOV et I.M. KHALATNIKOV - J.E.T.P. 32, 1083
(1957) - Sov. Phys. J.E.T.P. 5 - 887 (1957)
- 17/ Il nous semble préférable d'utiliser une terminologie différente de celle de ZHARKOV et SILIN⁽¹⁾ pour diviser les domaines auxquels se rapportent les diverses approximations ; plutôt que de parler de régions hautes et basses températures nous définissons ces régions comme faibles et fortes concentrations puisque la théorie n'est valable qu'au voisinage de $T=0K$.
- 18/ H.B. DWIGHT - Tables of integrals and other mathematical data Mc Millan Co. New-York (1966) - p38 N^{OS} 160 -01
- 19/ ref. (18) p23 N^{OS} 92-1
- 20/ J. WILKS - The properties of liquid and solid helium - Clarendon Press - Oxford (1967) - Ch 15
-
- 21/ Sauf par des mesures en régime transitoire où les temps de mise en équilibre peuvent être très longs ; voir par ex. G.I. BOBROVA et G.D. RABINOVICH, in "Nonstationary Heat and Mass Transfer", p.67 ; Moscou 1965 ; I.P.S.T. Jerusalem 1967.
- 22/ G. GOELLNER et H. MEYER, Phys. Rev. Lett. 26-1534 (1971)
- 23/ H. DANDACHE, J.P. LAHEURTE et M. PAPOULAR, à paraître

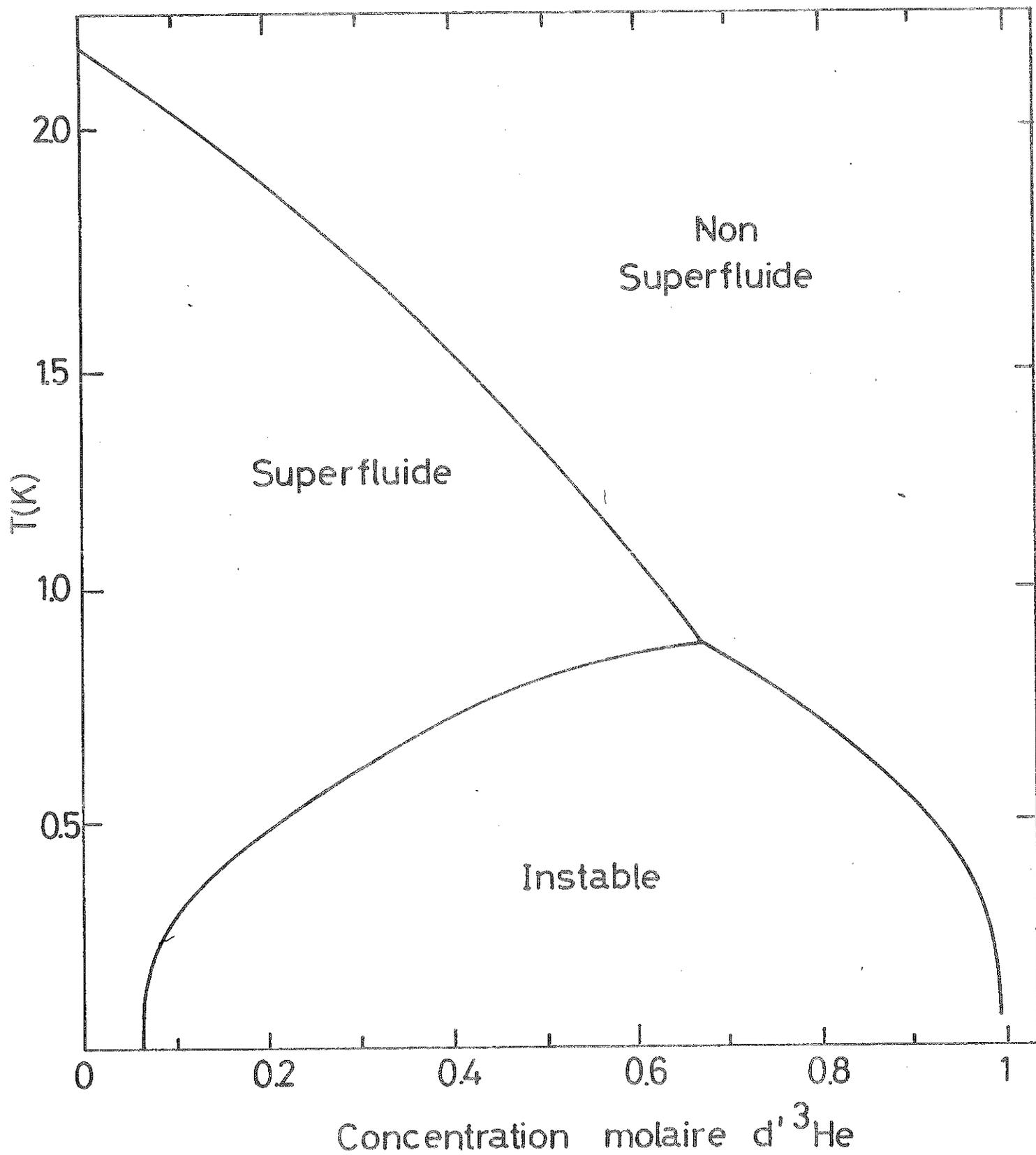
	t_{ff}	t_{if}	t_{fi}
nos calculs	T^{-2}	T^{-2}	$T^{-5/2}$
ref. (1)	T^{-2}	T^{-1}	T^0
ref. (2)	T^{-2}	T^{-2}	T^{-1}

TABLEAU I

CALCULS DE LA DEPENDANCE EN TEMPERATURE DES TEMPS MOYENS DE
 COLLISION t_{ff} FERMION PAR FERMION, t_{if} FERMION PAR IMPURETE,
 t_{fi} IMPURETE PAR FERMION.

LEGENDE DE LA FIGURE

*Courbes de s paration de phase et de transition super-
fluide d'apr s ref. 4   8.*



B/ ETUDE EXPERIMENTALE

I - INTRODUCTION

La présence d'un flux de chaleur dans les mélanges isotopiques d'hélium liquide peut perturber assez sérieusement les solutions homogènes. Roberts et Sydoriak¹ ont les premiers suggéré que des flux de chaleur susceptibles de provoquer une ébullition locale entraînaient des gradients de concentration importants dans le liquide. L'³He est transféré sous forme de bulles de vapeur des zones les plus chaudes vers les parties froides ou la surface libre du liquide. Des mesures récentes² destinées à déterminer la température de transition superfluide dans quelques mélanges concentrés en ³He ont prouvé l'importance de ce phénomène. En présence de flux de chaleur provoquant une ébullition locale les variations de concentration peuvent atteindre par endroits 7% à 10%.

Lorsque le flux de chaleur est insuffisant pour provoquer l'ébullition locale, il subsiste cependant une diffusion des isotopes due à la présence d'un gradient de température (effet Soret). Cette diffusion est responsable d'un gradient de concentration dans le mélange liquide. G. Ahlers³ a constaté, en étudiant la transition superfluide, par mesure de la conductibilité thermique dans un mélange contenant 15% d'³He, que ce gradient de concentration amène un élargissement de la transition. Il observe que la transition s'effectue dans un intervalle de température ΔT_x au lieu d'apparaître à une température bien déterminée T_x . Il est donc fondamental dans toutes les mesures sur les mélanges d'hélium de connaître l'importance de ce phénomène perturbateur.

Dans les solutions superfluides diluées en ³He, I.M. Kalatnikov et V.N. Zharkov⁴ ont calculé les coefficients de transport. Ils ont en particulier pu établir que pour des solutions diluées (dans le cadre du modèle à 2 fluides pour l'⁴He) le gradient de température ΔT est responsable d'un gradient de concentration Δx_3 à une température T :

$$(1) \Delta \chi_3 = - \frac{\Delta T}{T} \cdot \Gamma$$

avec

$$(2) \Gamma \approx \frac{\lambda m_3}{k}$$

x_3 est la concentration molaire d' ^3He , m_3 est la masse de l'atome d' ^3He , k la constante de Boltzmann et λ l'entropie par unité de masse de l' ^4He .

Les mesures de G. Ahlers³ sont décrites de manière satisfaisante en utilisant la valeur de Γ déterminée à partir de la relation (2).

Par ailleurs T.P. Ptukha⁵ a pu, pour des solutions superfluides très diluées en ^3He , vérifier les prévisions théoriques en mesurant la conductibilité thermique effective.

Dans les mélanges liquides dilués d' ^4He dans l' ^3He la situation est tout à fait différente puisque ces solutions ne sont pas superfluides. Zharkov et Silin⁶ ont cherché à évaluer les coefficients de transport dans ces solutions en considérant l' ^4He comme un gaz de quasiparticules dans un liquide de Fermi. Cette description semble d'ailleurs justifiée puisqu'elle permet d'expliquer des propriétés d'équilibre de ces mélanges⁷⁻⁸. Dans leurs calculs, Zharkov et Silin⁶ ont été amenés à effectuer certaines approximations qui ont été par la suite contestées par Legget et Ter Haar⁹. Dans leur étude théorique des propriétés de transport, H. Dandache, J.P. Laheurte et M. Papoular¹⁰ ont discuté les différentes approximations effectuées successivement par Zharkov et Silin⁷, et Legget et Ter Haar⁹, et ont établi la variation des coefficients de transport dans ces solutions qui permettent de vérifier les prévisions théoriques.

avec la température. Il n'existe malheureusement pas de résultats expérimentaux sur les propriétés de transport

Aussi pour établir l'influence d'un gradient de température en tant qu'élément perturbateur dans les mesures sur les mélanges dilués en ^4He et éventuellement apporter des informations sur les propriétés de transport de ces solutions, nous avons mesuré la diffusion des isotopes en présence d'un gradient ∇T .

Dans la seconde section, nous montrons que la mesure du rapport de thermodiffusion k_T , qui lie les coefficients de diffusion D et de diffusion thermique D' ,

$$(3) \quad k_T = \frac{D'}{D}$$

fournit les indications sur les variations des fonctions de distribution par rapport à l'équilibre.

Dans la troisième section, nous décrivons l'appareil expérimental et la méthode de mesure. Cette technique originale utilise le fait que les volumes moyens effectifs occupés par les deux isotopes dans le liquide sont différents.

Dans la quatrième section, nous présentons les premiers résultats obtenus pour deux mélanges dilués en ^4He et discutons les différents mécanismes responsables des gradients de concentration observés.

Enfin dans la conclusion, nous tirons les conséquences des valeurs de k_T obtenues et discutons les améliorations possibles et perspectives pour ce type de mesure.

2 - RAPPORT DE THERMODIFFUSION k_T

Dans un mélange dilué en ^4He le courant d'impuretés (^4He), \vec{I} , est lié aux gradients de température et concentration ¹¹.

$$(4) \quad \vec{I} = -\rho D \left(\nabla c + \frac{k_T}{T} \nabla T \right)$$

ρ est la densité du mélange et ∇c le gradient de concentration massique d' ^4He .

Dans l'état stationnaire, $i = 0$, la mesure de Δc et ΔT permet de déterminer le rapport de diffusion thermique k_T

$$(5) \quad k_T = -T \frac{\Delta c}{\Delta T}$$

Les calculs ^{6,10} de k_T à partir de l'équation de Boltzmann, donnent des résultats différents suivant la nature des approximations faites. Il est intéressant de souligner l'origine de cette différence, et de montrer que la valeur de k_T fournit des informations sur la variation des fonctions de distribution des particules par rapport à l'équilibre.

Les impuretés ^4He se comportent comme un gaz de quasiparticules dont le spectre d'énergie est ⁷ :

$$(6) \quad E = -E_4 + \frac{q^2}{2m_4^*}$$

L'énergie de liaison d'un atome d' ^4He dans le liquide, $-E_4$, et la masse effective de la quasiparticule, m_4^* , sont supposées constantes ⁷⁻⁸. L'impulsion de la quasiparticule est q .

Dans la limite basse température ($T \ll 0,1\text{K}$), les variations δn_i , de la fonction de distribution des impuretés par rapport à l'équilibre, sous l'influence des gradients de température ou concentration, s'écrivent ¹⁰ :

$$(7) \quad \delta n_{i1} = -n_{i0} \cdot f(T) q^r \cdot \frac{\Delta c}{c}$$

$$(8) \quad \delta n_{i2} = -n_{i0} f(T) q^r \left(\frac{q^2}{2 m_q^2 K_B T} - \frac{3}{2} \right) \frac{\Delta T}{T}$$

n_{i0} est la fonction de distribution de ${}^4\text{He}$ à l'équilibre. C'est celle d'un gaz de Boltzmann dilué ¹²

$$(9) \quad n_{i0} = \frac{x}{V} N_0 \left(\frac{2\pi h^2}{m_q^2 K T} \right)^{3/2} e^{-\frac{q^2}{2 m_q^2 K T}}$$

N_0 est le nombre d'Avogadro, x et V sont respectivement la concentration molaire initiale d' ${}^4\text{He}$ et le volume molaire du mélange.

$f(T)$ est une fonction de la température qui est différente ⁶⁻¹⁰ suivant la valeur de l'exposant r de q .

Le courant d'impuretés est par définition :

$$(10) \quad \vec{i}_1 = \int \vec{q} \delta n_{i1} d\vec{q} = -\rho D v c$$

$$(11) \quad \vec{i}_2 = \int \vec{q} \cdot \delta n_{i2} d\vec{q} = -\rho D K_T \frac{\nabla T}{T}$$

Divisant les relations (11) et (10) et utilisant les équations (7) et (8), il vient :

$$(12) \quad K_T = +x \frac{\int q^{r+3} \cdot e^{-\left(\frac{q^2}{2 m_q^2 K T}\right)} \left(\frac{q^2}{2 m_q^2 K T} - \frac{3}{2}\right) dq}{\int q^{r+3} \cdot e^{-\left(\frac{q^2}{2 m_q^2 K T}\right)} dq}$$

En intégrant le numérateur par parties, il est facile d'établir :

$$(13) \quad k_T = + c \frac{r+1}{2}$$

Ce résultat est très important. Il indique en effet ¹¹ que k_T est bien proportionnel à c , le coefficient de proportionnalité étant lié à l'exposant r de q dans les relations (7) et (8).

Une mesure de k_T fournit la valeur de r . Dans la limite des solutions très diluées à basse température, la connaissance de r permettrait de vérifier la validité des approximations faites dans les calculs théoriques avec ¹⁰ $r=3$ donc $k_T = 2c$. Cependant ces calculs à partir de l'équation de Boltzmann sont uniquement valables à très basses températures, où la mesure de k_T est difficile. En effet les concentrations molaires des mélanges stables sont alors très faibles et il est difficile de détecter les variations de concentration engendrées par le flux de chaleur. A plus haute température et pour des solutions moins diluées, ce qui correspond au domaine de nos mesures, le calcul de δn_i n'a pas été effectué. On est alors conduit à utiliser un traitement thermodynamique phénoménologique¹⁰. La valeur expérimentale de k_T , sa variation avec la concentration comparée avec l'équation (13) est toutefois intéressante ¹³ car elle peut permettre de déterminer qualitativement l'influence de la température et de la concentration sur δn_{i2} .

3 - TECHNIQUES EXPERIMENTALES

La détermination du coefficient k_T se fait en mesurant simultanément le gradient de température et le gradient de concentration dans l'état stationnaire. La technique habituellement utilisée dans les liquides¹⁴ consiste à prélever des échantillons aux points le plus chaud et le plus froid et à mesurer leurs concentrations respectives. Cette méthode est difficilement applicable dans les mélanges isotopiques d'hélium. Il faut en effet refroidir ces solutions dans une gamme de température $\approx 1K$. Nous avons donc été amené à utiliser une méthode originale pour mesurer les gradients de concentration provoqués par un flux de chaleur.

(a) Appareil cryogénique et mesure de température /

L'appareil cryogénique permettant de refroidir les mélanges isotopiques d'hélium est schématisé fig.1. La réduction de la pression, par pompage successivement au-dessus d'un bain de 6 litres d'⁴He liquide puis d'un réservoir (1) contenant 20cm³ d'⁴He liquide, abaisse la température à 1,2K puis $\approx 0,9K$. La partie supérieure du porte-échantillon (fig.1) est en contact thermique avec le réservoir (2) d'³He liquide. La partie inférieure de ce porte-échantillon dans lequel est condensé le mélange à étudier, est par contre en contact thermique avec un sel paramagnétique d'alun de fer ammonium.

Le pompage du gaz au-dessus de l'³He liquide ($\approx 1,2cm^3$) permet d'atteindre une température $\approx 0,3K$. La désaimantation adiabatique du sel paramagnétique, initialement placé dans un champ magnétique de 20 kOe, produit par une bobine supraconductrice, peut réduire la température de 0,9K à 0,2K. Nous disposons ainsi de deux réfrigérateurs. En utilisant l'un ou l'autre de ces réfrigérateurs, nous

modifions la position du point le plus froid dans le liquide, couche supérieure ou couche inférieure du liquide.

Deux résistances de carbone R_1 et R_2 (220 Ω speer) sont fixées sur les plaques de cuivre qui constituent les parties supérieures et inférieures du porte-échantillon (fig.2). Ces résistances, en bon contact thermique avec les couches supérieures et inférieures du liquide, sont utilisées comme thermomètres. Ces thermomètres secondaires sont étalonnés au-dessus de 1,2K à partir de la mesure de la tension de vapeur de l' ^4He liquide pur. En-dessous de cette température, nous utilisons la mesure de susceptibilité magnétique d'un sel de nitrate de cerium magnésium.

Cet étalonnage nous permet de relier les valeurs de la résistance R à la température T par des lois du type

$$(14) \quad T = \frac{(\log R)^2}{a_0 + a_1 \log R + a_2 (\log R)^2 + a_3 (\log R)^3}$$

où a_0 , a_1 , a_2 et a_3 sont des paramètres.

La précision sur la température absolue est estimée à $\pm 2\%$. Dans ce type de mesure de l'effet Soret c'est bien sûr la variation entre l'état initial et final qui nous intéresse. Dans ces conditions c'est l'incertitude relative sur la variation de température provoquée par le flux de chaleur qui est importante. Cette incertitude relative est d'autant plus grande que la variation de température est faible.

(b) Mesure des concentrations /

La mesure des concentrations des couches inférieures et supérieures du liquide s'effectue dans le porte-échantillon représenté (fig.2). Le corps du porte-échantillon est en inox pour permettre l'établissement du gradient de température. Les concentrations aux points froid et chaud du liquide sont déterminées par mesure de la constante diélectrique. Les couches inférieures et supérieures du

liquide dans le porte-échantillon constituent les diélectriques de deux condensateurs plans. Les armatures de ces condensateurs sont formées par des plaques en cuivre de 2 à 3mm d'épaisseur. Les surfaces en regard des armatures sont isolées. La distance entre deux armatures d'un condensateur est déterminée par des espaceurs en quartz (fig.2) de 0,03mm d'épaisseur. Ces condensateurs plans dont la capacité est ≈ 60 pf font partie de deux circuits oscillants à diodes tunnel, dont tous les autres éléments sont maintenus à température fixe. Les fréquences délivrées par ces oscillateurs nous fournissent alors une mesure directe des constantes diélectriques des couches inférieures et supérieures du liquide. Les fréquences d'oscillation sont ≈ 10 MHz tandis que la stabilité de fréquence est $\approx \pm 5 \cdot 10^{-7}$. Pour chaque oscillateur nous mesurons les fréquences F_0 et F'_0 avant l'introduction du mélange. Les variations de fréquence $F_1 - F_0$ et $F_2 - F'_0$ dues à l'influence du diélectrique liquide sont importantes ≈ 50 KHz. Elles nous permettent également de vérifier le niveau de remplissage du porte-échantillon. En particulier nous pouvons ainsi nous assurer que le liquide remplit entièrement tout l'espace entre les armatures du condensateur plan supérieur (fig. 2).

La fréquence d'un oscillateur est reliée à la susceptibilité électrique χ du liquide par :

$$(15) \quad F = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{C_1}{C_2 + \frac{\epsilon_0 S}{e} (1 + \chi)}}$$

C_1 et C_2 sont des constantes >0 ; S est la surface en regard des armatures ; e la distance entre ces armatures et ϵ_0 la constante diélectrique du vide.

La susceptibilité électrique χ est liée au nombre de particules par unité de volume n par la relation de Clausius Mosotti

$$(16) \quad \frac{nq}{3\epsilon_0} = \frac{\chi}{3 + \chi}$$

où α représente la polarisabilité des molécules.
 Pour 1^3He , 1^4He ou les mélanges isotopiques d'hélium
 liquide, α est identique et $\chi \ll 1$.

Il est dans ces conditions possible d'obtenir des équations
 (15) et (16)

$$(17) \quad \frac{F - F_0}{F_0} \approx - C_0 n$$

la constante C_0 étant donnée par :

$$(18) \quad C_0 = \frac{1}{2} \frac{S \alpha}{C_2 e + \epsilon_0 S}$$

F_0 est la fréquence mesurée avant l'introduction du mélange
 c'est à dire pour $\chi = 0$.

En mesurant la fréquence F nous détectons la densité de
 particules n présente entre les armatures. Le nombre
 de particules par unité de volume dépend bien sûr de la
 concentration molaire d' ^4He , x :

$$(19) \quad n = \frac{1}{x v_4 + (1-x) v_3}$$

v_4 et v_3 représentant respectivement les volumes occupés
 par un atome d' ^4He ou d' ^3He dans la solution. Nous obtenons
 alors à partir des relations (17) et (19) que la variation
 de fréquence ΔF observée sous l'influence d'une variation
 de température locale ΔT dépend à la fois de la variation
 de concentration Δx et de ΔT .

$$(20) \quad \frac{\Delta F}{F - F_0} \approx \left[n(v_4 - v_3) \Delta x + \alpha_p \Delta T \right]$$

α_p est le coefficient de dilatation volumique de 1^3He
 liquide. La différence des volumes moyens occupés par les

atomes d' ^4He et d' ^3He dans une solution diluée en ^4He est connue ¹⁵

$$(21) \quad v_4 = v_3 (1 + \beta)$$

avec $-\beta=0,33$. Il faut souligner que c'est cette différence des volumes ($\beta \neq 0$) qui nous permet de détecter Δx par mesure de la variation de fréquence.

(c) Méthode expérimentale /

Tout d'abord le mélange liquide est en équilibre à une température donnée, déterminée par les valeurs de résistances R_1 et R_2 . A cette température nous mesurons les fréquences respectives F_1 et F_2 des deux oscillateurs. Le gradient de température entre les couches supérieures et inférieures du liquide est alors produit en envoyant une puissance de chauffage connue dans l'une ou l'autre des résistances de constantan H_1 ou H_2 (fig.2). La température du point le plus froid du liquide peut éventuellement être maintenue constante en présence de ce flux de chaleur, en modifiant la puissance frigorifique du réfrigérateur.

Pour chaque couche du liquide, nous mesurons les variations de température ΔT_1 et ΔT_2 provoquées par le flux de chaleur ainsi que les variations de fréquence des deux oscillateurs ΔF_1 et ΔF_2 . Nous avons alors, en supposant les températures moyennes des deux couches de liquide T_1 et T_2 :

$$(22) \quad \frac{-\Delta F_1}{F_1 - F_0} = n(v_4 - v_3) \Delta x_1 + \alpha_p(T_1) \cdot \Delta T_1$$

$$(23) \quad \frac{-\Delta F_2}{F_2 - F'_0} = n(v_4 - v_3) \Delta x_2 + \alpha_p(T_2) \cdot \Delta T_2$$

Bien entendu, pour des variations faibles autour de l'équilibre $T_1 \approx T_2$.

Le gradient total de concentration dans le liquide résultant de la perturbation que nous avons créée est :

$$\Delta x = \Delta x_1 - \Delta x_2$$

Il peut être relié aux variations de fréquence mesurées dans les deux oscillateurs. En utilisant (22) et (23) nous obtenons alors :

$$(24) \quad \Delta x \approx \frac{(1 + \beta x) \left[\frac{\Delta F_1}{F_0 - F_1} - \frac{\Delta F_2}{F_0 - F_2} - \alpha_p(T_1) \Delta T_1 + \alpha_p(T_2) \Delta T_2 \right]}{\beta}$$

Le gradient de température ΔT dans le liquide, provoqué par le flux de chaleur, est déterminé en mesurant les variations des résistances R_1 et R_2 .

$$(25) \quad \Delta T = \Delta T_1 - \Delta T_2$$

Les valeurs du coefficient de dilatation volumique α_p sont connues ¹⁶, et nous pouvons ainsi tenir compte de cette correction due à la variation de température pour calculer (24) le gradient de concentration molaire dans le liquide.

La concentration massique c est liée à la concentration molaire x par l'intermédiaire des masses des deux isotopes m_4 et m_3 :

$$(26) \quad c = \frac{m_4 x}{m_3 (1-x) + m_4 x}$$

Nous pouvons aussi lorsque les gradients sont faibles déduire des mesures, le rapport de thermodiffusion à partir des relations (5), (24) et (26) :

$$(27) \quad k_T \approx - T \frac{m_4}{m_3} \frac{\Delta x}{\Delta T}$$

Pour une température T donnée, nous faisons varier la puissance de chauffage de manière à obtenir pour différents gradients de température, les gradients de concentration correspondants. Nous vérifions que l'état stationnaire est atteint en observant l'équilibre des fréquences et de températures en présence du flux de chaleur.

IV - RESULTATS

Nous avons étudié deux mélanges de concentration molaire d' ^4He 2,5% et 13,5%.

Une étude systématique en fonction du gradient de température a été effectuée sur la solution à 2,5% sous pression de vapeur saturante. Le niveau supérieur du liquide est situé, dans le capillaire de remplissage au-dessus de la boîte (fig.2). La température du point froid, correspondant au point le plus bas de notre boîte, est $\approx 1,26\text{K}$. La température de la couche supérieure du liquide varie jusqu'à plus de 2K . Les variations relatives de fréquence mesurées sont présentées fig. 3 pour les deux oscillateurs. Dans ce diagramme, nous n'avons pas directement les variations de concentration puisque nous ne tenons pas compte de l'influence de la dilatation volumique. Cependant, il est intéressant de remarquer que l'échelle des variations relatives de fréquences $\frac{\Delta F}{F \frac{1-F_0}{1-F_0}}$ est proportionnelle à celle de la variation de concentration (fig.3). On constate tout d'abord que pour des gradients de température $\leq 0,2\text{K}$, les variations de fréquence restent faibles. Dans cette gamme, une analyse détaillée des mesures pour obtenir k_T est difficile car à cette température, l'influence de la dilatation

volumique est forte. Toutefois, nous observons que k_T est négatif et les atomes d' ^4He diffusent donc vers le point le plus chaud (Δx et ΔT sont de même signe).

Par contre, pour des $\Delta T > 0,2\text{K}$, la diminution de fréquence observée au point le plus froid caractérise localement l'augmentation de la concentration en ^4He (Δx et ΔT de signes opposés). Pour de tels gradients de température, l'ébullition locale des atomes d' ^3He au point chaud s'accompagne donc d'un transfert d' ^4He vers le point froid. L'état stationnaire est atteint lorsque la vaporisation a provoqué une augmentation de la pression du gaz jusqu'à sa valeur d'équilibre, à la température considérée.

Cette expérience montre que très rapidement l'ébullition provoque des variations relatives de concentration considérables. Elle confirme ainsi que les résultats obtenus lors des mesures de résistance thermique superficielle dans les mélanges ² peuvent être expliqués par la formation de couches de liquide plus concentrées en ^4He sous l'influence de l'ébullition.

Nous avons étudié ce même mélange à plus basse température, $T=0,7\text{K}$ lorsque l'influence de la dilatation volumique est moins forte. En provoquant des déséquilibres de température faibles $\frac{\Delta T}{T} < 10\%$ (fig.4), nous avons déterminé les variations de concentration résultantes, tenant en compte les effets de dilatation volumique (equ. 24). Nous obtenons alors une valeur du rapport de thermodiffusion,

$$k_T \approx -33 \cdot 10^{-2} \approx -10 c$$

puisque la concentration massique de notre mélange est $c \approx 3,3\%$. Finalement nous avons étudié un mélange de concentration molaire d' ^4He (13,5%), $c \approx 18\%$, de manière à observer plus facilement les variations de concentration tout en restant dans le domaine linéaire des faibles perturbations qui caractérise le traitement d'Onsager ¹⁷. Les résultats obtenus pour ce mélange sont présentés fig.5

et nous permettent d'obtenir :

$$k_T \approx -2,46 = -14c$$

Sous l'influence de gradients de température plus élevés nous observons l'apparition de l'ébullition qui tend à modifier le sens de variation de Δx et ne permet plus une analyse simple des résultats à partir de (24).

V - C O N C L U S I O N

Nous avons tout d'abord mis en évidence l'importance des phénomènes d'ébullition locale qui se manifeste par la vaporisation d' ^3He et le transfert d' ^4He vers les zones les plus froides du liquide. C'est un facteur de perturbation important puisqu'il entraîne alors des gradients de concentration considérables en présence des gradients de température.

Par ailleurs, nous avons pu estimer le rapport de thermodiffusion effectif pour deux mélanges, $k_T \approx -10c$. L'incertitude relative est grande $\approx 30\%$. Le signe négatif indique que le courant d'impuretés tend à accroître la concentration d' ^4He au point le plus chaud. Le traitement quantique 10 ayant permis de calculer k_T n'est certainement pas applicable à haute température ; nous obtenons d'ailleurs un signe différent de celui attendu (13). Ce résultat n'est pas surprenant. D'une part il existe de nombreux systèmes 18 dans lesquels on observe une inversion du signe de k_T (dans la solution benzène - méthanol k_T devient >0 pour les faibles concentrations). D'autre part, les expressions théoriques de δn_{11} et δn_{12} (7) et (8) ne seront certainement pas les mêmes à haute température $T > 0.1\text{K}$ et pour des solutions moins diluées.

Le choix d'un potentiel d'interaction différent du potentiel de contact l_0 , une variation de m_4^* avec la température conduisant à des résultats différents pour δn_{12} donc pour k_T .

De plus il faut souligner que les conditions expérimentales déterminent un paramètre ¹⁸ :

$$(28) \quad R = \gamma \frac{K_T}{T} \frac{\rho g}{\eta D} d^4 (T_{\text{bas}} - T_{\text{haut}})$$

η et γ sont respectivement la viscosité et le coefficient de dilatation massique du mélange, d est la distance entre les couches froides et chaudes du liquide, g l'accélération de la pesanteur. Lorsque $R > 720$ on observe une instabilité due à la convection. Dans les mélanges ou $k_T < 0$, cette instabilité n'apparaît que si le point froid est situé le plus bas. Nous mesurons alors k_T effectif qui tient compte à la fois de la convection et de la thermodiffusion. C'est le cas dans nos expériences puisque nous avons $R > 720$. La géométrie du porte-échantillon, choisie pour correspondre à des conditions expérimentales usuelles dans ces mélanges, conduit en effet à effectuer nos mesures dans la région d'instabilité. Nous avons remarqué que les temps de mise en équilibre thermique et de concentration étaient courts (environ quelques minutes) ce qui confirme encore le caractère dominant de la convection, Il faut également signaler que lorsque le point le plus bas du liquide est le plus chaud, nous observons des fluctuations périodiques (environ quelques minutes) de concentration autour de la valeur moyenne. Notons que dans les mélanges liquides ou $k_T < 0$, on s'attend à des oscillations de concentration de faible amplitude et longue période ¹⁸.

Ces premières expériences ont montré que cette technique particulière permet de mesurer le rapport de thermodiffusion dans les mélanges liquides binaires s'il existe une différence entre les volumes occupés par les deux constituants.

Une augmentation de la stabilité de fréquence devrait permettre d'accroître la précision sur k_T . Il serait également intéressant pour réduire les erreurs, de mesurer le coefficient de dilatation volumique dans le même porte-échantillon au cours de l'expérience. De nouvelles expériences peuvent être envisagées.

- Une étude systématique de la thermodiffusion dans ces mélanges en fonction de la température et de la concentration devrait permettre de détecter une inversion éventuelle du signe de k_T . Il faudrait également modifier les conditions expérimentales en réduisant la distance entre les points chauds et froids pour décrire les zones d'instabilité et de stabilité ($R \lesssim 720$) et discerner les différentes contributions de k_T effectif.

Au voisinage du point tricritique dans ces mélanges, le rapport k_T doit diverger¹⁹. Nous avons établi que ce coefficient peut être mesuré et une étude dans un régime transitoire¹⁴ peut fournir des informations sur le comportement des coefficients de diffusion D et de thermodiffusion D' .

R E F E R E N C E S

- 1 - T.R. ROBERTS et S.G. SYDORIAK, Phys. Fluids 3, 895 (1960)
- 2 - J.P. LAHEURTE et F.D. MANCHESTER, Cryogenics
- 3 - G. AHLERS, Phys. Rev. Lett. 24 - 24 - 1333 (1970)
- 4 - I.M. KHALATNIKOV et V.N. ZHARKOV, J.E.T.P. 32, 1108 (1957)
Sov. Phys. J.E.T.P. 5, 905 (1957)
- 5 - F.P. PTUKHA, J.E.T.P. 40, 1583 (1961),
Sov. Phys. J.E.T.P. 13, 6 -1112 (1961)
- 6 - V.N. ZHARKOV et V.P. SILIN, J.E.T.P. 37, 1430 (1959),
Sov. Phys. J.E.T.P. 37, 10 (1970)
- 7 - W.F. SAAM et J.P. LAHEURTE, Phys. Rev A 4, 3 - 1170 (1971)
- 8 - J.P. LAHEURTE et J.R.G. KEYSTON, Cryogenics 485 (1971)
- 9 - A.J. LEGGET et D. TER HAAR, Phys. Lett. 11, 2 - 129 (1964)
- 10 - H. DANDACHE, J.P. LAHEURTE et M. PAPOULAR - article joint
- 11 - S.R. DE GROOT et P. MAZUR, Non Equilibrium Thermodynamics
North Holland Pub. Co, 1969 - Ch. XI.
- 12 - L. LANDAU et E. LIFSCHITZ, Physique Statistique -
Ch; IV et V - Editions Mir Moscou (1967)
- 13 - Pour des solutions diluées en ^4He , les équations 34 et 50 de ref. 10 pour J_{if} font prévoir les formes de δn_{i1} et δn_{i2} equ. (7) et (8) de ce travail si l'on admet toujours le modèle du gaz de particules sans interactions et un potentiel de contact entre particules.

- 14 - G.I. BOBRWA et G.D. RABINOVICH, Non stationary heat and mass transfer p. 67 - 1965 - Academy of Sciences Belorussian (IPST - Jerusalem 1967)
- 15 - E.C. KERR, Low Temp. Phys. and Chem. Dillinger U. of Wisconsin Press , 1958 p. 158
- 16 - J. WILKS - The properties of liquid and solid helium - Clarendon Press - Oxford 1967 - Table A9 p. 672.
- 17 - Ce traitement appliqué aux solutions diluées en ^4He est présenté ref. 10.
- 18 - M. G. VELLARDE et R.S. SCHECHTER - Chem. Phys. Lett. 12, 2 - 312 (1971) et Phys. Fluids 15, 10, 1707 (1972)
- 19 - H. DANDACHE, J.P. LAHEURTE et M. PAPOULAR - à paraître.

--- LEGENDE DES FIGURES ---

Fig. 1 - Appareil cryogénique

Fig. 2 - Porte-échantillon

R_1 et R_2 - résistances de carbone 220Ω Speer
utilisées comme thermomètres.

Les deux plaques de cuivre formant les armatures
d'un condensateur sont pressées l'une contre
l'autre par l'intermédiaire d'une lame ressort.
Celle-ci est fixée à un fil de cuivre qui sert
également d'électrode et dont le passage à travers
une porte de verre assure l'isolement électrique de
la seconde armature.

Fig. 3 - Variations de fréquences observées aux points
froid et chaud en fonction du gradient de
température. Δx fournit l'échelle de variation de
la concentration.

Fig. 4 - Gradient de concentration en fonction du gradient
de température dans le liquide ($x = 2,5\%$)

Fig. 5 - Gradient de concentration en fonction du gradient
de température dans le liquide ($x = 13,5\%$).

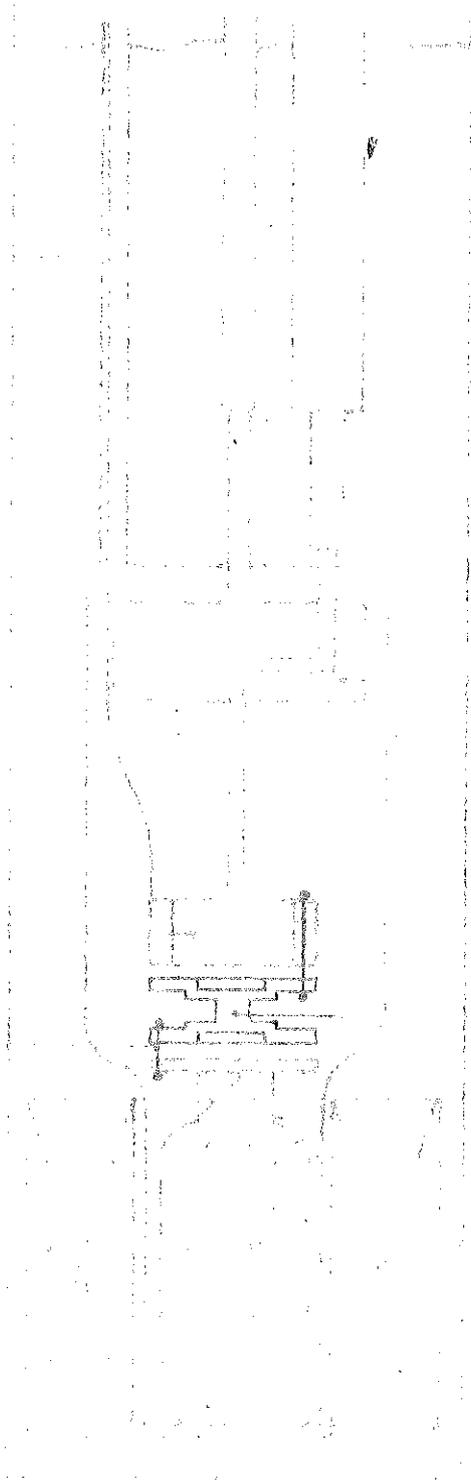


Fig 1

Capillaire de remplissage

Condensateur plan

Espaceurs quartz

Joint indium

Inox

1 cm

H_1

R_2

H_1 et H_2
résistance de chauffage
en constanten

Fig 2

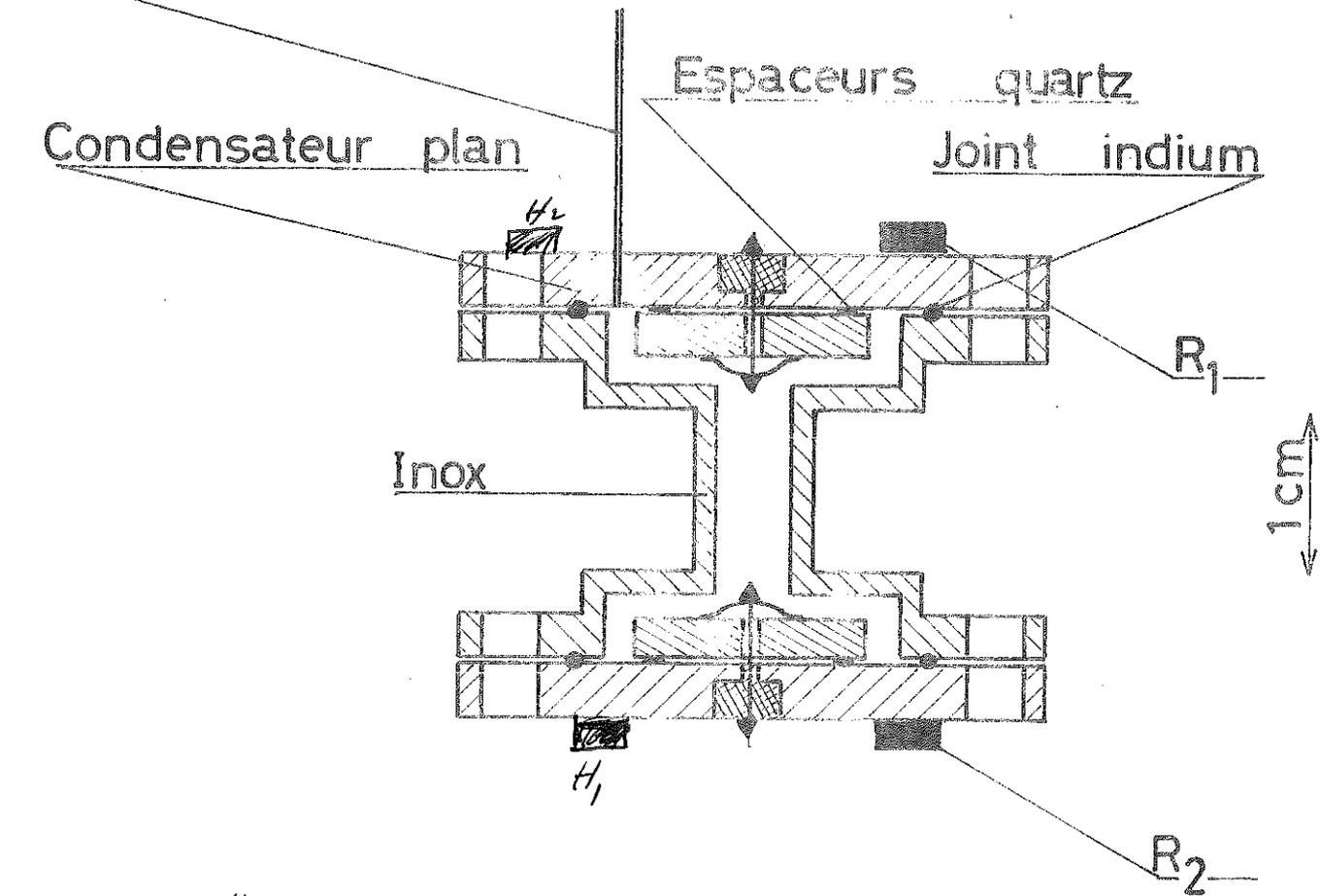


Fig 3

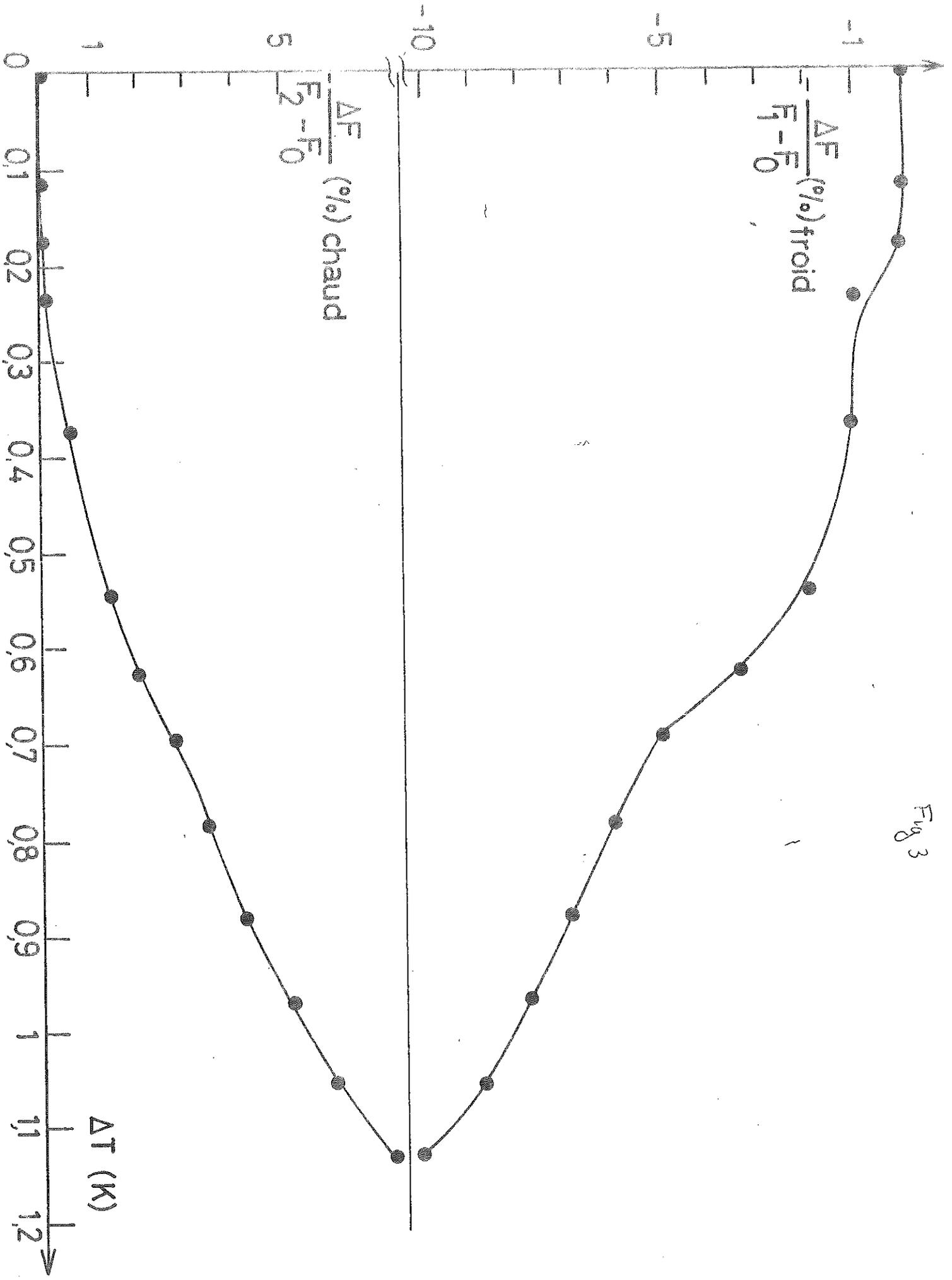
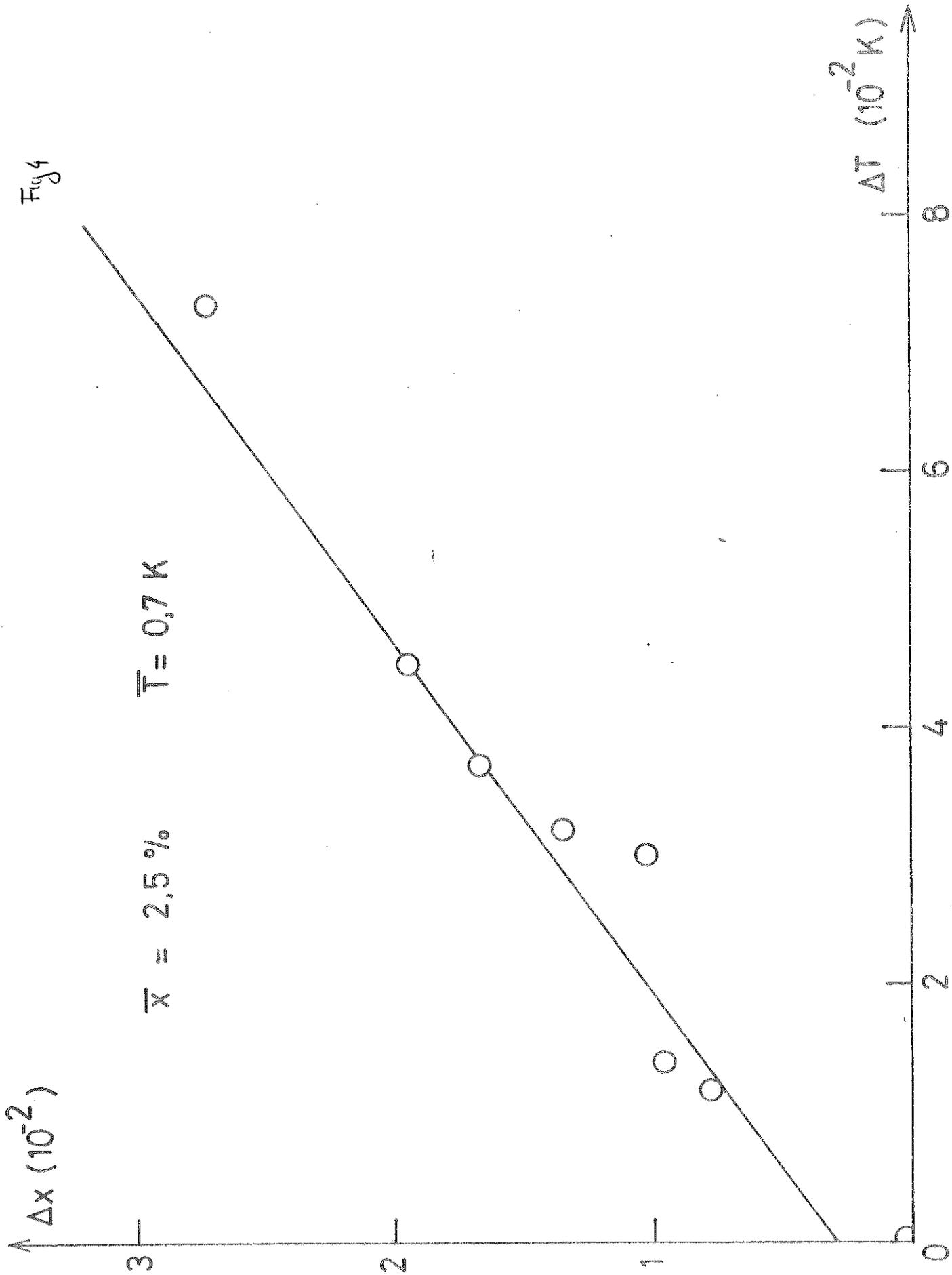


Fig 4



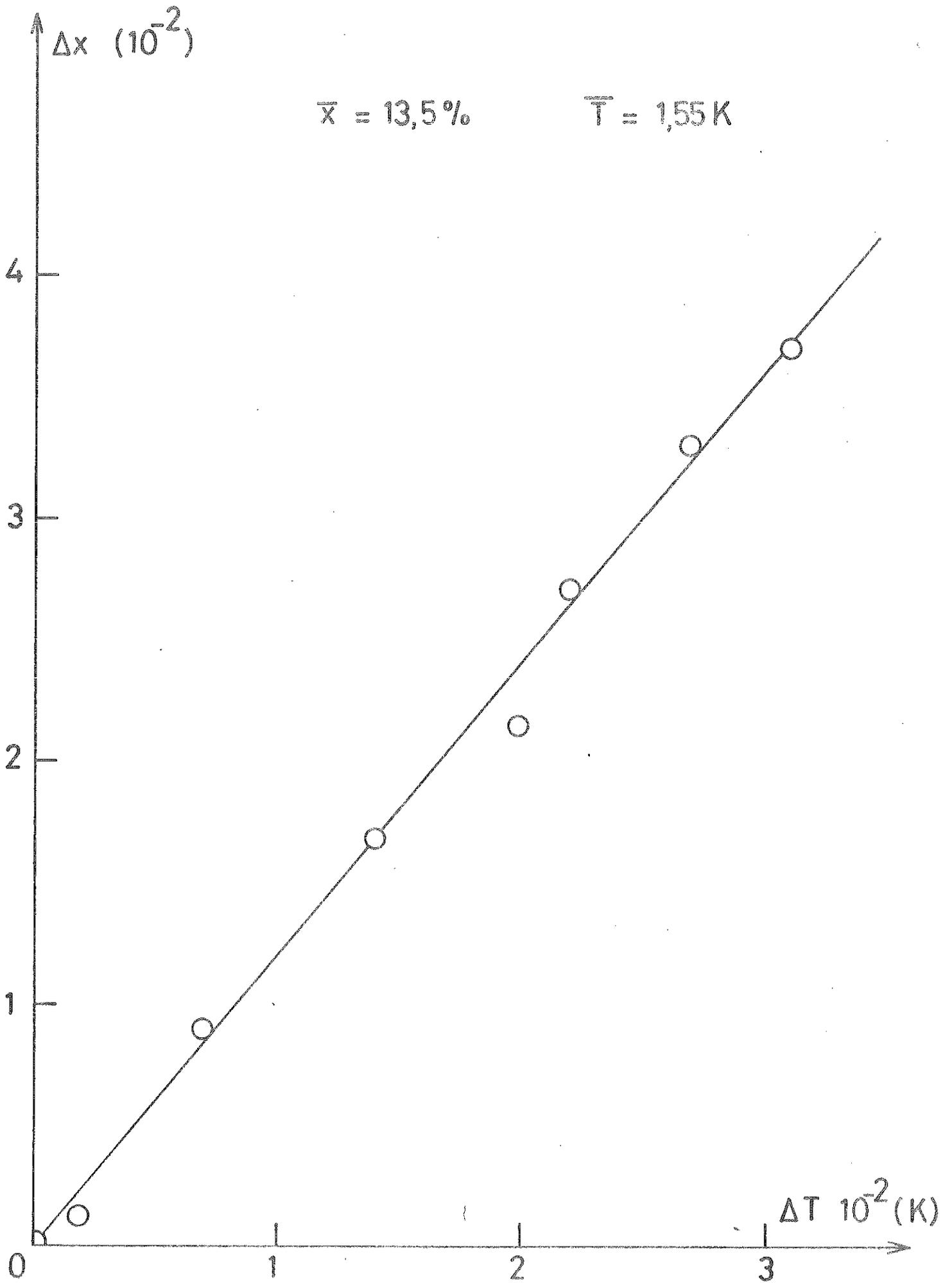


Fig 5