Réalisation d'un dispositif de mesure de la conductibilité thermique des solides à basses températures

P.L. Vuillermoz, P. Pinard, F. Davoine

► To cite this version:

P.L. Vuillermoz, P. Pinard, F. Davoine. Réalisation d'un dispositif de mesure de la conductibilité thermique des solides à basses températures. *Revue de Physique Appliquée*, 1968, 3 (1), pp.11-14. 10.1051/rphysap:019680030101100 . jpa-00242811

HAL Id: jpa-00242811

<https://hal.science/jpa-00242811>

Submitted on 1 Jan 1968

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.

RÉALISATION D'UN DISPOSITIF DE MESURE DE LA CONDUCTIBILITÉ THERMIQUE DES SOLIDES A BASSES TEMPÉRATURES

Par P. L. VUILLERMOZ, P. PINARD et F. DAVOINE ⁽¹⁾,

Laboratoire de Physique de la Matière, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon.

(Reçu le 20 avril 1967, modifié le 3 janvier 1968.)

Résumé. — On décrit une méthode de mesure de conductibilité thermique des solides dans un domaine de températures variant de 300 °K à 90 °K et susceptible d'être prolongé jusqu'à 4,2 °K. Après étalonnage de l'appareil, le coefficient de conductibilité se déduit uniquement de la connaissance d'un flux de chaleur et d'une puissance W développée par effet Joule. L'appareil a été utilisé en particulier pour mettre en évidence les variations de la conductibilité thermique de monocristaux d'halogénures alcalins.

Abstract. — A method for measuring the thermal conductivity of materials in the solid state is described. Experiments have been made in the temperature range 300 °K to 90 °K and it is possible to operate at 4.2 °K. After calibration, the thermal conductivity is evaluated from the measurement of a heat flow and of an electric power W . The apparatus has been mainly used for studying single crystals of alkali halides.

I. Introduction. — Les mesures de conductibilité thermique des solides reposent sur des principes admis depuis longtemps et la majorité des techniques expérimentales utilisées sont basées sur l'équation de Fourier $\varphi = -k \text{ grad } T$. Dans ces conditions, il est non seulement nécessaire de connaître avec une très grande précision un flux de chaleur et une différence de température [1], [2], mais il faut, de plus, que le couplage entre l'échantillon étudié et le système détecteur soit parfait.

Or, la mesure de faibles différences de température constitue une opération très délicate entachée, la plupart du temps, d'erreurs importantes. C'est pourquoi, dans la méthode que nous avons mise au point, nous nous sommes affranchis de cette contrainte puisqu'il suffit, après étalonnage de l'appareil, de déterminer deux flux de chaleur pour calculer la conductibilité thermique de l'échantillon.

Les premières études ont été effectuées à la température ambiante [3], puis nous avons étendu le domaine d'application de notre dispositif à 90 °K et nous préparons une prochaine extension à 4,2 °K.

⁽¹⁾ Actuellement Directeur de l'Ecole Nationale Supérieure de la Métallurgie et de l'Industrie des Mines de Nancy.

II. Description du dispositif expérimental [4], [5].

— a) LE FLUXMÈTRE. — Le fluxmètre, constitué de deux cellules de 20 mm de diamètre, absolument

FIG. 1.

Schéma de principe d'une cellule expérimentale.

identiques (fig. 1), logées dans un cylindre en cuivre (diamètre 65 mm, hauteur 60 mm) supposé isotherme de température T_0 , comprend :

- Un support en cuivre de température T_0 servant de référence;
- Un module thermoélectrique (détecteur), composé d'éléments de tellure de bismuth, qui délivre une f.é.m. e proportionnelle à l'écart de température $\Delta T = T - T_0$ apparaissant à chacune de ses extrémités;
- Une chaufferette en cuivre, dont le chauffage est assuré par une résistance de constantan noyée dans une gorge située près de la surface de l'échantillon, fournit la température T à l'extrémité supérieure du détecteur.

L'assemblage mécanique de ces trois éléments est réalisé au moyen d'une vis et d'une colle (Eccobond 104) bonne conductrice de la chaleur :

- Un cylindre de cuivre (bloc mobile, hauteur 40 mm), couissant à frottement sec à l'intérieur du bloc isotherme, impose la température T_0 à l'une des faces de l'échantillon, tandis que la chaufferette maintient l'autre face à la température T .

Pour vérifier cette hypothèse, nous avons logé dans les blocs mobile et isotherme un thermocouple différentiel cuivre-constantan-cuivre relié à un galvanomètre Sefram (résistance interne 8 Ω , sensibilité 3×10^{-2} $\mu\text{V/mm}$). N'ayant enregistré aucune déviation, nous pouvons affirmer que les fluctuations de température sont inférieures à 10^{-3} °C.

L'association différentielle de tous les éléments (échantillons, détecteurs) assure à ceux-ci une excellente stabilité thermique et électrique.

b) DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL. — La figure 2 schématise le dispositif réalisé.

Le bloc isotherme (A) est suspendu par un fil d'acier (D) de 8/10 de mm de diamètre dans une enceinte métallique étanche (C). Ce fil, solidaire d'un contrepoids (P), permet d'exercer, par l'intermédiaire de deux tubes minces d'acier inoxydable, et quelle que soit la température, une pression constante de 10 kg/cm² sur l'ensemble bloc mobile-échantillon-détecteur. Cette disposition réduit au maximum l'influence des résistances de contact, améliore la qualité du couplage thermique échantillon-éléments du dispositif expérimental et rend les mesures parfaitement reproductibles. Par ailleurs, nous choisissons pour les échantillons des formes telles que leur résistance thermique soit très supérieure à la valeur des résistances de contact [3].

Un tube de pompage, à l'intérieur duquel passent les divers fils de connexion, permet d'obtenir dans l'enceinte (C) un vide résiduel inférieur à 10^{-3} torr. Ayant constaté une identité complète entre les courbes d'étalonnage tracées sous vide primaire de 10^{-3} torr et

FIG. 2. — A : Cellules expérimentales. — B : Tube mince transmettant une pression constante sur l'échantillon. — C : Enceinte de travail. — D : Fil de suspension et de traction de l'appareil. — E : Sorties électriques étanches. — F : Fuite réglable. — G : Pont de Wheatstone. — H : Enregistreur (température). — J : Enregistreur (flux de chaleur). — P : Dispositif de traction exerçant une pression constante sur l'échantillon. — PP : Pompe primaire. — Ja : Jauge type Pirani.

sous vide secondaire de 10^{-5} torr, nous en avons déduit, comme plusieurs auteurs [1], que seul le rayonnement assure le transfert d'énergie entre l'enceinte et le bloc isotherme. C'est pourquoi la vitesse de descente ou de remontée en température demeure toujours très faible (elle décroît progressivement avec la température de 5 °C/heure à moins de 1 °C/heure). Aussi, aux très basses températures, l'introduction par une fuite réglable (F) d'un gaz d'échange (hélium ou azote) s'avère nécessaire pour amener plus rapidement le dispositif expérimental à la température désirée.

III. Théorie. — La méthode utilisée pour déterminer le coefficient de conductibilité thermique d'une substance est une transposition d'une mesure de résistance électrique.

Le schéma de principe du dispositif expérimental (fig. 1) montre que l'échantillon shunte la résistance thermique R_0 du détecteur, résistance supposée connue.

Désignons par :

- R : La résistance thermique de l'échantillon;
- S et l : La surface et la longueur de l'échantillon;
- φ : Le flux traversant le détecteur;
- W : La puissance dissipée sous forme d'effet Joule dans la chaufferette;
- α : Le coefficient de Seebeck.

La f.é.m. délivrée par le module thermoélectrique s'exprime par la relation :

$$e = \alpha \Delta T = \alpha R_0 \varphi \quad \text{puisque} \quad \Delta T = R_0 \varphi.$$

La tension e sera donc proportionnelle au flux et nous définirons la sensibilité à vide de l'appareil par le rapport $\Sigma = \frac{e}{W}$ exprimé en $\mu\text{V}/\text{mW}$.

Le flux de chaleur qui parcourt l'échantillon est égal à $W - \varphi$ en supposant négligeable l'énergie rayonnante échangée à tout instant entre les surfaces latérales du détecteur ou de l'échantillon et le bloc isotherme. Une telle hypothèse introduit une erreur systématique de 2 % [3].

On peut donc écrire l'équation suivante :

$$R(W - \varphi) = R_0 \varphi \quad (1)$$

d'où :

$$\frac{1}{R} = \frac{1}{R_0} \left(\frac{W}{\varphi} - 1 \right) \quad (2)$$

soit encore $\frac{1}{R} = \frac{1}{R_0} \left(\frac{\Delta_0}{\Delta} - 1 \right)$ si Δ et Δ_0 représentent les déviations enregistrées respectivement avec et sans échantillon. On en déduit alors :

$$k = \frac{l}{SR_0} \left(\frac{\Delta_0}{\Delta} - 1 \right).$$

IV. Principe de mesure. — ÉTALONNAGE. — Pour une valeur bien déterminée de la puissance W , la tension $e = \alpha R_0 W$ délivrée par le détecteur varie avec la température. La mesure de la sensibilité $\Sigma = \frac{e}{W}$ s'obtient donc simplement en enregistrant la déviation Δ_0 .

La figure 3 montre les variations de Σ pour un domaine de températures allant de l'ambiante à 90 °K.

FIG. 3. — Sensibilité du détecteur en fonction de la température.

La résistance R_0 du détecteur constitue l'élément de comparaison et sa détermination s'effectue en mesurant respectivement le flux et la différence de température existant à ses deux extrémités.

En effet :

$$R_0 = \frac{\Delta T}{\varphi} = \frac{\Sigma \Delta T}{e}.$$

Pour cela, nous utilisons un thermocouple différentiel cuivre-tellure de bismuth N-cuivre qui possède encore un pouvoir thermoélectrique élevé aux basses températures ($75 \mu\text{V}/^\circ\text{K}$ à 77°K).

La courbe traduisant l'évolution de R_0 avec la température entre 300 °K et 90 °K est représentée par la figure 4.

FIG. 4. — Résistance thermique du détecteur en fonction de la température.

MESURE DE LA TEMPÉRATURE DU BLOC ISOTHERME.

— Une résistance de platine placée dans l'un des bras d'un pont de Wheatstone (G) indique, à tout instant, par l'enregistrement du courant de déséquilibre, la température T_0 du bloc isotherme.

Pour étalonner ce dispositif, nous substituons à la sonde une boîte de résistances de précision (boîte AOIP RD.6). Cette méthode par comparaison offre l'avantage de supprimer, pour une température donnée, l'influence des fils de liaison (fils de cuivre de 1/10 de mm de diamètre) et des défauts du pont. Les variations avec la température de l'impédance de ces fils étant inférieures à la précision du pont, nous les avons négligées : dans ces conditions, l'incertitude sur les mesures ne dépasse pas 0,5 °C.

CHAUFFAGE DE L'ÉCHANTILLON. — Une tension stabilisée (V_s) alimente la résistance de constantan (700Ω) destinée à fournir la puissance W à la chauffeferette et à l'échantillon. La valeur de cette résistance variant en fonction de la température, il convient d'établir, aux basses températures, une correction sur la puissance dissipée. Pour cela, nous enregistrons la tension V_e apparaissant aux bornes d'une résistance étalon AOIP de 1Ω placée en série avec la résistance chauffante.

D'où :

$$W = \frac{V_e}{R_e} \cdot V_s.$$

PRÉCISION. — Comme nous l'avons déjà mentionné, dans toutes les mesures s'introduit une erreur systématique due aux pertes par rayonnement des surfaces latérales [1]. A celle-ci, il convient d'ajouter les imprécisions sur la mesure du flux et des dimensions de l'échantillon, soit une erreur totale de 5 % environ.

V. Résultats expérimentaux. — L'appareil ainsi conçu permet de mesurer de faibles variations de conductibilité thermique.

Nous avons appliqué cette technique à des monocristaux d'halogénures alcalins préalablement irradiés par un faisceau d'électrons de 2 MeV. (Cette énergie est suffisante pour saturer complètement le réseau en centres colorés sur une épaisseur de plusieurs millimètres.) Jusqu'à la température de l'air liquide, aucune différence entre les échantillons vierges et les échantillons irradiés n'a été observée, ce qui justifie la prépondérance des processus « Umklapp » dans le mécanisme de transfert de la chaleur [6].

FIG. 5.

Conductibilité thermique d'un cristal de KI.

La figure 5 illustre les variations de la conductibilité thermique de KI en fonction de la température, résultats en accord avec ceux fournis par la littérature :

$$1\,000 \times 10^{-4} \text{ W/}^{\circ}\text{K.cm} \text{ à } 100 \text{ }^{\circ}\text{K} \text{ [7]}$$

$$210 \times 10^{-4} \text{ W/}^{\circ}\text{K.cm} \text{ à } 300 \text{ }^{\circ}\text{K} \text{ [8].}$$

Par ailleurs, des mesures effectuées sur des matériaux frittés montrent que leur conductibilité thermique varie beaucoup avec la température : en particulier,

FIG. 6.

Conductibilité thermique de $\text{BaTi}_{0.9}\text{Pb}_{0.1}\text{Zr}_{0.9}\text{O}_3$.

la courbe représentée par la figure 6, et obtenue avec un échantillon ferroélectrique, fait apparaître deux discontinuités du coefficient k , l'une à 263 °K, l'autre à 193 °K. Ce résultat est à rapprocher des travaux de Merz [9], [10] sur la variation de polarisation spontanée d'un tel cristal en fonction de la température.

Conclusion. — L'emploi de modules thermoélectriques à semi-conducteurs permet d'effectuer des mesures thermiques au moyen d'appareillages de conception très simple en s'affranchissant des déterminations locales de températures.

Les premières expériences ont été réalisées à 300 °K [3], et nous avons mesuré avec précision le coefficient de conductibilité thermique de divers composés semi-conducteurs et isolants.

Les résultats obtenus par la suite à la température de l'air liquide nous ont conduits à étendre notre domaine expérimental et à envisager l'utilisation du dispositif à 4,2 °K puisque, à cette température, la sensibilité du détecteur (5,5 $\mu\text{V/mW}$) est encore suffisante pour ne nécessiter aucune amplification du signal et conserver ainsi à l'appareillage une très grande simplicité. C'est pourquoi nous avons construit un cryostat à hélium liquide dont nous déterminons, en ce moment, les caractéristiques afin d'en achever la mise au point.

Par ailleurs, nous envisageons de compléter ces études par des mesures de capacité calorifique.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] TAVERNIER (J.), Thèse, Paris, 1960.
- [2] HOLLAND (M. G.), RUBIN (L. G.), *Rev. Sci. Inst.*, 1962, **33**, 923-928.
- [3] VUILLERMOZ (P. L.), Thèse, Lyon, 1965.
- [4] MACQUERON (J. L.), SINICKI (G.), BERNARD (R.), *C. R. Acad. Sci.*, 1964, **259**, 1031-1033.
- [5] MACQUERON (J. L.), SINICKI (G.), Colloque International C.N.R.S., Marseille, 1965.
- [6] CARRUTHERS (P.), *Rev. Mod. Phys.*, 1961, **33**, 92-138.
- [7] WALKER (C. T.), *Phys. Rev.*, 1961, **132**, 1963-1975.
- [8] *Acta Electronica*, avril 1962, vol. 6, n° 2, cahier n° 3.
- [9] MERZ (W. J.), *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1221.
- [10] MERZ (W. J.), *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 513.