Facteur de dépolarisation de l'hélium gazeux

Y. Le Duff

► To cite this version:

Y. Le Duff. Facteur de dépolarisation de l'hélium gazeux. Journal de Physique Lettres, 1979, 40 (13), pp.267-269. 10.1051/jphyslet:019790040013026700 . jpa-00231622

HAL Id: jpa-00231622

<https://hal.science/jpa-00231622>

Submitted on 1 Jan 1979

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

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

Classification
 Physics Abstracts
 33.20F — 34.00

Facteur de dépolarisation de l'hélium gazeux

Y. Le Duff

Département de Recherches Physiques (*), Université Paris VI, Tour 22, 4, place Jussieu, 75230 Paris Cedex 05, France

(Reçu le 8 mars 1979, accepté le 4 mai 1979)

Résumé. — Nous avons mesuré le facteur de dépolarisation de l'hélium gazeux à 296 K pour des densités allant jusqu'à 250 amagat. Nous en déduisons une valeur du facteur de dépolarisation à basse densité que nous comparons aux valeurs théoriques obtenues pour différents potentiels intermoléculaires et différentes anisotropies de polarisabilité.

Abstract. — We have measured the depolarization factor for gaseous helium at 296 K for densities up to 250 amagat. We deduce the low density value of the depolarization factor and we compare it with theoretical values obtained using various intermolecular potentials and various polarizability anisotropies.

Dans un fluide atomique, les interactions entre atomes induisent une lumière diffusée dépolarisée. Cet effet tout d'abord observé dans l'argon [1] a été depuis étudié dans plusieurs fluides atomiques et moléculaires. Une description exacte de cette diffusion induite par collision nécessite la connaissance des interactions à N corps dans le fluide. Cependant, pour les basses densités, l'approximation de paire est suffisante et dans ce cas, l'intensité dépolarisée peut être calculée à partir de l'anisotropie de polarisabilité induite pour deux atomes en collision. Aux grandes distances interatomiques (plusieurs diamètres moléculaires) cette anisotropie est essentiellement due aux interactions dipôle-induit-dipôle (DID) et a pour expression : $\beta(r) = 6\alpha^2 r^{-3}$; aux plus courtes distances, il faut également tenir compte des interactions dues au recouvrement des orbitales atomiques et il n'existe pas dans ce cas d'expression analytique satisfaisante pour $\beta(r)$. Pour les atomes les plus légers, plusieurs modèles théoriques ont été proposés pour déterminer l'anisotropie $\beta(r)$ notamment dans le cas de l'hélium qui a la structure électronique la plus simple; c'est pourquoi les mesures des intensités induites par collision ont pour ce gaz un intérêt particulier. Cependant, la très faible polarisabilité de l'hélium

$$(\alpha = 2,05 \times 10^{-25} \text{ cm}^3)$$

explique qu'actuellement peu de résultats expérimentaux soient publiés pour cet atome [2, 13].

Dans ce travail, nous avons étudié l'intensité intégrée dans l'hélium gazeux à température ordinaire pour des densités comprises entre 60 et 255 amagat. L'hélium fourni par la compagnie Matheson contenait moins de 2 p.p.m. d'impuretés. Les spectres ont été enregistrés avec un appareillage de spectrométrie Raman classique déjà utilisé précédemment [3]. Il était composé d'un laser à argon ionisé (1,4 W à 5 145 Å), d'un double monochromateur (CODERG PH1) et d'un photomultiplicateur refroidi (EMI 9558) suivi d'une chaîne de comptage. L'hélium gazeux était contenu dans une cuve à haute pression comportant 4 faces en quartz fondu disposées en croix et nous avons analysé la lumière diffusée à 90° dans un angle solide de 8×10^{-2} sr. Nous avons mesuré le facteur de dépolarisation η_s en enregistrant les spectres I_h et I_v correspondant à une polarisation de la lumière incidente respectivement parallèle et perpendiculaire au plan de diffusion; η_s est calculé à partir de la relation :

$$\eta_s \simeq \frac{1}{2} \frac{\int I_h(\nu) d\nu}{\int I_v(\nu) d\nu}.$$

L'intensité dépolarisée aux basses fréquences ($\nu < 10 \text{ cm}^{-1}$) est perturbée par des intensités parasites d'origines diverses (ouverture des faisceaux, réflexions à l'intérieur de la cuve, etc...). Pour éliminer cette intensité supplémentaire, nous avons utilisé entre -10 et $+10 \text{ cm}^{-1}$ un spectre exponentiel

(*) Laboratoire associé au Centre National de la Recherche Scientifique.

extrapolé à partir des intensités mesurées entre 10 et 40 cm⁻¹ [4].

Nous indiquons sur la figure 1 les valeurs mesurées pour η_s à différentes densités. Chaque point est une moyenne de plusieurs mesures. La courbe $\eta_s(\rho)$ en trait plein est un polynôme du 3^e degré en densité (avec le 1^{er} terme nul) obtenu par une méthode de moindre carré. La pente à l'origine est égale à :

$$\Delta\eta_s = (0,58 \pm 0,10) \cdot 10^{-6} \text{ amagat}^{-1}.$$

Le facteur de dépolarisation collisionnel est donné [1, 5] dans l'approximation de paires par :

$$\eta_s = \frac{n}{30 \alpha^2} \frac{V_M}{RT\chi_T} \int \beta^2(r) \exp(-V(r)/kT) 4 \pi r^2 dr \quad (1)$$

n est la densité numérique, $V(r)$ le potentiel interatomique, V_M le volume molaire et χ_T le coefficient de compressibilité isotherme. Dans le domaine des basses densités où la relation (1) est valable, le facteur $RT\chi_T/V_M$ peut être assimilé à l'unité. Il reste donc, pour calculer η_s , à préciser le potentiel $V(r)$ et l'anisotropie de polarisabilité $\beta(r)$. Nous avons utilisé divers potentiels interatomiques :

— un potentiel de Lennard-Jones :

$$V(r) = 4 \varepsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right] \quad (2)$$

avec $\sigma = 2,556 \text{ Å}$ et $\varepsilon = 10,22 \text{ K}$ [6];

Fig. 1. — Facteur de dépolarisation η_s en fonction de la densité ρ pour l'hélium gazeux à 296 K.

[Depolarization factor η_s versus density ρ for gaseous helium at 296 K.]

— un potentiel déduit par Beck de travaux sur le second coefficient du viriel et la viscosité de l'hélium [7] :

$$V(r) = A \exp(-\alpha r - \beta r^{-6}) - \frac{B}{(r^2 + a^2)^3} \left(1 + \frac{2,709 + 3 a^2}{r^2 + a^2} \right) \quad (3)$$

avec $A = 4,627 \times 10^6$, $B = 1,0085 \times 10^4 \text{ K Å}^{-6}$, $\alpha = 4,390 \text{ Å}^{-1}$, $\beta = 3,746 \times 10^{-4} \text{ Å}^{-6}$, $a = 0,675 \text{ Å}$;

— un potentiel utilisé par Sanda et Dalgarno [8] pour deux atomes d'hélium dans leur état fondamental, égal en unités atomiques à :

$$\begin{aligned} V(r) &= 8,27 \exp(-2,238 r) & 0,2 a_0 < r < 3,4 a_0 \\ V(r) &= 0,043(3,5 - r) + 0,034(r - 3,4) + 0,0275(3,5 - r)^3 + 0,0125(r - 3,4)^3 & 3,4 a_0 < r < 3,5 a_0 \\ V(r) &= 3,845 \times 10^{-5}(\exp(2x) - 2 \exp(x)) & 3,5 a_0 < r < 6,8 a_0 \\ x &= 6,227(1 - r/5,622) & \\ V(r) &= -\frac{1,47}{r^6} - \frac{14,2}{r^8} & r > 6,8 a_0 \end{aligned} \quad (4)$$

a_0 est le rayon de Bohr. Pour $\beta(r)$ plusieurs expressions ont été proposées. Nous avons utilisé :

— l'anisotropie calculée par Certain et Fortune [9] pour les grandes distances interatomiques :

$$\beta(r) = 6 \alpha^2 r^{-3} + 12,07 \alpha^3 r^{-6} \quad (5)$$

— l'anisotropie calculée par Oxtoby et Gelbart [10] tenant compte du recouvrement électronique :

$$\beta(r) = 6 \alpha^2 r^{-3} - 42 \exp(r/0,632) \text{ (u.a.)} \quad (6)$$

Nos résultats sont indiqués dans le tableau I. On

Tableau I. — *Facteur de dépolarisation théorique $\eta_s \times 10^6$ pour l'hélium gazeux à 1 amagat et 296 K.*

[Theoretical depolarization factor $\eta_s \times 10^6$ for gaseous helium at 1 amagat and 296 K.]

$\beta(r)$	$V(r)$		
	LJ ^(a)	SD ^(b)	Beck ^(c)
—	—	—	—
$6 \alpha^2 r^{-3}$	0,578	0,568	0,586
CF ^(d)	0,604	0,593	0,612
OG ^(e)	0,410	0,403	0,409

^(a) Relation (2).
^(b) Relation (4).
^(c) Relation (3).
^(d) Relation (5).
^(e) Relation (6).

constate que le choix du potentiel a peu d'influence sur le facteur de dépolarisation : les résultats pour les différents potentiels et une même anisotropie diffèrent

d'un maximum de 3 %. L'anisotropie de Oxtoby et Gelbart (relation (6)) conduit à une valeur de η_s trop basse ; un résultat semblable a déjà été obtenu précédemment pour le néon [11]. Par contre, la valeur expérimentale de η_s coïncide avec la valeur théorique obtenue dans l'approximation DID ; ceci est en bon accord avec un calcul récent de l'anisotropie de deux atomes d'hélium fait par Clarke *et al.* [12]. Le terme correctif en r^{-6} calculé par Certain et Fortune (relation (5)) ne modifie pas η_s de façon significative. Un travail récent de Barocchi *et al.* [13] donne une valeur expérimentale de l'intensité collisionnelle de l'hélium supérieure de plus de 70 % de la valeur théorique DID. Les écarts observés entre les deux valeurs expérimentales dépassent largement les incertitudes expérimentales indiquées pour chaque résultat et doivent être attribuées probablement aux différences dans les méthodes utilisées.

Un travail est en cours pour compléter cette étude de l'intensité intégrée par une analyse de la forme spectrale de l'intensité dépolarisée dans l'hélium gazeux à basse densité.

Bibliographie

[1] THIBEAU, M., OKSENGORN, B. and VODAR, B., *J. Physique* **29** (1968) 287.
McTAGUE, J. P. and BIRNBAUM, G., *Phys. Rev. Lett.* **21** (1968) 661.

[2] PIKE, E. R. and VAUGAN, J. M., *J. Phys. C* **4** (1971) L 362.

[3] LE DUFF, Y. and GHARBI, A., *Phys. Rev. A* **17** (1978) 1729.

[4] Cette méthode conduit à une valeur de η_s qui est environ 1 % plus grande que celle obtenue en considérant entre -10 et $+10 \text{ cm}^{-1}$ une intensité constante égale à l'intensité mesurée à $+10 \text{ cm}^{-1}$.

[5] LALLEMAND, P., *J. Physique* **32** (1971) 10.

[6] HIRSCHFELDER, J. O., CURTISS, C. F. and BIRD, R. B., *Molecular theory of gases and liquids* (Wiley, New York) 1954.

[7] BECK, D. E., *Mol. Phys.* **14** (1968) 311.

[8] SANDO, K. M. and DALGARNO, A., *Mol. Phys.* **20** (1971) 103.

[9] CERTAIN, P. R. and FORTUNE, P. J., *J. Chem. Phys.* **55** (1971) 5818.

[10] OXTOBY, D. W. and GELBART, W. M., *Mol. Phys.* **29** (1975) 1569 ; *Ibid.* **30** 535.

[11] BERARD, M. and LALLEMAND, P., *Mol. Phys.* **34** (1977) 251.

[12] CLARKE, K. L., MADDEN, P. A. and BUCKINGHAM, A. D., *Mol. Phys.* **36** (1978) 301.

[13] BAROCCHI, F., MAZZINGHI, P. and ZOPPI, M., *Phys. Rev. Lett.* **41** (1978) 1785.