THESE

Présentée pour obtenir le grade de

Docteur en Sciences Physiques de l'Ecole Polytechnique

Spécialité : Physique

par :

Vanessa CARDINALI

Matériaux lasers dopés à l'ion ytterbium :

Performances lasers en pompage par diodes lasers et étude des propriétés thermo-optiques à des températures cryogéniques

Soutenue le 10 Mai 2011 devant le jury composé de :

M. Georges BOULON	Professeur, LPCML, Lyon I	Président
M. Bruno VIANA	Professeur, ENSCP, Paris	Rapporteur
M. Alain BRENIER	Directeur de Recherche, LPCML, Lyon I	Rapporteur
M. François AMIRANOFF	Directeur de Recherche, Directeur du LULI	Examinateur
M. Gilbert BOURDET	Chercheur au LULI	Directeur de thèse
M. Bruno LE GARREC	Directeur de Recherche au CEA	Encadrant de thèse
M. Elian COMENT	Responsable technique, société NeoTIM	Invité

Remerciements

Ce manuscrit synthétise le travail de recherche mené durant trois années au sein du Centre d'Etudes Scientifiques et Techniques d'Aquitaine du Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives. Cette thèse s'inscrit dans le cadre des activités de recherche menées au sein du Département Lasers de Puissance (DLP) qui regroupe en particulier le Service Métrologie (SMET) auquel j'étais attachée. Mes activités quotidiennes de recherche se sont effectuées successivement au laboratoire ALISE (Activités Lasers ImpulsionnelS pour les Etudes) et au laboratoire LMO (Laboratoire Métrologie Optique). Je tiens donc à adresser mes sincères remerciements à l'ensemble des acteurs hiérarchiques qui ont fait en sorte que cette thèse se déroule dans les meilleures conditions.

En ce sens, je remercie M. Jacques Moretto, ancien chef du DLP, de m'avoir permis d'effectuer cette thèse au sein de son département. J'exprime toute ma gratitude aux personnes travaillant au service SMET, Mme. Isabelle Bailly et M. Benoît Cathala, ainsi qu'au chef de service, M. Denis Desenne, pour leur accueil, leur encouragement et leur soutien. M. Denis Desenne a témoigné tout son intérêt envers mes différents travaux en mettant à ma disposition tous les outils nécessaires au bon déroulement de ma thèse, que ce soit d'un point de vue technique ou humain. Enfin, je tiens à remercier mes différents chefs de laboratoire pour leurs soutiens permanents durant ces trois ans. Ces travaux de recherche ont été financés dans le cadre des études ESTB (Etudes Scientifiques et Techniques de Base), sous la direction de M. Denis Penninckx. Merci pour le financement de mes divers achats tout au long de cette thèse.

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à M. Bruno Le Garrec pour m'avoir proposé ce sujet de thèse et m'avoir encadré durant ces trois années. Son esprit critique et son soutien ont contribué au succès de cette thèse. Merci également de m'avoir fait confiance, notamment pour tout ce qui a touché de près ou de loin aux mesures thermiques. Nous avons dû faire face à de nombreux abandons de la part de divers laboratoires, mais au bout de trois ans, j'ai envie de vous dire que nous avons réussi à mener à terme ce que tout le monde nous disait qu'il serait impossible de faire…

Je tiens également à remercier mon directeur de thèse, M. Gilbert Bourdet, dont le point de vue extérieur m'a été d'une grande aide. Malgré la distance, vous avez su suivre l'avancement de mes travaux de thèse avec grand intérêt. Merci pour vos conseils et votre aide précieuse que vous m'avez apportés durant ces trois années. Enfin, merci pour tout le temps que vous avez accordez à la relecture et aux corrections de mon mémoire.

J'exprime toute ma gratitude à MM. Bruno Viana et Alain Brenier d'avoir accepté le rôle de rapporteur. Je remercie également M. Georges Boulon pour avoir présidé le jury et pour l'intérêt qu'il a manifesté à ce manuscrit. Je souhaiterais également remercier M. François Amiranoff pour l'ensemble des conseils qu'il m'a donné pour la préparation de la soutenance de la thèse. Un grand merci à M. Elian Coment d'avoir toujours répondu présent à mes nombreuses interrogations sur les mesures thermiques mais également d'avoir montré un grand intérêt aux mesures à températures cryogéniques.

Un énorme merci à tout l'ancien personnel du laboratoire ALISE, Mme. Odile Bonville, et MM. Philippe Canal, Olivier Hartmann, Christan Lepage, Laurent Marmande, Gabriel Mennerat, Loïc Patissou, Didier Raffestin. Outre le soutien technique permanent que vous

m'avez apporté, vous m'avez accueillie à bras ouverts dès le premier jour de mon arrivée. Vous avez su être présent et me soutenir. Je tiens plus particulièrement à remercier Laurent qui m'a énormément appris, notamment sur toutes les « petites astuces mécaniques ». Un merci particulier également à Odile et Gabriel de m'avoir soutenu jusqu'au jour J, d'avoir été présent et à mon écoute dans tous ces moments d'interrogations, caractéristiques d'une fin de thèse.

Que serait une étude aux basses températures sans l'aide et le soutien de l'équipe cryogénique, MM. Gaël Paquignon, Jean Manzagol, Mickael Charvin, Mickael Manzato, Michel Garcia et Marc Padois. Ayant peu de connaissances dans le domaine de la cryogénie au début de ma thèse, vous avez toujours pris le temps de répondre à mes questions. Merci également à Marc pour tes cours de soudure et de peinture!!!

Je tiens également à remercier tous les agents du LMO. Malgré que ma thématique d'étude soit complètement différente de la thématique de l'endommagement, vous avez témoigné un grand intérêt pour mes travaux de recherche et ainsi vous m'avez apporté une aide précieuse. Merci également pour tous ces bons petits déjeuners auxquels j'ai pu participer très activement… Merci donc à vous tous : Mmes. Sandy Cavaro, Sandrine Chico, Isabelle Lebeaux, Chloé Morin et MM. Matthieu Balas, Stéphane Bouillet, Roger Courchinoux, Thierry Donval, Paul Dufouleur, Gabriel Dupuy, Christophe Féral, Gaël Gaborit, Laurent Lamaignère, Christophe Leymarie, Sébastien Martin, Gérard Razé et Stéphane Reyné. Sans oublier nos ingénieurs sécurité, MM. Patrice Winter et Marc Loiseau, qui mettent en place tous les moyens techniques pour que les expériences se déroulent dans les meilleures conditions.

Merci également à tous les anciens et nouveaux membres du Laboratoire Système Laser : Mmes. Nathalie Blanchot, Odile Landrin, Hélène Ward et MM. Vincent Beau, Edouard Bordenave, Antoine Bourgeade, Christian Chappuis, Jean-Paul Goossens, Pierre Grua, Laurent Le Deroff, Stéphane Mainguy, Jacques Rault, Alain Roques, Jean-Luc Rullier, Jean-Michel Sajer, Frédéric Seguineau, Sébastien Vermersch. Je tiens donc à remercier toute l'équipe pour son accueil, sa sympathie et son soutien durant ces trois années de thèse.

Un grand merci aux secrétaires, Mmes. Nadine Tardif, Annie Boivert et Nadège Maurice pour votre soutien permanent sur le plan administratif mais également sur le plan humain. Vous m'avez toujours encouragé et aidé notamment lors de la rédaction de la thèse.

Une dédicace toute particulière aux thésards, post-doctorante et stagiaires que j'ai pu côtoyer ces trois années. Tout d'abord, merci à Emilie Marmois de m'avoir aidé sur les différents problèmes expérimentaux que nous avons pu rencontrer. Je pense également aux deux thésards, Laure Lago et Benoît Trophême. Merci pour votre aide et également d'avoir toujours prêté une oreille attentive et solidaire à mes nombreux bougonnements. C'est donc à mon tour que je vous souhaite une « bonne et agréable » fin de thèse. Enfin, une pensée à Audrey Mariel, ma collègue de bureau, qui nous a quittés pour aller conquérir l'Ecosse.

Un grand merci également à M. Jean-Marc Goyheneche d'avoir répondu présent à toutes les interrogations que j'ai pues avoir dans le domaine de la thermique, mais également de m'avoir conseillé dans la démarche de mes mesures de conductivité thermique. Je tiens enfin à remercier M. Frédéric Sabary, CEA/LR/DMAT, pour la métallisation de l'ensemble des

échantillons testés mais également Mme. Virginie Ducamps et MM. Alain Jolly et Régis Mêmes, CEA/CESTA/DSGA, pour l'ensemble du matériel cryogénique qu'ils ont mis à ma disposition.

Un grand merci à la famille Poudens, Stéphanie, Jérôme, leurs deux enfants, Thomas et Thibault. Merci d'avoir accueillie la petite vosgienne que je suis, et de l'avoir inculquée aux rudiments de la vie du Sud-Ouest avec toutes les expressions qui s'accompagnent telles que « ça daille » ou bien encore « c'est gavé bien ! », sans oublier ce fameux dahu qui m'a causé beaucoup d'interrogations… J'espère également que vous garderez un bon souvenir de la culture vosgienne que « d'la secousse », j'ai essayé de vous faire connaître. Quelques lignes ne suffiraient pas pour exprimer toute ma gratitude envers le soutien et l'aide que vous m'avez apportés durant ces trois années.

Cette thèse n'aurait pas pu voir le jour sans le soutien de mes proches et celui de ma famille. Je tiens à remercier plus particulièrement mes parents, Candide et Serge ainsi qu'Hervé, Yolande, Monique et Rem. Merci d'avoir cru en moi et d'avoir été présent même si de nombreux kilomètres nous ont séparés. Je n'oublie pas mes deux papis, Rino et Fernand, qui ne sont malheureusement plus présents à ce jour, mais pour qui l'aboutissement de ces années d'études aurait été source de joie et de fierté. La relève s'adresse désormais à mon petit frère, Mathieu, et à ma petite sœur, Julie, avec une carrière respectivement de préparateur en pharmacie et d'avocate (voire même, grande rugbywoman...). Je vous souhaite plein de courage pour vos études et que tous vos rêves se réalisent.

Table des Matières

NOMENCLATURE **15**

INTRODUCTION GENERALE **19**

PREMIERE PARTIE : PERFORMANCES LASERS DE CERAMIQUES SESQUIOXYDES DOPEES YTTERBIUM A BASSE TEMPERATURE **27**

CHAPITRE I **31**

GENERALITES SUR LES LASERS A SOLIDES DOPES A L'ION YTTERBIUM **31**

I.1 Les matériaux dopés à l'ytterbium 33
I.1.1. L'ion ytterbium 33
I.1.1.1. Diagramme énergétique de l'ion ytterbium 33
I.1.1.2. Avantages et inconvénients de l'ion ytterbium 34
I.1.1.3. Laser quasi-3 niveaux 36
I.1.1.4. Quelques mots sur la spectroscopie de l'ion ytterbium 41
I.1.2. Choix des matrices hôtes à l'ion ytterbium 46
I.1.2.1. Figures de mérite 46
I.1.2.2. Matériaux lasers sous forme de céramiques 49
I.1.2.3. Morphologie des amplificateurs lasers solides 50
I.2 Pourquoi les mesures aux basses températures sont-elles si importantes ? 52
I.2.1. Amélioration des propriétés spectroscopiques 52
I.2.2. La conductivité thermique : une fonction de la température 52
I.2.3. Influence de la température sur les autres propriétés thermomécaniques des matériaux lasers 53
I.3 Conclusion 55

CHAPITRE II **57**

COMPARAISON EXPERIMENTALE DE MATRICES DOPEES YTTERBIUM **57**

II.1 Description du dispositif expérimental 59
II.1.1. Les échantillons : les systèmes de pompage et de refroidissement 59
II.1.2. Le montage expérimental 60
II.1.2.1. Le système de pompage 61
II.1.2.2. L'oscillateur 65
II.2 Résultats expérimentaux pour Yb : Y_2O_3 65
II.3 Résultats expérimentaux pour Yb : Lu_2O_3 71
II.4 Résultats expérimentaux pour Yb : Sc_2O_3 74
II.5 Conclusion 77

CONCLUSION DE LA PREMIERE PARTIE : **79**

SECONDE PARTIE : ETUDE DES PROPRIETES THERMOMECANIQUES DE MATERIAUX DOPES YTTERBIUM A BASSE TEMPERATURE **81**

CHAPITRE III **85**

MESURES DES COEFFICIENTS D'ELONGATION THERMIQUE ET THERMO-OPTIQUE DE MATERIAUX LASERS A BASSE TEMPERATURE **85**

III.1 Etat de l'art des mesures du coefficient d'élongation thermique α et du coefficient thermo-optique *dn/dT* 87
III.1.1. Etat de l'art sur le coefficient d'élongation thermique 87
III.1.1.1. Méthode interférométrique : modèle de l'interféromètre de Michelson 87
III.1.1.2. Autres méthodes optiques 88

III.1.1.3. Dilatomètres commerciaux ou développés en laboratoire 89
III.1.2. Etat de l'art sur le coefficient thermo-optique *dn/dT* 90
III.1.2.1. La méthode du minimum de déviation 90
III.1.2.2. L'ellipsométrie spectroscopique 92
III.1.2.3. Les méthodes interférométriques 95
III.1.3. Méthode 2 en 1 97
III.2 Détermination du coefficient de dilatation thermique linéique 99
III.2.1. Conditions d'essai 99
III.2.2. Expression des résultats 100
III.2.3. Résultats de mesures 102
III.2.3.1. Coefficients d'élongation thermique de céramiques de sesquioxydes Y_2O_3, Sc_2O_3 et Lu_2O_3 dopées ytterbium à basse température 102
III.2.3.2. Coefficients d'élongation thermique de cristaux et de céramiques YAG non dopés et dopés en ion ytterbium à basse température 105
III.2.3.3. Coefficients de dilatation de cristaux CaF_2 non dopés et dopés en ion ytterbium à basse température 108
III.2.3.4. Coefficients de dilatation de verre phosphate dopé néodyme à basse température 109
III.2.4. Conclusion des mesures du coefficient de dilatation à basse température 110
III.3 Mesure du coefficient thermo-optique *dn/dT* 111
III.3.1. Principe des mesures 111
III.3.2. Acquisition et traitement des données 115
III.3.2.1. Acquisition 115
III.3.2.2. Traitement des données 115
III.3.2.3. Précision de la mesure 117
III.3.3. Mesures du coefficient thermo-optique entre 77 K et 293 K 120
III.3.3.1. Les échantillons 120
III.3.3.2. Résultats de mesures sur des céramiques sesquioxydes Y_2O_3, Lu_2O_3 et Sc_2O_3 dopés ytterbium 121
III.3.3.3. Résultats de nos mesures sur des échantillons de YAG dopés ytterbium 123
III.3.3.4. Résultats de nos mesures sur des cristaux CaF_2 non dopé et dopé 126
III.3.3.5. Résultats de mesures sur un échantillon de verre phosphate dopé néodyme 128
III.3.3.6. Conclusion des mesures du coefficient dn/dT 129
III.3.4. Sources d'incertitude 129
III.3.4.1. Approximation du premier ordre dans le calcul du coefficient dn/dT 129
III.3.4.2. Influence des fenêtres de la cellule 130
III.3.4.3. Stabilité de l'interféromètre 132
III.3.4.4. Stabilité du laser 133
III.3.4.5. Mesure sans échantillon 133
III.3.5. Validité des mesures 134
III.3.5.1. Supports laiton/cuivre 134
III.3.5.2. Mesure en coin d'air 135
III.3.5.3. Comparaison mesures coin d'air / teinte plate 136
III.3.5.4. Mesure en coin d'air : influence du nombre de franges d'interférence 137
III.3.5.5. Mesure en montée ou en descente en température / Mesure avec ou sans agrandissement du faisceau laser 137
III.3.5.6. Phénomènes indésirables 138
III.3.5.7. Le caractère reproductible des mesures 140
III.4 Conclusion 141

CHAPITRE IV 147

ETUDE DE FAISABILITE DE MESURE DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE A BASSE TEMPERATURE 147

IV.1 Généralités 149
IV.1.1. Loi de Fourier : équation de la chaleur 149
IV.1.2. Les trois familles de matériaux – notion de conductivité thermique apparente 151
IV.2 Les régimes stationnaires, transitoires, variables et périodiques établis 152
IV.2.1. Les méthodes stationnaires 152
IV.2.1.1. Méthode de la plaque chaude gardée [Deponte 74] 153

IV.2.1.2. Méthode de la barre [Laubitz 84] ... 154
IV.2.2. Les méthodes transitoires ... 155
IV.2.2.1. La méthode « flash laser » ... 155
IV.2.2.2. Les pertes thermiques ... 157
IV.2.2.3. Dépouillement des thermogrammes ... 158
IV.2.2.4. . Modélisation 1D du transfert de chaleur : modèle des quadripôles ... 159
IV.2.3. Les méthodes en régime quasi-établi ... 161
IV.2.3.1. La méthode du fil chaud ... 162
IV.2.3.2. La méthode du disque chaud [Hot Disk] ... 163
IV.2.3.3. La méthode du plan chaud semi-infini [Jannot 08] ... 163
IV.3 Dépendance de la conductivité thermique suivant divers paramètres ... 164
IV.3.1. Influence de la température sur la mesure de la conductivité thermique ... 164
IV.3.2. Dépendance de la conductivité avec le taux de dopage et de la taille du grain ... 165
IV.3.2.1. Les vibrations du réseau ... 165
IV.3.2.2. Contribution des phonons à la capacité thermique massique ... 166
IV.3.2.3. Expression théorique de la conductivité thermique ... 167
IV.3.2.4. La diffusion des phonons dans les matériaux ... 168
IV.3.2.5. Fonction du taux de dopage ... 170
IV.3.2.6. Fonction de la taille et des joints de grains ... 171
IV.4 Mesure de la conductivité thermique à température ambiante ... 173
IV.4.1. Les échantillons : notion de transparence et de conductivité thermique apparente ... 174
IV.4.2. Mesure indirecte de la conductivité thermique par la méthode flash ... 175
IV.4.2.1. Mesure de la densité des matériaux à température ambiante ... 175
IV.4.2.2. Détermination de la capacité thermique massique à température ambiante ... 177
IV.4.2.3. Traitement des échantillons ... 179
IV.4.2.4. Mesure de diffusivité thermique par détection infrarouge (méthode du LNE) ... 179
IV.4.2.5. Mesure de diffusivité thermique par contact (méthode du LEMTA) ... 180
IV.4.2.6. Mesure directe de la conductivité thermique à température ambiante ... 182
IV.5 Mesure de la conductivité thermique à basse température ... 187
IV.5.1. Evolution de la capacité thermique massique et de la densité des matériaux à basse température ... 187
IV.5.2. Méthode flash laser ... 189
IV.5.2.1. Description du dispositif expérimental ... 189
IV.5.2.2. Caractère spécifique lié aux sondes de température ... 190
IV.5.2.3. Mesure de conductivité thermique à basse température ... 191
IV.5.2.4. Estimation de la température de Debye ... 201
IV.5.3. Méthode de la sonde annulaire ... 202
IV.6 Conductivité thermique en fonction du taux de dopage ... 204
IV.7 Conclusion ... 206

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES ... 207

COMMUNICATIONS SCIENTIFIQUES ... 213

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES ... 219

ANNEXE A : *DIAGRAMMES ENERGETIQUES DES IONS LANTHANIDIQUES TRIVALENTS EN SOLUTION VITREUSE [KAMINSKII 81]* ... 233

ANNEXE B : *MESURES SPECTROSCOPIQUES A TEMPERATURE AMBIANTE ET A TEMPERATURE CRYOGENIQUE – DETERMINATION DES SECTIONS EFFICACES D'ABSORPTION ET D'EMISSION* ... 235

ANNEXE C : *METROLOGIE THERMIQUE POUR LA CRYOGENIE* ... 249

ANNEXE D : *AUTRES MESURES EXPERIMENTALES REALISEES SUR NOS ECHANTILLONS* ... 257

Nomenclature

k_B	-	Constante de Boltzmann [1,381x10^{-23} J/K]
h	-	Constante de Planck [6,62x10^{-34} J.s]
σ	-	Constante de Stefan [5,67x10^{-8} W/m^2.K^4]
E	-	Module d'Young [Pa]
T	-	Température [K]
x,y,z	-	Coordonnées [m]
I	-	Intensité [W/cm^2]
σ_{em}, σ_{abs}	-	Section efficace d'émission et d'absorption [cm^2]
η_Q	-	Défaut quantique [sans unité]
τ	-	Durée de vie de l'état excité [s]
t	-	Temps [s]
e	-	Charge électronique [1,6x10^{-19} As]
m	-	Masse [kg]
L	-	Caractéristique d'une longueur [m]
V	-	Caractéristique d'un volume [m^3]
ω	-	Pulsation [s^{-1}]
λ	-	Longueur d'onde [m]
n	-	Indice de réfraction [sans unité]
dn/dT	-	Coefficient thermo-optique [sans unité]
α	-	Coefficient de dilatation [K^{-1}]
δ	-	Chemin optique [m]
dδ/dT	-	Coefficient de variation de chemin optique [m/K]
φ	-	Flux de chaleur [W]
κ	-	Conductivité thermique [W/m.K]
β	-	Diffusivité thermique [m^2/s]
ρ	-	Densité [kg/m^3]
C_p	-	Capacité thermique massique [J/kg.K]

Introduction générale

Les lasers de forte puissance ont de nombreuses applications que ce soit dans le domaine de l'industrie ou bien dans les études de la physique des plasmas. Depuis que les essais des bombes thermonucléaires dans l'atmosphère ont été interdits, l'étude de la réaction de fusion à l'échelle réduite a connu un important développement. L'objectif de ces recherches est de pouvoir mieux comprendre, d'appréhender et par conséquent de contrôler les mécanismes de la réaction de fusion thermonucléaire, à l'échelle du laboratoire. Depuis les années 1980, de nombreux projets se sont succédés dans le but d'accroître les performances de ces lasers de puissance pour étudier l'interaction onde-matière. A l'heure actuelle, le niveau de performance atteint par ces lasers permet d'envisager ce type de fusion. L'objectif visé est de porter, dans un plasma (bille de combustible généralement constituée d'un mélange de deutérium-tritium), les ions à des températures élevées pour provoquer des réactions de fusion donnant naissance à de nouveaux atomes : un noyau d'hélium se forme et un neutron très énergétique est émis. Il existe ainsi deux voies possibles de fusion. La première est la fusion par confinement magnétique utilisant une installation de type « tokamak », comme Tore Supra aujourd'hui et ITER demain, qui va produire un plasma de faible densité durant un temps assez long. La seconde est la Fusion par Confinement Inertiel (FCI) permettant de produire un plasma dense et de courte durée.

Dans le cadre des applications militaires, deux grands projets sont actuellement en cours de développement : il s'agit du National Ignition Facility (NIF), aux Etats-Unis, et du Laser MegaJoule (LMJ) en France. Le LMJ s'inscrit dans le programme Simulation d'essais nucléaires du CEA (Commissariat à l'Energie Atomique et aux énergies alternatives). Son principe repose sur la focalisation de 176 faisceaux lasers dans une cavité en or où se trouve une bille de gaz de taille millimétrique. Il est prévu que la cible reçoive une énergie de 1,8 MJ.

Les amplificateurs de ces lasers de puissance reposent sur des milieux à gain solides. Les verres phosphates dopés néodyme sont aujourd'hui les matériaux lasers les plus fréquemment utilisés pour ce type d'application. Le verre a été choisi comme milieu amplificateur car il permet la réalisation de grandes plaques (jusqu'à un mètre de dimension) et possède de grandes qualités optiques : absence d'inclusion de platine, bonne homogénéité d'indice, ... [Le Garrec 08] Cependant, sa faible conductivité thermique ne lui permet pas de supporter de forte cadence. Ces plaques sont pompées par des lampes flash émettant des spectres très larges : seule une faible partie de la lumière émise participe au pompage du matériau laser, le reste étant soit transmis, soit absorbé. Par conséquent, le rendement de cette opération est faible.

Le problème majeur pour ces lasers est la génération de chaleur dans leurs milieux à gain [Koechner 70], [Fan 93]. Cet échauffement entraîne des déformations du front d'onde dues aux effets de lentille thermique, engendrant ainsi une dégradation de la qualité du faisceau laser. Grâce à l'utilisation de miroirs déformables commandés par un analyseur de surface d'onde, il est possible de corriger les aberrations de la surface d'onde résultantes des gradients de température au sein du matériau. A l'heure actuelle, ce système permettrait d'effectuer un tir toutes les deux heures [Ward 06] au delà de quoi, et malgré l'action des miroirs déformables, les déformations de surface d'onde ne pourront plus être compensées.

De plus, ces effets néfastes peuvent, sous certaines contraintes thermiques, amener à la fracture des milieux amplificateurs.

Dans la perspective d'un laser permettant d'envisager la production d'énergie par FCI, la cadence de tir devra être plus importante (supérieure à 10 Hz) afin que le rendement de la production d'énergie soit positif. Dans le cas d'une installation type LMJ, cela reviendrait à augmenter la cadence d'un facteur 10^5, ce qui, en raison des problèmes thermiques évoqués précédemment, est impossible. Pour monter en cadence, l'amplificateur (lampes et milieux à gain) devrait être refroidi jusqu'à un certain niveau où les déformations de surface d'onde ne pourront plus être compensées. Il est également indispensable de prévoir une excellente évacuation de la chaleur en utilisant des matériaux lasers possédant de grandes conductivités thermiques.

De nouvelles technologies lasers permettant d'atteindre des énergies élevées à de haute cadence de tir doivent être envisagées. Plusieurs éléments de l'architecture du laser sont à prendre en considération tels que l'ion actif, la matrice hôte, le pompage ou encore le système d'évacuation de la chaleur. Les matériaux lasers à envisager doivent avoir de grandes conductivités thermiques et de grandes dimensions.

Comparées aux lampes à décharge, les diodes lasers connaissent un véritable essor du fait de leur excellent rendement électrique/optique, supérieur à 50 %, et des fortes énergies qu'elles peuvent atteindre. A cela s'ajoutent des qualités de faible encombrement et de longue durée de vie. Elles permettent également un pompage résonnant des milieux amplificateurs. Les premières diodes ont été réalisées en AlGaAs : elles émettent vers 808 nm et sont adaptés au pompage de cristaux Nd : YAG. L'émergence des diodes lasers InGaAs en 1990 a relancé l'intérêt de l'utilisation de l'ion ytterbium comme ion actif et par conséquent, de l'étude de nouvelles matrices lasers dopées ytterbium pour des applications lasers de haute puissance à de haute cadence de tir.

De nombreux milieux amplificateurs émettent depuis l'ultraviolet jusqu'à l'infrarouge. Le rendement de l'interaction lumière-matière est maximum dans l'ultraviolet. Cependant, les lasers émettant dans ce domaine de longueur d'onde ont de faible rendement : il est alors préférable d'utiliser des lasers solides émettant dans le proche infrarouge, autour de 1 µm, avec lesquels l'ultraviolet est atteint par triplement de fréquence avec des rendements satisfaisants. L'ion le plus fréquemment utilisé pour de telles applications est l'ion néodyme. Depuis l'avènement des lasers basés sur l'ion ytterbium pompé par diodes, les rendements peuvent être très nettement améliorés. En effet, l'ion ytterbium présente de nombreux avantages comparé à l'ion néodyme : absence d'absorption par les états excités et de relaxation croisée, un faible défaut quantique et une longue durée de vie radiative. Cependant, il s'agit d'un système quasi-trois niveaux dans lequel le niveau terminal de la transition laser est proche du niveau fondamental et est donc thermiquement peuplé. Le pompage par flash qui échauffe le milieu n'est pas rentable. Dans ces circonstances, une énergie minimale de pompe est requise pour réaliser l'inversion de population (cette énergie ne participant pas à l'émission du laser, le rendement est réduit). Pour cette même raison, et en pompage longitudinal, la longueur du milieu amplificateur est limitée.

Lacovara *et al.* conçoivent en 1991 le premier laser solide à base d'un cristal YAG dopé ytterbium, pompé par diode à 968 nm et fonctionnant à température ambiante [Lacovara 91]. L'intérêt de l'utilisation de l'ion ytterbium provient de sa structure électronique simplifiée et d'autres propriétés spectroscopiques qui conduisent à un faible échauffement de la matrice hôte. Le défaut quantique est pour les matériaux dopés à l'ion ytterbium, de deux à trois fois plus faible que celui des matériaux dopés au néodyme. D'autre part, la durée de vie de l'état excité de l'ion ytterbium est quatre fois plus grande celle de l'ion néodyme et permet ainsi de stocker davantage d'énergie de pompe sur le niveau excité.

Deux études complémentaires sont alors poursuivies : la recherche de nouveaux matériaux [DeLoach 93], [Krupke 00] et le développement de nouvelles structures de pompage adaptées à ces lasers [Giesen 94].

Nous devons également considérer que les milieux amplificateurs impliqués dans les chaînes amplificatrices doivent avoir de grandes dimensions transverses, le but étant d'obtenir de grandes énergies. Les dimensions transverses sont limitées par l'amplification de l'émission spontanée qui diminue le gain et peut, éventuellement, engendrer des oscillations transverses. Une voie prometteuse pour réaliser des amplificateurs de grandes dimensions est le frittage de céramique transparente. Actuellement, seuls les cristaux cubiques peuvent être facilement frittés. De nouvelles techniques impliquant l'orientation des nano-cristaux par des champs magnétiques permettent d'obtenir des céramiques à base de cristaux biréfringents : à l'heure actuelle, ces techniques sont prospectives [Mao 08], [Taira 10]. De nos jours, seuls les grenats et les sesquioxydes, dont la maille cristalline est cubique, sont disponibles commercialement sous forme de céramique.

Les sesquioxydes de terres rares se sont avérés être d'excellents candidats pour ces lasers de haute puissance, notamment pour leurs bonnes conductivités thermiques [Le Garrec 09], [Casagrande 06]. Ils possèdent une conductivité thermique comparable à celle des grenats. De plus, leur forme cubique leur permet d'être fritté sous forme de céramique transparente. Enfin, du fait que ce soit des oxydes, leur synthèse est plus facile à mettre en œuvre, comparé par exemple, au fluorure où leur fabrication est plus difficile.

Notons également que la conductivité thermique décroît avec le taux de dopage à cause du désordre engendré par l'introduction d'un ion étranger dans les mailles du cristal. Ainsi, une excellente conductivité thermique est obtenue pour un cristal de scandium non dopée (16 W/m.K) mais celle-ci s'effondre quand le dopage augmente (6 W/m.K pour 3 at. % de dopage) [Peters 02].

Les caractéristiques spectroscopiques (section efficaces d'absorption et d'émission [Dong 03]), les caractéristiques thermo-optiques dn/dT et thermomécaniques tels que le coefficient de dilatation α et la conductivité thermique κ [Xu 04], [Numazawa 01] sont améliorées considérablement lorsque la température du matériau diminue. De plus, dans le cas des amplificateurs basés sur l'ytterbium, et aux températures cryogéniques, le niveau terminal de la transition laser étant dépeuplé, le système laser se conduit comme un système quatre-niveaux. Le développement de ces lasers à basse température est récent, cependant, de nombreuses publications portant sur le refroidissement de milieux amplificateurs à des

températures cryogéniques existent [Ripin 05], [Fan 07], [Yasuhara 08], [Brown 08]. Dans le cas des mesures de la conductivité thermique, nous nous attendons à ce que ce paramètre augmente d'un facteur d'au moins 50 lorsque la température diminue. Pour la quasi-totalité des matériaux amplificateurs, les sections efficaces d'absorption et d'émission croissent quand la température diminue.

L'augmentation de la section efficace d'émission et la diminution correspondante de la fluence de saturation permettent la réalisation d'impulsions plus courtes en régime déclenché. Il faut cependant noter que le refroidissement du milieu amplificateur diminue la largeur des raies d'absorption et d'émission : le pompage par diodes lasers risque de perdre en efficacité, compte tenu de la largeur du spectre d'émission des diodes. Cette restriction peut devenir sévère par la considération du décalage en longueur d'onde d'émission des diodes lasers qui se déplace en fonction de la température du semi-conducteur en pompage impulsionnel [Bourdet 07 a], [Kasamatu 99].

Le problème essentiel pour la conception de ces lasers réside dans la méconnaissance des propriétés spectroscopiques, thermo-optiques et thermomécaniques de ces matériaux lasers à basse température. Elles sont bien connues pour le YAG et le sesquioxyde d'yttrium Y_2O_3 mais peu d'informations sont disponibles sur les autres matériaux [Aggarwal 05], [Fan 07]. L'objectif de cette thèse est de mesurer ces propriétés.

Ce mémoire de thèse sera divisé en deux grandes parties distinctes.

La première partie s'intéressera dans un premier chapitre à exposer les principales caractéristiques de l'ion ytterbium et ainsi montrer que cet ion actif apparaît comme un bon remplaçant à l'ion néodyme pour des applications lasers de forte puissance moyenne. La présentation de trois figures de mérite permettra de mettre en exergue les matrices hôtes adaptées à la haute puissance : les grenats et les sesquioxydes de terre rare. Le fluorure de calcium apparaît également comme un bon candidat pour ce type d'application. Enfin, l'influence de la température sur les propriétés des matériaux sera détaillée : nous étudierons les variations de la conductivité thermique, du coefficient de dilatation et du coefficient thermo-optique dn/dT en fonction de la température du matériau.

Dans le second chapitre de cette partie, nous ferons une comparaison expérimentale de diverses matrices lasers (sesquioxydes d'yttrium Y_2O_3, de scandium Sc_2O_3 et de lutétium Lu_2O_3) dopées ytterbium dans une configuration d'oscillateur laser relaxé. Dans un premier temps, nous décrirons le montage expérimental mis en place puis nous présenterons les résultats expérimentaux obtenus à basse température à l'aide d'un cryostat à azote liquide. Nous exposerons l'influence de la température sur les performances lasers.

La seconde partie de ce mémoire sera consacrée à l'étude et la mesure des coefficients de dilatation a, thermo-optique dn/dT et de la conductivité thermique κ à basse température. Ces mesures ont été réalisées sur des céramiques sesquioxydes d'yttrium Y_2O_3, de scandium Sc_2O_3 et de lutétium Lu_2O_3. Ajoutons à cette liste des céramiques et des cristaux de YAG non dopés et dopés ytterbium, des cristaux de fluorure de calcium CaF_2 non dopé et dopé

ytterbium et enfin des verres phosphates dopés néodyme (verres lasers LHG-8, HOYA utilisés pour le projet Laser MégaJoule).

Après une étude bibliographie succincte, le premier chapitre s'intéressera tout d'abord à la mesure du coefficient d'expansion thermique : ces mesures ont été réalisées sur les matériaux décrits précédemment à l'aide d'un dilatomètre commercial. Afin de mesurer le coefficient thermo-optique *dn/dT*, un montage interférométrique de type Mach-Zehnder a été mis en place.

Le second chapitre s'intéressera quant à lui aux mesures de la conductivité thermique à basse température. La mesure de ce paramètre est difficile à mettre en œuvre du fait de la transparence, de la petite taille et de la forte conductivité thermique de nos matériaux à basse température. Nous avons ainsi testé différentes méthodes à température ambiante : l'objectif est dans un premier temps, de pouvoir valider nos résultats expérimentaux avec les valeurs de la littérature, puis d'adapter la méthodologie à notre dispositif cryogénique et ainsi faire des mesures à basse température. Différentes méthodes ont été testées : la méthode flash laser pour une mesure dite indirecte de la conductivité thermique, et les méthodes du disque chaud, du fil chaud et de la sonde annulaire pour des mesures directes. La méthode flash laser nécessite de connaître parfaitement les valeurs de la capacité thermique massique, de la densité et de la diffusivité thermique des matériaux. Des mesures de la capacité thermique et de la densité des matériaux étudiés ont été également réalisées.

Des premières mesures ont été effectuées par divers laboratoire tels que le Laboratoire Nationale d'Essais et de métrologie, LNE, le Laboratoire Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée, LEMTA ou bien encore la société NeoTIM, à température ambiante en utilisant les méthodes préalablement citées. Les résultats trouvés concordent avec les valeurs de la littérature. Nous avons donc développé un premier dispositif expérimental, basé sur la méthode flash laser pour mesurer la diffusivité thermique de nos échantillons à basse température. Un second dispositif a été mis en place pour la mesure de la conductivité thermique de verres phosphates dopés néodyme en utilisant la méthode de la sonde annulaire.

Un modèle existe permettant de prédire, à température ambiante, la conductivité thermique d'un cristal en fonction du taux de dopage en ion actif. Nous avons également établi une comparaison entre nos valeurs expérimentales et les valeurs théoriques de ce modèle.

Première Partie :

Performances lasers de céramiques sesquioxydes dopées ytterbium à basse température

Un des problèmes majeurs de la montée en puissance des lasers solides est la génération de la chaleur dans leurs milieux à gain. Une certaine fraction de la puissance d'excitation est dissipée sous forme de chaleur dans le matériau laser. Les problèmes liés à cet échauffement sont de deux types. D'abord, le gradient de température va induire une variation de l'indice de réfraction du matériau : ce phénomène est responsable des problèmes de lentille thermique. D'autre part, le gradient thermique provoque des contraintes dans le matériau pouvant le détériorer si ce dernier atteint sa limite de fracture.

Nous citerons trois paramètres, exprimés sous la forme de facteur de mérite relatifs aux propriétés du matériau laser que sont la conductivité thermique, le coefficient d'expansion thermique, le coefficient thermo-optique dn/dT et enfin, le défaut quantique. Ces facteurs de mérite permettent de réaliser une comparaison entre les différentes matrices cristallines possibles et ainsi de déceler le ou les candidats potentiels aux applications lasers de forte puissance.

Dans la perspective d'une montée en puissance moyenne des lasers actuels, l'ion trivalent Yb^{3+}, dont l'émission laser, située autour de 1 µm, est semblable à celle de l'ion Nd^{3+}, semble présenter de nombreux avantages. Les principales caractéristiques de cet ion actif proviennent de sa structure électronique simple, de sa grande durée de vie radiative et de son faible défaut quantique.

Enfin, le refroidissement du matériau laser à des températures cryogéniques suscite un certain intérêt pour les lasers de fortes puissances. Les propriétés spectroscopiques et thermomécaniques de certains matériaux lasers solides sont améliorées de manière significative lorsque la température diminue. [Fan 07], [Casagrande 06]

Cette première partie se divise en deux chapitres.

Le premier montrera les avantages et les inconvénients de l'utilisation de l'ion ytterbium comme ion actif. La détermination des facteurs de mérite permettra de révéler quelles sont les matrices hôtes les plus prometteuses pour des applications lasers de fortes puissances. Nous montrerons également l'intérêt de travailler à basse température.

Le second chapitre présentera les performances lasers obtenues à basse température avec des céramiques transparentes de sesquioxydes de scandium, de lutétium et d'yttrium dopées ytterbium.

Chapitre I

Généralités sur les lasers à solides dopés à l'ion ytterbium

Après cette introduction générale, intéressons nous de plus près à ces nouveaux matériaux lasers dopés ytterbium. De nombreuses publications, et notamment des mémoires de doctorat, ont déjà établi une liste très détaillée de tous les avantages / inconvénients, et de toutes les propriétés quelles soient spectroscopiques, ou thermo-optiques, … des matériaux lasers dopés ytterbium. Avant de s'intéresser aux mesures des propriétés thermo-optiques, à proprement dites de ces matériaux, il est nécessaire d'introduire les propriétés de l'ion actif ytterbium. Cette partie se propose d'analyser d'une manière très générale, mais non exhaustive, les matériaux lasers que nous allons étudier dans ce mémoire.

Pour une approche générale du sujet, nous invitons le lecteur à se rapporter aux publications des grands spécialistes de ce domaine. Citons entre autres [Deloach 93], [Fan 96] et [Krupke 00]. Citons également quatre mémoires de doctorats [Gaumé 02], [Courjaud 01], [Chénais 02] et [Casagrande 06]. Ces thèses brossent un tableau très complet des propriétés des lasers basés sur l'ion ytterbium. Celle de Gaumé insiste sur le côté « matériau » en expliquant dans un premier temps, les différentes propriétés spectroscopiques et lasers des matériaux dopés à l'ytterbium. Il développe également quelques notions importantes tels que les phénomènes de transferts d'énergie, le rôle des impuretés, la charge thermique, la résistance thermomécanique,… Après avoir exposé les différentes étapes permettant la réalisation de cristaux, il propose des modèles de prévision des propriétés thermiques, mécaniques, optiques et thermo-optiques de matériaux lasers. Cette thèse vient compléter la discussion de Courjaud sur les propriétés lasers en pompage par diode.

Chénais s'est davantage intéressé aux problèmes thermiques de matériaux lasers dopés ytterbium. Après avoir présenté les performances lasers obtenues, à température ambiante, avec des cristaux tels que BOYS, SYS ou encore le GGG, il étudie les différents effets thermiques pouvant intervenir dans les lasers solides, en insistant sur les spécificités des matériaux dopés à l'ytterbium. Il a ainsi mis en place un dispositif expérimental, basé sur l'utilisation d'un analyseur de front d'onde de Shack-Hartmann, donnant accès aux lentilles thermiques et à leurs aberrations.

Après avoir proposé divers modèles numériques d'amplificateur et d'oscillateur laser à ytterbium, Casagrande fait une évaluation expérimentale de diverses matrices lasers dopées à l'ion Yb^{3+} : le YAG et trois sesquioxydes de terres rares (Y_2O_3, Lu_2O_3 et Sc_2O_3) possèdent des propriétés thermomécaniques intéressantes pour la réalisation de laser de haute puissance moyenne. Il présente les résultats expérimentaux obtenus à température ambiante pour ces matériaux. Plusieurs paramètres sont étudiés comme l'épaisseur du matériau laser, la longueur d'onde de pompe, ou encore la réflectivité du coupleur de cavité. Enfin, il présente

les résultats expérimentaux obtenus à basse température à l'aide d'un cryostat à azote liquide.

Ces propriétés ayant déjà fait partie de nombreux sujets d'études, cette partie est volontairement simplifiée et se limitera donc aux principales caractéristiques qui nous intéressent, de matrices dopées ytterbium à basse température.

I.1 Les matériaux dopés à l'ytterbium

I.1.1.L'ion ytterbium

L'ion ytterbium fait partie de la famille des lanthanides, appelés également terres rares. Les lanthanides sont des éléments chimiques dont le numéro atomique est compris entre $Z = 57$ et $Z = 71$ dans la classification périodique de Mendeleïev. Ils se différencient les uns des autres par le remplissage progressif de la couche électronique interne *4f* après le remplissage complet des couches *5s*, *5p* et *6s* commun à tous les lanthanides. Les ions formés à partir des terres rares sont généralement trivalents et obtenus par la perte des deux électrons de l'orbitale *6s* et d'un électron de la couche *4f*.

L'élément ytterbium, de numéro atomique $Z = 70$, forme l'ion trivalent Yb^{3+} possédant 67 électrons par la perte des deux électrons de la couche *6s* et d'un électron de la couche *4f*. La répartition de ces 67 électrons dans l'ensemble des couches électroniques constitue la configuration électronique de l'ion Yb^{3+}. Nous la notons :

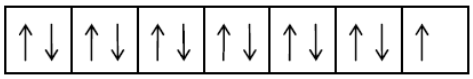
$$1s^2\ 2s^2\ 2p^6\ 3s^2\ 3p^6\ 4s^2\ 3d^{10}\ 4p^6\ 4d^{10}\ 5s^2\ 5p^6\ 4f^{13} = [Xe]\ 4f^{13}$$

La couche *4f* est incomplète : il manque un électron.

À partir de la configuration électronique d'un ion lanthanidique trivalent, il est possible de déterminer tous ses états énergétiques. Un niveau d'énergie $^{2S+1}L_J$ désigne un ion de spin total $S = \Sigma s_i$, de moment angulaire orbital total $L = \Sigma l_i$, et de moment angulaire total $J = \Sigma j_i$, avec $|L-S| \leq J \leq |L+S|$. Cette caractérisation d'un niveau considère un couplage L-S dit de Russel-Saunders.

I.1.1.1. Diagramme énergétique de l'ion ytterbium

A partir de la configuration électronique détaillée au début de cette partie, la couche *4f*, incomplète, est représentée par sept cases quantiques pouvant accueillir chacune deux électrons de spin opposé et de moment angulaire orbital respectif *l* compris entre -3 et 3.



Comme le spin total *S* est égal à 1/2, le moment angulaire orbital total *L* est égal à 3, le moment angulaire total *J* ne peut être égal qu'à deux valeurs : 5/2 et 7/2.

Un moment angulaire orbital $L = 3$ correspond à la notation spectroscopique *F*. Seulement deux états énergétiques sont possibles pour l'ion Yb^{3+} : $^2F_{7/2}$ et $^2F_{5/2}$. D'après la règle de Hund, lorsque plus de la moitié d'une couche électronique est remplie, ce qui est le cas ici de la couche *4f*, le niveau fondamental correspond à la plus grande valeur de *J*. Par conséquent, deux niveaux seulement participent au fonctionnement laser de l'ion ytterbium : le niveau fondamental $^2F_{7/2}$ et le niveau excité $^2F_{5/2}$.

La différence d'énergie entre ces deux niveaux peut s'écrire :

$$\Delta E = E_{J+1} - E_J = \lambda(J+1) \qquad \text{Équation I-1}$$

La constante λ, correspondant à la constante de couplage spin-orbite, équivaut à 2900 cm^{-1} [Weber 82]. La séparation énergétique entre le niveau fondamental et le niveau excité équivaut à environ 10150 cm^{-1}, correspondant ainsi à une transition laser autour de 1 µm.

Dans un champ cristallin, le champ électrique créé par les interactions électrostatiques auxquelles l'ion ytterbium est soumis provoque une décomposition de ses niveaux énergétiques en sous niveaux. Ce phénomène est appelé effet Stark.

Comme nous venons de le voir, l'ion ytterbium possède deux niveaux énergétiques. Le niveau fondamental de l'ion Yb^{3+}, $^2F_{7/2}$, est dégénéré en quatre sous niveaux Stark que nous choisissons de noter 1, 2, 3 et 4. Le niveau excité de l'ion ytterbium, noté $^2F_{5/2}$, est quant à lui, dégénéré en trois sous niveaux Stark notés 5, 6 et 7. Le schéma énergétique résultant pour l'ion ytterbium est représenté sur la figure I-1.

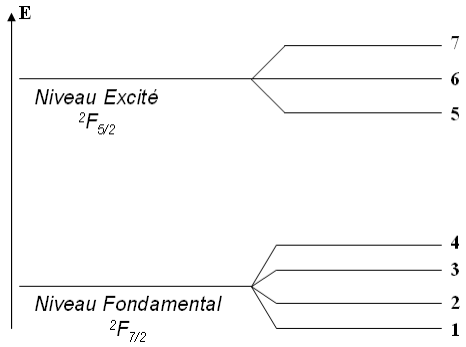


Figure I - 1 : Diagramme énergétique de l'ion ytterbium Yb^{3+}.

Nous pouvons constater que l'ion ytterbium possède un schéma énergétique beaucoup plus simple que celui d'autres terres rares (Cf. Annexe A). Compte tenu de ce diagramme énergétique, seulement douze transitions sont possibles entre les différents niveaux de l'ion Yb^{3+}. Ce nombre est très faible comparé à d'autres ions lanthanidiques trivalents comme, par exemple, l'ion erbium Er^{3+} pour lequel 56 transitions sont répertoriées.

Pour tous les matériaux dopés à l'ytterbium, la transition entre le sous niveau le plus bas du multiplet fondamental $^2F_{7/2}$ et le sous niveau le plus bas du multiplet excité $^2F_{5/2}$ est communément appelée *zéro-line*. Cette raie est située autour de 980 nm et possède des sections efficaces d'absorption et d'émission plus grandes que les autres raies. Cependant, comme la section efficace d'absorption de la *zéro-line* est très étroite et donc très peu adaptée au pompage par diode, il a été montré que dans certains cas, il est préférable de pomper le milieu amplificateur sur la transition 1-6 (Figure I-1) que sur la *zéro-line* [Casagrande 06].

I.1.1.2. Avantages et inconvénients de l'ion ytterbium

A température ambiante, le niveau fondamental de l'ion ytterbium est thermiquement peuplé. Le niveau terminal de la transition laser est proche du niveau fondamental : un

pompage par lampe flash est donc totalement inefficace pour pomper l'ion ytterbium. Dans l'introduction générale, nous avons également noté que l'utilisation de lampes flash entraîne de faible rendement. L'apparition au début des années 1990 des diodes lasers InGaAs émettant autour de 940 nm a relancé l'intérêt pour des nouvelles matrices dopées par l'ion ytterbium. Ces sources de pompage sont parfaitement adaptées à l'excitation de l'ytterbium qui présente un domaine d'absorption localisé entre 900 nm et 980 nm. L'ion trivalent Yb^{3+} donne comme l'ion néodyme Nd^{3+}, une émission laser entre 1020 et 1090 nm.

L'ion néodyme est l'ion le plus couramment utilisé pour la réalisation des lasers de forte puissance. Cependant, comparé à l'ion néodyme, l'ion ytterbium possède trois avantages majeurs.

Tout d'abord, comparé aux structures électroniques très complexes des ions lanthanidiques, et plus particulièrement celui de l'ion néodyme (Cf. Annexe A), l'ion ytterbium a une structure électronique simplifiée. Rappelons que sa structure électronique, composée seulement de deux niveaux énergétiques, permet de s'affranchir des phénomènes d'absorption à partir de l'état excité. En effet, aucun niveau d'énergie supérieure à celle du niveau $^2F_{5/2}$ n'est accessible à des énergies raisonnables (autrement dit, pour des valeurs de longueurs d'onde supérieures à 260 nm). En particulier, l'onde de pompe, dont la longueur d'onde est située autour de 940 nm, ne peut pas être absorbée par un ion préalablement excité dans le niveau $^2F_{5/2}$.

S'il n'y a pas de phénomène parasite induit par des impuretés, lorsque le matériau laser est pompé, une partie de l'énergie du photon incident est transformée en chaleur : l'écart d'énergie entre le photon de pompe et le photon laser est défini comme étant le défaut quantique η_Q et est responsable de la charge thermique du matériau. L'autre partie de l'énergie du photon incident correspond à la création de moins d'un photon de fluorescence. Son rendement énergétique est égal au rapport des longueurs d'onde de pompe et laser. Les transitions entre les sous niveaux de l'état fondamental et ceux de l'état excité n'étant pas radiatives, l'excédent d'énergie est transformé en chaleur. Le défaut quantique s'écrit :

$$\eta_Q = 1 - \frac{\lambda_{pompe}}{\lambda_{laser}} \qquad \text{Équation I-2}$$

Le défaut quantique de l'ion ytterbium est faible comparé à celui de l'ion néodyme. Par exemple, dans une matrice de $Y_3Al_5O_{12}$ (YAG), lorsqu'on pompe sur la transition 1-6 (correspondant à une longueur d'onde de 940 nm), et pour une émission laser correspondant à la transition 5-3 (correspondant à une longueur d'onde de 1030 nm), le défaut quantique de l'ion Yb^{3+} est d'environ 9 % alors que pour l'ion Nd^{3+}, il est d'environ 24 % pour la transition $^4F_{3/2}$ - $^4I_{11/2}$, pour une longueur d'onde de pompe de 808 nm et une longueur d'onde d'émission de 1064 nm (Figure I-2). L'énergie dissipée sous forme de chaleur est ainsi réduite dans le cas de l'ion Yb^{3+}. Cet argument est primordial pour des lasers de forte puissance moyenne où la production de chaleur est un des problèmes majeurs limitant la puissance de sortie et la qualité du faisceau. Nous verrons également que le défaut quantique est un

paramètre primordial en ce qui concerne l'effet de lentille thermique et la résistance aux matériaux aux fortes intensités de pompage.

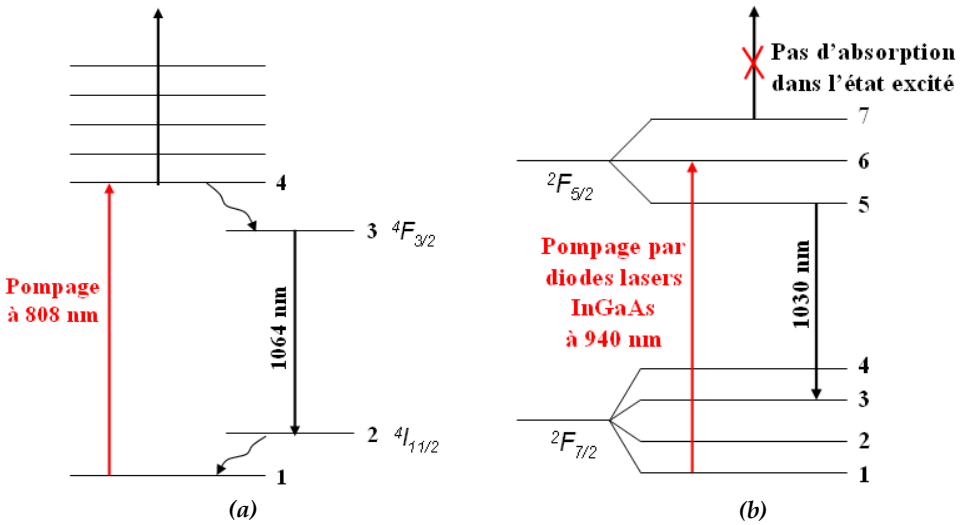


Figure I - 2 : Schéma électronique de l'ion Nd^{3+} (*a*) et de l'ion Yb^{3+} (*b*) dans une matrice de YAG.

Enfin, la durée de vie radiative de l'ion Yb^{3+} est quatre fois plus longue que celle de l'ion Nd^{3+} (1 ms contre 250 µs pour l'ion Nd^{3+}). Ainsi, les matériaux dopés à l'ytterbium permettent un stockage d'énergie plus important que les matrices dopées au néodyme à intensité de pompe constante.

Le principal inconvénient de l'ion ytterbium est la forte réabsorption qu'il entraîne (système laser quasi-3 niveaux) du fait que le niveau terminal de la transition laser est proche du niveau fondamental et est donc thermiquement peuplé.

I.1.1.3. Laser quasi-3 niveaux

Rappelons le principe de fonctionnement d'un laser 4 niveaux (cas des lasers solides dopés Nd^{3+}) et celui d'un laser 3 niveaux (cas du rubis $Cr^{3+}:Al_2O_3$).

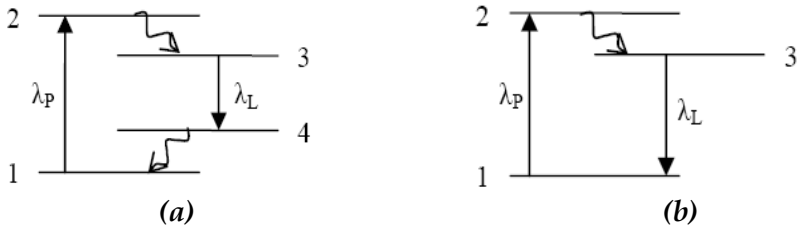


Figure I - 3 : Schéma de fonctionnement d'un laser 4 niveaux (*a*) et d'un laser 3 niveaux (*b*).

Dans les systèmes à 3 et 4 niveaux (Figure I-3), le niveau émetteur (3) est peuplé par relaxation non radiative à partir des niveaux (2) qui sont alimentés par l'absorption de la lumière provenant de la source de pompage.

Dans un système laser à 4 niveaux (Figure I-3 *a*), le niveau terminal (4) de la transition laser est suffisamment séparé du niveau fondamental (1) pour que sa population thermique soit faible. Il n'en est cependant pas trop éloigné pour que les relaxations non radiatives soient très rapides et qu'il se dépeuple efficacement vers le niveau (1). Dans ces conditions, le niveau (4) se vide rapidement et par conséquent, l'inversion de population est obtenue quelle que soit le niveau de pompage.

Dans le cas d'un système à 3 niveaux (Figure I-3 *b*), la transition laser aboutit sur le niveau fondamental (1). L'inversion de population ne peut alors avoir lieu que si plus de la moitié des ions actifs se trouve dans le niveau (3). Il y a donc à prendre en considération un effet de seuil, nécessitant un pompage important.

Le cas de la transition laser $^2F_{5/2}$-$^2F_{7/2}$ de l'ion ytterbium est intermédiaire entre les deux systèmes que nous venons de décrire, on parle de laser quasi-3 niveaux.

Dans le cas de l'ion ytterbium, si on se réfère au schéma de principe de fonctionnement d'un laser 4 niveaux (Figure I-3 *a*), les états (1) et (4) appartiennent au niveau fondamental, à savoir $^2F_{7/2}$, et les états (2) et (3) appartiennent au niveau excité $^2F_{5/2}$. La principale différence entre les modèles à 3 ou 4 niveaux et quasi-3 niveaux repose sur la prise en compte de l'éclatement énergétique des niveaux sous l'effet du champ cristallin. Le taux de peuplement du niveau (4) est directement lié à la température et à la force du champ cristallin. Ainsi, l'inversion de population sera plus ou moins aisée à réaliser selon la matrice cristalline considérée.

Pour une matrice dopée à l'ytterbium dont les niveaux d'énergie sont connus, et en supposant que les multiplets $^2F_{7/2}$ et $^2F_{5/2}$ sont à l'équilibre thermique, les populations des sous niveaux Stark N_i, pour le multiplet fondamental, et N_j, pour le multiplet excité, sont décrites par les distributions de Boltzmann :

$$f_i = \frac{N_i}{N_f} = \frac{\exp(-\frac{E_i}{k_B T})}{Z_f} \text{ et } f_j = \frac{N_j}{N_e} = \frac{\exp(-\frac{E_j - E_{ZL}}{k_B T})}{Z_e} \qquad \text{Équation I-3}$$

où k_B est la constante de Boltzmann, T est la température. E_{ZL} désigne l'énergie de la *zéro-line*, et N_f et N_e désignent respectivement les densités de population des multiplets $^2F_{7/2}$ et $^2F_{5/2}$. Z_f et Z_e sont respectivement les fonctions de partition des multiplets fondamental et excité (Cf. Annexe B).

La figure I-4 illustre le diagramme énergétique de l'ion ytterbium dans une matrice de sesquioxyde d'yttrium avec un taux de dopage de 10 at. %. Les données sont issues des mesures des spectres d'absorption et d'émission que nous avons réalisées à température ambiante (Cf. Annexe B). Nous avons représenté les niveaux d'énergie des sous niveaux Stark, la longueur d'onde de transition entre les différents sous niveaux, ainsi que le taux de population thermique correspondant.

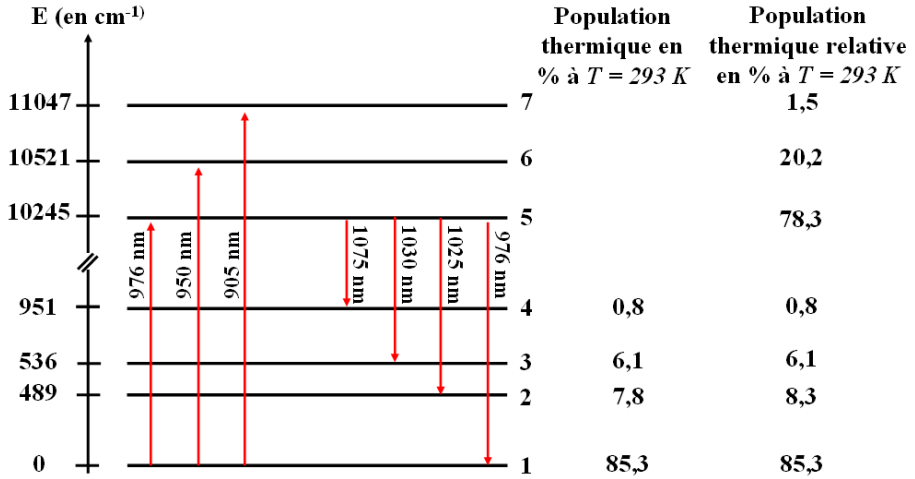


Figure I - 4 : Diagramme énergétique de l'ion ytterbium Yb^{3+} dans une matrice Y_2O_3 (avec un taux de dopage de 10 at. %).

Notons $N_{Yb} = N_f + N_e$ la concentration totale en ions actifs.

L'équation d'évolution temporelle des populations en un point d'un milieu amplificateur dopé à l'ion ytterbium éclairé par deux ondes lumineuses d'intensité I_L à la longueur d'onde λ_L et I_P à la longueur d'onde λ_P, est la suivante [Risk 88], [Fan 92] :

$$\frac{dN_e}{dt} = (\sigma_{abs_P} N_f - \sigma_{em_L} N_e)\frac{I_P}{h\upsilon_P} + (\sigma_{abs_L} N_f - \sigma_{em_L} N_e)\frac{I_L}{h\upsilon_L} - \frac{N_e}{\tau_{fluo}} \qquad \text{Équation I-4}$$

où σ_{abs_P} et σ_{em_P} désignent les sections efficaces d'absorption et d'émission à la longueur de pompe λ_P, σ_{abs_L} et σ_{em_L} désignent les sections efficaces d'absorption et d'émission à la longueur d'onde laser λ_L, et τ_{fluo} désigne le temps de vie radiatif de l'état excité $^2F_{5/2}$. h est la constante de Planck et υ_P et υ_L sont respectivement les fréquences des ondes de pompe et laser.

Considérons dans un premier temps, qu'il n'y a pas d'onde laser à amplifier, l'évolution de la population du niveau excité s'écrit alors :

$$\frac{dN_e}{dt} = (\sigma_{abs_P} N_f - \sigma_{em_L} N_e)\frac{I_P}{h\upsilon_P} - \frac{N_e}{\tau_{fluo}} \qquad \text{Équation I-5}$$

Sachant que la somme des populations des multiplets $^2F_{7/2}$ et $^2F_{5/2}$ reste constante et égale à la concentration totale en ions ytterbium N_{Yb}, introduisons le taux d'excitation β, défini comme le rapport entre la densité de population de l'état excité et la concentration totale en ion ytterbium :

$$\beta = \frac{N_e}{N_{Yb}}, \qquad \text{Équation I-6}$$

Définissons désormais le coefficient d'absorption a_P de l'onde de pompe tel que :

$$\frac{dI_P}{dz} = -\alpha_P I_P \qquad \text{Équation I-7}$$

Le coefficient d'absorption a_P de l'onde de pompe à la longueur d'onde λ_P s'exprime de la manière suivante :

$$\alpha_P = \sigma_{abs_P} N_f - \sigma_{em_P} N_e \qquad \text{Équation I-8}$$

En fonction de taux d'excitation, le coefficient d'absorption s'exprime suivant l'équation I-9 :

$$\alpha_P = N_{Yb}(\sigma_{abs_P} - \beta(\sigma_{em_P} + \sigma_{abs_P})) \qquad \text{Équation I-9}$$

Le pompage du matériau laser est régi par deux équations couplées représentant l'évolution du taux d'excitation et de l'intensité de pompe :

$$\begin{cases} \dfrac{d\beta}{dt} = (\sigma_{abs_P} - \beta(\sigma_{em_P} + \sigma_{abs_P}))\dfrac{I_P}{h\nu_P} - \dfrac{\beta}{\tau_{fluo}} \\ \dfrac{dI_P}{dz} = N_{Yb}((\sigma_{em_P} + \sigma_{abs_P})\beta - \sigma_{abs_P})I_P \end{cases} \qquad \text{Équations I-10}$$

La résolution de ce système d'équations permet l'optimisation de la longueur du milieu laser mais également l'optimisation de la durée de pompe.

En reprenant l'équation caractéristique de l'évolution temporelle des populations en un point d'un milieu amplificateur dopé à l'ion ytterbium (Cf. Equation I-4) et en considérant uniquement le cas de l'amplification d'impulsions lasers, nous obtenons l'équation suivante :

$$\frac{dN_e}{dt} = (\sigma_{abs_L} N_f - \sigma_{em_L} N_e)\frac{I_L}{h\upsilon_L} - \frac{N_e}{\tau_{f\,luo}} \qquad \text{Équation I-11}$$

Le gain laser g_L est défini comme étant la fraction de population des niveaux énergétiques concernés :

$$\frac{dI_L}{dz} = g_L I_L \qquad \text{Équation I-12}$$

z étant la coordonnée longitudinale du milieu à gain, c'est-à-dire la direction dans laquelle se propage l'onde laser à amplifier. Les termes correspondant à la production de photons à la longueur d'onde laser λ_L permettent de formuler le gain g_L de l'onde laser à la longueur d'onde λ_L suivant l'équation :

$$g_L = \sigma_{em_L} N_e - \sigma_{abs_L} N_f \qquad \text{Équation I-13}$$

En introduisant le taux d'excitation β, nous obtenons une nouvelle expression du gain linéique :

$$g_L = N_{Yb}(\beta(\sigma_{em_L} + \sigma_{abs_L}) - \sigma_{abs_L}) \qquad \text{Équation I-14}$$

En reportant l'expression du gain laser dans l'équation I-12, comme pour le cas du pompage, nous obtenons deux équations couplées représentant l'évolution spatio-temporelle du taux d'excitation et de l'intensité de l'onde laser :

$$\begin{cases} \dfrac{d\beta}{dt} = (\sigma_{abs_L} - \beta(\sigma_{em_L} + \sigma_{abs_L}))\dfrac{I_L}{h\nu_L} - \dfrac{\beta}{\tau_{fluo}} \\ \dfrac{dI_L}{dz} = N_{Yb}((\sigma_{em_L} + \sigma_{abs_L})\beta - \sigma_{abs_L})I_L \end{cases}$$ Équations I-15

Nous pouvons également constater que pour de faibles valeurs du taux d'excitation β, le gain linéique peut prendre des valeurs négatives, ce qui correspond à une absorption de l'onde laser. Pour rendre le milieu transparent à la longueur d'onde laser λ_L, il faut annuler le gain. Nous pouvons ainsi déterminer une valeur minimale β_{min} du taux d'excitation au deçà de laquelle le milieu laser est absorbant à la longueur d'onde λ_L :

$$\beta_{\min} = \frac{\sigma_{abs_L}}{\sigma_{em_L} + \sigma_{abs_L}}$$ Équation I-16

Ainsi, pour qu'un milieu laser dopé à l'ytterbium puisse effectivement amplifier une onde électromagnétique, il faut que la proportion en ions actifs se trouvant dans l'état excité soit supérieure à β_{min}.

En reprenant l'équation de l'évolution du taux d'excitation en fonction du temps pour le cas du pompage (Cf. Equation I-10) et en l'égalant à zéro, il est possible de définir une intensité de pompage minimale I_{Pmin}, appelée également intensité de seuil sans perte, qui permet d'atteindre le taux d'excitation β_{min} et ainsi de rendre le milieu laser transparent à la longueur d'onde laser λ_L. Il est représentatif de l'effet seuil d'oscillation laser en l'absence de toute perte dans la cavité. L'expression de I_{Pmin} est décrite suivant l'équation I-17 :

$$I_{P\min} = \frac{h\upsilon_P}{\tau_{fluo}(\sigma_{abs_P}\dfrac{\sigma_{em_L}}{\sigma_{abs_L}} - \sigma_{em_P})}$$ Équation I-17

Dans un système laser de type 4 niveaux, cette intensité de seuil sans perte est nulle puisque le niveau du « bas » n'est pas peuplé thermiquement, autrement dit, le matériau est déjà transparent à la longueur d'onde laser quand il n'y a pas de pompage.

Ajoutons que dans un système réel quasi-3 niveaux, trois grandeurs caractérisent l'aptitude à inverser la population. Il s'agit de l'intensité I_{Pmin} correspondant au seuil laser théorique sans perte, de l'intensité I_{Pseuil} définissant le seuil laser en tenant compte des pertes introduites par la cavité et de l'intensité I_{Psat}, intensité à partir de laquelle la moitié de l'inversion de population maximale est inversée. Cette intensité quantifie la saturation de l'absorption à la longueur d'onde de pompe et est exprimée suivant l'équation I-18 :

$$I_{Psat} = \beta_{\min}(\lambda_P)\frac{hc}{\sigma_{abs_P}\tau_{f\,luo}\lambda_P}$$ Équation I-18

Enfin, en posant les deux paramètres :

$$\beta_{\min}(\lambda_P) = \frac{\sigma_{abs_P}}{\sigma_{abs_P} + \sigma_{em_P}} \text{ et } \beta_{\min}(\lambda_L) = \frac{\sigma_{abs_L}}{\sigma_{abs_L} + \sigma_{em_L}}$$ Équation I-19

l'intensité seuil de pompage est reliée à l'intensité de saturation par l'équation I-20 :

$$I_{P\min} = \frac{\beta_{\min}(\lambda_L)}{\beta_{\min}(\lambda_P) - \beta_{\min}(\lambda_L)} I_{Psat} \qquad \text{Équation I-20}$$

Compte tenu de la diminution de l'intensité de pompe au cours de sa propagation dans le milieu laser due à l'absorption (Cf. Equation I-7), il existe une distance de propagation L_{max} dans le matériau à partir de laquelle I_P devient inférieure à I_{Pmin}. Au delà de cette distance, l'intensité de pompe est insuffisante pour assurer la transparence de milieu laser à la longueur d'onde laser λ_L. Ce comportement est représenté sur la figure I-5.

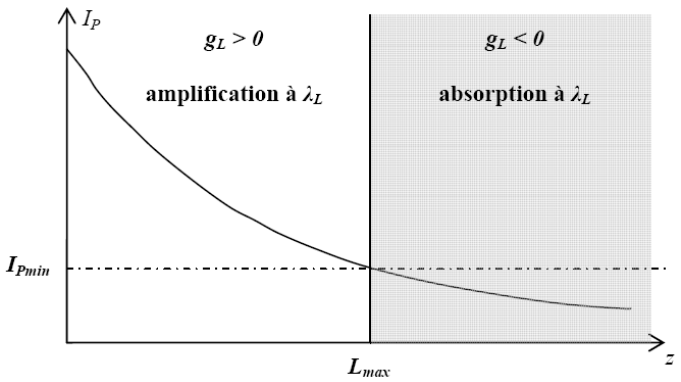


Figure I - 5 : Longueur d'amplification limitée dans le cas d'un laser quasi-3 niveaux.

Il apparaît donc qu'en pompage longitudinal, la longueur du milieu amplificateur ne doit pas excéder L_{max} sous peine que l'onde laser à amplifier soit réabsorbée par le milieu.

I.1.1.4. Quelques mots sur la spectroscopie de l'ion ytterbium

Pour décrire le fonctionnement laser, on considère les trois types d'interaction lumière/matière : l'absorption, l'émission stimulée et l'émission spontanée. Ces phénomènes sont associés à trois grandeurs : la section efficace d'absorption, la section efficace d'émission et la durée de vie radiative.

Niveaux énergétiques de l'ion ytterbium : spectres d'absorption et d'émission

En se référant au diagramme énergétique de l'ion ytterbium (Figure I-1), les spectres d'absorption et d'émission permettent d'attribuer chaque raie du spectre à une transition entre deux sous niveaux Stark, comme précisé sur la figure I-6. Cette figure représente les spectres d'absorption (courbe verte) et d'émission (courbe bleue), à température ambiante, d'une céramique Yb : Sc_2O_3 dopée 10 at. %, ainsi que les transitions correspondantes.

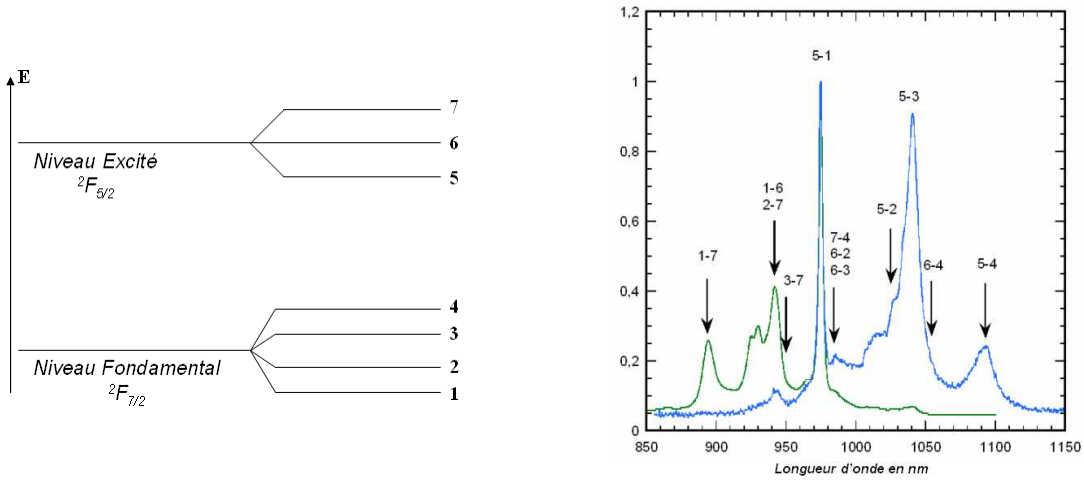


Figure I - 6 : Spectres d'absorption (courbe verte) et d'émission (courbe bleue) d'une céramique Yb : Sc_2O_3 dopée 10 at. % à température ambiante.

Les pics d'absorption et d'émission sont confondus pour une longueur d'onde d'environ 970 nm, correspondant à la transition entre le premier sous niveau Stark du multiplet fondamental et le premier sous niveau Stark du multiplet excité : cette transition correspond à la *zéro-line*.

Un dernier point à noter est qu'en raison de la population thermique des sous niveaux Stark, un rayonnement émis peut être réabsorbé. Ce phénomène induit des modifications des spectres d'émission avec une diminution apparente de l'intensité des raies les plus sensibles (niveaux proches de l'énergie d'absorption) et par conséquence une augmentation de celles à plus faible énergie (où l'absorption est minimale).

Sections efficaces d'absorption et d'émission

Si la section efficace d'absorption peut être déterminée expérimentalement avec une grande précision à partir du spectre d'absorption et en connaissant la concentration en ion actif, il n'en est pas de même pour l'estimation de la section efficace d'émission. Ce calcul s'applique par l'intermédiaire de deux méthodes : les méthodes de réciprocité et de Fuchtbauer-Ladenburg. Ces méthodes sont décrites dans l'annexe B. Toutefois, les grandes lignes seront rappelées dans cette partie.

En exprimant le principe de réciprocité de l'absorption et de l'émission stimulée, découvert par Einstein, pour un système de niveaux d'énergie à l'équilibre thermodynamique, il est possible de relier les sections efficaces d'absorption σ_a et d'émission stimulée σ_e par l'intermédiaire de l'équation I-21 :

$$\sigma_e(\lambda) = \sigma_a(\lambda)\frac{Z_f}{Z_e}\exp\left(-\frac{E_{ZL} - 1/\lambda}{k_B T}\right) \qquad \text{Équation I-21}$$

où k_B est la constante de Boltzmann, T la température (en K), E_{ZL} est l'énergie de la *zéro-line*. Z_f et Z_e désignent respectivement les fonctions de partition de l'état fondamental et de l'état excité et sont calculées comme suit :

$$Z_f = \sum_i g_i \exp(-\frac{E_i}{k_B T}) \text{ et } Z_e = \sum_j g_j \exp(-\frac{E_{ZL} - E_j}{k_B T}) \qquad \text{Équation I-22}$$

où g_i et g_j sont les dégénérescences respectives de chaque sous-niveau Stark *i* et *j*.

L'équation I-21 définit la relation de réciprocité. Cette expression nécessite la connaissance exacte du diagramme des niveaux d'énergie de l'ytterbium. Dans la littérature, le problème est que les valeurs des énergies entre chaque sous niveau diffèrent d'un auteur à l'autre. Il est donc nécessaire de mesurer précisément les spectres d'absorption et d'émission.

Gaumé ajoute que la détermination des niveaux d'énergie électroniques est parfois rendue délicate en raison des interactions vibroniques [Gaumé 02]. Les ions Yb^{3+} inclus dans un cristal peuvent avoir des environnements différents en raison de sites de substitution non-équivalents, ou de défauts dans leur voisinage (ions compensateurs de charge, dislocations, impuretés). Il en résulte, pour ces différents types d'ions, différents niveaux d'énergie. La détermination de la section efficace d'émission stimulée par la méthode de réciprocité peut donc s'avérer délicate.

Grâce à la relation existant entre les coefficients d'Einstein (coefficients qui définissent les probabilités d'absorption, d'émission stimulée et d'émission spontanée), il est possible d'établir la relation liant le temps de vie radiatif au spectre d'absorption.

$$A_{21} = \frac{1}{\tau_{rad}} = \frac{8}{6} \frac{8\pi n^2 c}{\lambda^4} \int \sigma_a(\lambda) d\lambda \qquad \text{Équation I-23}$$

La section efficace d'émission stimulée est calculée à partir du spectre d'émission grâce à la relation de Füchtbauer-Ladenburg :

$$\sigma_e(\lambda) = \frac{\lambda^4}{8\pi n^2 c} \frac{1}{\tau_{rad}} \frac{I(\lambda)}{\int I(\lambda) d\lambda} \qquad \text{Équation I-24}$$

Cette méthode nécessite de connaître précisément la durée de vie radiative de l'ion Yb^{3+} dans la matrice hôte. Afin de déterminer les sections efficaces d'émission à basse température, il est nécessaire de mesurer le spectre d'émission mais également la durée de vie radiative à ces températures.

Des mesures expérimentales de spectres d'absorption et d'émission ont été réalisées à température ambiante et à basse température. Le dispositif expérimental mis en place ainsi que le calcul des sections efficaces d'absorption et d'émission sont détaillés en annexe B. Nous avons ainsi pu montrer que lorsque la température du matériau diminue, les raies des spectres d'absorption et d'émission se rétrécissent et les valeurs des sections efficaces correspondantes augmentent [Garcia 08].

Durée de vie radiative

Des mesures de la durée de vie radiative à température ambiante ont également été réalisées sur une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. % (Cf. Annexe B).

La durée de vie radiative est étroitement liée au phénomène de réabsorption, lui-même dépendant de trois paramètres :

- le premier, la géométrie de l'échantillon. La taille de l'échantillon va être un paramètre crucial car plus elle sera importante, plus le rayonnement pourra être réabsorbé et donc retardé avant de parvenir au point de mesure.
- le second, la température. La population des niveaux Stark augmente avec la température, et de ce fait, de plus en plus de transitions sont susceptibles d'être réabsorbées.
- le troisième, la concentration en ion ytterbium.

L'évolution de la durée de vie en fonction de la concentration en ytterbium est une mesure importante car elle permet de mettre en évidence deux phénomènes compétitifs : une augmentation de la durée de vie due à la réabsorption, et plus particulièrement due au phénomène de piégeage (transfert radiatif connu sous sa terminologie anglaise «self-trapping ») et une diminution due aux transferts non radiatifs. Ce dernier cas est essentiellement provoqué par la présence d'impuretés dans le matériau.

Trois mémoires de thèse évoquent ces mesures [Laversenne 02], [Sablayrolles 06] et [Hraiech 07].

Après une description de la technique d'élaboration de monocristaux par la méthode de la zone flottante utilisant un chauffage laser, Laversenne analyse les propriétés spectroscopiques des ions Yb^{3+}, Er^{3+} et Ho^{3+} dans des fibres monocristallines de sesquioxydes d'yttrium, de scandium, de lutétium et de gadolinium. Elle étudie notamment l'influence des transferts radiatifs et non radiatifs sur l'extinction de l'émission spontanée. Ainsi, pour un taux de dopage d'environ 20 at. %, la durée de vie radiative de cet ion actif dans une matrice de sesquioxyde d'yttrium diminue d'un facteur sept comparé à un matériau dopé 1 at. %.

Hraiech se propose d'analyser les propriétés spectroscopiques de l'ion ytterbium dans des monocristaux cubiques de sesquioxydes d'yttrium, de lutétium et de scandium, mais également dans des fluorures de calcium CaF_2 : elle met l'accent sur la variation de la durée de vie radiative en fonction de la concentration en ytterbium, mettant en évidence la présence de centres piégeurs [Hraeich 07].

Enfin, après une étude du transfert de charge de l'ytterbium, Sablayrolles étudie les propriétés spectroscopiques de l'émission infrarouge de l'ytterbium dans des matériaux type borate.

Spectre de gain

Les paramètres de sections efficaces d'absorption, d'émission et de durée de vie radiative sont importants dans le sens où ils permettent de prévoir facilement certaines propriétés lasers du matériau.

Rappelons qu'à la longueur d'onde λ_L, le gain de l'onde laser, g_L est exprimé à partir des sections efficaces d'absorption et des sections efficaces d'émission suivant l'équation I-25 :

$$g_L = \sigma_{em_L} N_e - \sigma_{abs_L} N_f \qquad \text{Équation I-25}$$

En introduisant le taux d'excitation β, nous avons montré que l'expression du gain laser s'exprime par l'équation I-26 :

$$g_L = N_{tot}[\beta(\sigma_{em_L} + \sigma_{abs_L}) - \sigma_{abs_L}] \qquad \text{Équation I-26}$$

Rappelons que pour rendre le milieu amplificateur transparent à la longueur d'onde laser, il faut que le taux d'excitation soit supérieur à un taux d'excitation minimal β_{min} :

$$\beta_{\min} = \frac{\sigma_{abs_L}}{\sigma_{em_L} + \sigma_{abs_L}} \qquad \text{Équation I-27}$$

Il est alors possible de tracer le spectre de gain pour différentes valeurs du taux d'excitation. Ce spectre représente le gain en fonction de la longueur d'onde : il permet de déterminer, pour l'inversion de population correspondante, le domaine de longueurs d'onde sur lequel l'effet laser est possible en l'absence de perte dans la cavité. La figure I-7 représente le spectre de gain de l'ion Yb^{3+} dans une matrice YAG [Casagrande 06].

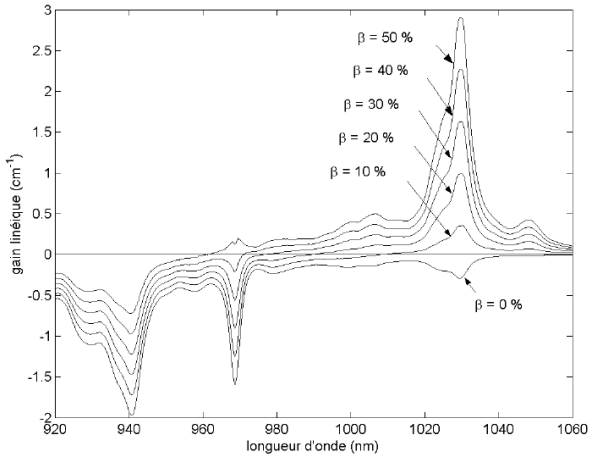


Figure I - 7 : Spectre de gain linéique d'un monocristal Yb : YAG dopé 2 at. % à température ambiante, pour des taux d'excitation de 0, 10, 20, 30, 40 et 50 %.

Casagrande a montré que pour des longueurs d'onde supérieures à 980 nm, la forme du spectre de gain varie peu pour des taux d'inversion supérieurs à une dizaine de %. Ceci s'explique par le fait que dans cette zone spectrale, les valeurs de la section efficace d'émission restent bien supérieures à celles de la section efficace d'absorption. Ainsi lorsque le taux d'excitation est supérieur à 10 %, en première approximation, l'expression du gain linéique est caractéristique de celui d'un laser à quatre niveaux : l'effet de réabsorption sur le spectre de gain est négligeable.

Par contre, lorsque le taux d'excitation prend des valeurs plus faibles, le profil spectral du gain linéique dépend fortement de la valeur du taux d'excitation β : l'effet de réabsorption n'est plus négligeable. Dans ces conditions, le maximum du spectre de gain correspond à la transition laser 5-4 située autour de 1050 nm (même si la valeur de la section efficace d'émission y est bien moins importante que celle de la transition laser 5-3 située autour de 1030 nm). Pour des valeurs du taux d'excitation plus importantes, le maximum du spectre de

gain se décale vers les longueurs d'onde plus courtes car, dans ce cas, le phénomène de réabsorption devient négligeable.

Un point important que Casagrande a montré et que nous retrouverons dans nos mesures de longueurs d'onde du faisceau laser est qu'il existe une compétition entre les deux transitions lasers 5-4 et 5-3 existant pour une valeur particulière du taux d'excitation pour laquelle le maximum du spectre de gain passe de 1050 nm à 1030 nm [Casagrande 06].

Dans le cadre de nos mesures, nous n'avons pas pu mesurer le spectre de gain pour nos matériaux. En effet, les spectres d'absorption ont été mesurés jusqu'à des longueurs d'onde de 1000 nm. Une perspective de mesure serait de mesurer à nouveau ces spectres jusqu'à 1100 nm pour différentes températures du matériau.

I.1.2.Choix des matrices hôtes à l'ion ytterbium

I.1.2.1. Figures de mérite

Les propriétés influant sur les effets thermiques tels que la résistance aux chocs thermiques ou le paramètre de lentille thermique permettent de définir des facteurs de mérite, mettant ainsi en exergue les matériaux les mieux adaptés pour des applications lasers de haute puissance.

De nombreux auteurs ont utilisé les mêmes figures de mérite pour la sélection de matériaux lasers. Citons entre autres les mémoires de thèse de Gaumé, Petit, Casagrande et Albach [Gaumé 02], [Petit 06], [Casagrande 06], [Albach 10].

La première figure de mérite est corrélée à la résistance aux chocs thermiques des matériaux. Un premier paramètre de résistance à la fracture R_T a été proposé [Koechner 99], [Krupke 86].

$$R_T = \frac{\sigma_f \kappa f(\upsilon)}{E\alpha} \qquad \text{Équation I-28}$$

où σ_f, représentant la contrainte maximale supportée par le matériau avant la fracture, κ, la conductivité thermique, E est le module d'Young, a est le coefficient de dilatation thermique, et enfin $f(\upsilon)$ est une fonction du coefficient de Poisson qui dépend de la géométrie du matériau. Ce paramètre R_T dépend donc uniquement des paramètres intrinsèques du matériau : plus la valeur de R_T est importante, moins le matériau est sensible aux chocs thermiques, c'est-à-dire aux gradients de température imposés par le pompage.

Cependant, la détermination de la contrainte maximale du matériau avant d'atteindre la fracture est assez délicate puisqu'elle dépend de l'état de surface des cristaux. Elle est donc sujette, pour un même matériau, à de grandes dispersions de mesures selon la préparation des échantillons. La théorie de Griffith a montré que la contrainte maximale est une constante, reliée à la profondeur a des fissures selon l'expression :

$$\sigma_f = \frac{YK_c}{\sqrt{a}} \qquad \text{Équation I-29}$$

Y est un facteur géométrique proche de l'unité et K_c, appelé coefficient de ténacité, est un paramètre de résistance mécanique à la fracture. Le facteur Y ainsi que la profondeur des fissures sont des paramètres contrôlables, ils peuvent donc être supprimés du facteur de mérite :

$$R'_T = \frac{K_c \kappa f(\upsilon)}{E\alpha} \qquad \text{Équation I-30}$$

Gaumé a tracé K_c en fonction du module d'Young E [Gaumé 02]. Il apparaît une relation de proportionnalité entre les deux. Cette corrélation est validée dans les monocristaux tandis que dans les céramiques, la valeur de K_c est exaltée, les joints de grains limitant la propagation des fractures.

Albach propose de représenter une figure de mérite donnant le facteur de mérite R_T en fonction de la conductivité thermique des matériaux étudiés [Albach 10]. Possédant une forte conductivité thermique, et par conséquent un facteur de mérite R'_T important, il apparaît déjà très clairement que certains matériaux tels que les sesquioxydes de terre rare ou bien encore le fluorure de calcium se distinguent des autres matériaux.

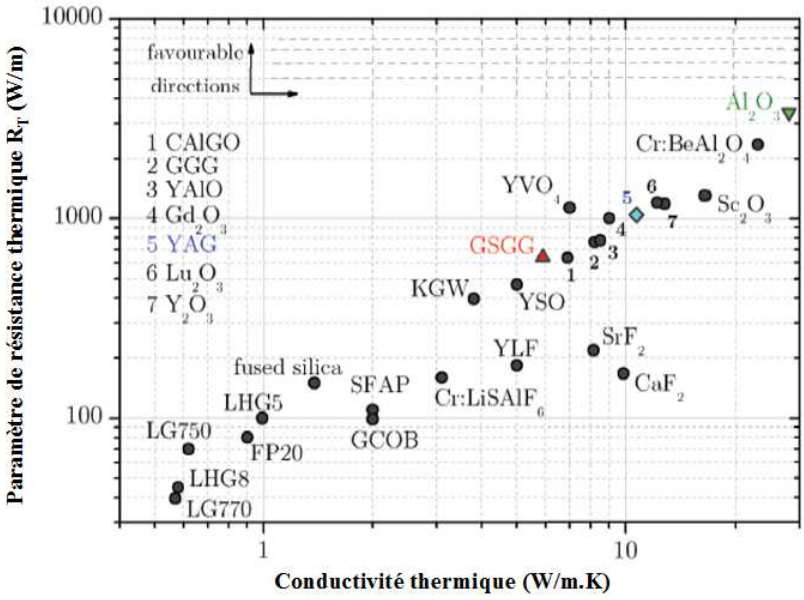


Figure I - 8 : Figure de mérite de cristaux représentant le paramètre de résistance thermique R_T en fonction de la conductivité thermique [Albach 10].

La deuxième figure de mérite est, quant à elle, fonction de la puissance maximale de pompe admissible par un matériau laser. Le facteur de mérite R_p correspondant dépend à la fois de la conductivité thermique κ, mais aussi du coefficient de dilatation a et du défaut quantique η_Q du matériau considéré [Casagrande 06], [Petit 05] :

$$R_p = \frac{\kappa^2}{\alpha\eta_Q} \qquad \text{Équation I-31}$$

Ce paramètre de résistance à la puissance de pompage montre qu'un bon matériau pour des applications de fortes puissances, doit présenter une très forte conductivité thermique, un

faible défaut quantique, et un faible coefficient de dilatation. Remarquons tout de même le caractère prépondérant de la conductivité thermique qui intervient au carré dans l'expression de ce facteur de mérite.

Tenant compte de la production de chaleur pour évaluer la focale thermique créée dans un milieu laser pendant le pompage, un nouveau facteur de mérite R_f peut être défini :

$$R_f = \frac{\kappa}{\eta_Q \frac{dn}{dT}} \qquad \text{Équation I-32}$$

Ce facteur de mérite fait intervenir la conductivité thermique, mais également le défaut quantique et le coefficient thermo-optique dn/dT du matériau.

Casagrande propose une figure de mérite thermique de différents cristaux où, en abscisse, est représenté le facteur de mérite R_f et en ordonnée, le facteur de mérite R_p. Il a calculé ces deux facteurs de mérite notamment pour des grenats et des sesquioxydes dopés ytterbium selon qu'ils sont pompés sur la transition 1-5 ou sur la transition 1-6.

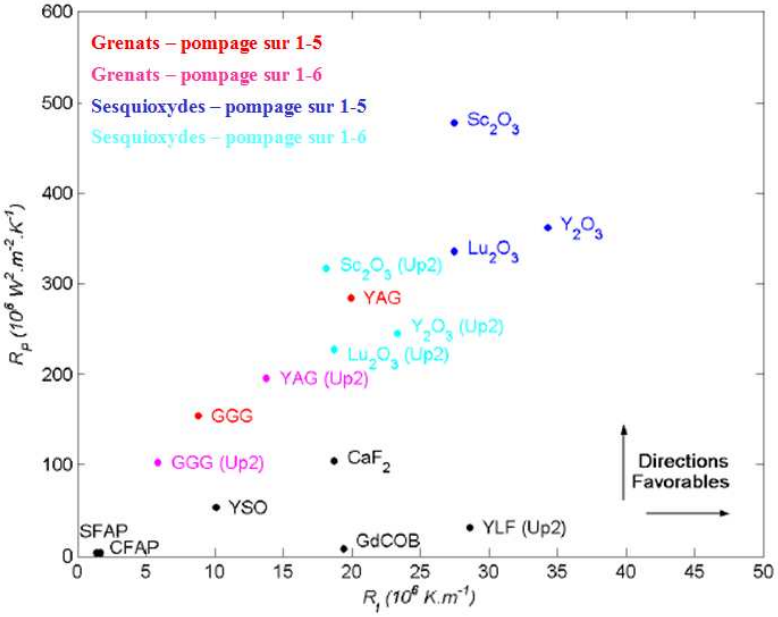


Figure I - 9 : Figure de mérite de cristaux, représentant le facteur R_p en fonction du facteur R_f.

Afin de pouvoir déterminer les facteurs R_p et R_f, les valeurs de la conductivité thermique, du coefficient de dilatation et du coefficient thermo-optique dn/dT ne sont pas toujours connues. Pour cette figure de mérite, Casagrande a utilisé les valeurs de la littérature pour des matériaux non dopés. Nous voyons donc toute l'importance de mesurer précisément les valeurs de ces paramètres thermomécaniques.

Selon les deux figures de mérite, il apparaît clairement que les sesquioxydes d'yttrium Y_2O_3, de scandium Sc_2O_3 et de lutétium Lu_2O_3 sont d'excellents candidats pour des applications lasers de haute puissance. Le YAG reste tout de même un bon candidat pour ce type d'application.

Remarque :

Il existe d'autres figures de mérite permettant d'évaluer quelles sont les matrices hôtes les plus adaptées pour un ion actif.

Une première évaluation, orientée vers les applications d'oscillateurs et les amplificateurs pulsés tient compte des sections efficaces d'émission et des intensités minimales de pompe pour atteindre l'inversion de population [DeLoach93]. Ces critères d'évaluation placent les sesquioxydes en bonne position après les fluoro-phosphates du type $Ca_5(PO_4)_3F$ et les tungstates $KGd(WO_4)_2$ (KGdW) et $KY(WO_4)_2$ (KYW).

Le second modèle, développé par Brenier [Brenier 01-a et -b], fait intervenir, en plus des sections efficaces d'émission stimulées et des durées de vie radiatives, des paramètres expérimentaux liés au pompage par diode : section efficace d'absorption aux longueurs d'onde de pompage et d'émission laser, le profil du faisceau pompe de la diode laser ainsi que la variation de l'intensité durant la propagation. En mode amplificateur, cette évaluation rejoint les résultats obtenus par DeLoach cités précédemment. Par contre, pour une utilisation en oscillateur, les matrices les plus prometteuses sont les tungstates et Sc_2O_3.

En regard des différents critères d'évaluation considérés, les sesquioxydes apparaissent comme des matrices très prometteuses pour le dopage par l'ion Yb^{3+}.

I.1.2.2. Matériaux lasers sous forme de céramiques

Les matériaux sesquioxydes possèdent des températures de fusion extrêmement élevées, de l'ordre de 2400°C, et sont de ce fait très difficiles à obtenir sous forme cristalline. À ce jour, les dimensions des monocristaux de sesquioxydes de terres rares obtenus par la méthode Czochralski n'excèdent pas quelques millimètres [Fornaserio 99], [Petermann 00], et [Petermann 05].

La solution est la synthèse de céramiques transparentes. Ce procédé consiste en la densification maximale d'une céramique polycristalline jusqu'à ce qu'elle devienne transparente. A l'heure actuelle, la transparence n'est envisageable qu'avec des matrices de systèmes cristallins cubiques car il est nécessaire que l'indice de réfraction du matériau soit isotrope. Ainsi, la lumière qui passe d'un grain à l'autre de la céramique se propage en ligne droite et n'est pas diffusée. Cette technique est bien maîtrisée pour le YAG [Ikesue 95], [Ikesue 96] et [Ikesue 97]. Nous pouvons cependant citer qu'il existe des céramiques pour des matériaux anisotropes [Mao 08], [Taira 10], [Akiyama 10].

Historiquement, le fluorure de calcium dopé dysprosium fut la première céramique laser à être testée par Carnall en 1966. Il existe différentes méthodes de fabrication de céramiques. Nous pouvons entre autre citer la méthode de pressage à chaud ([Carnall 66], [Carnall 69], [Yoldas 75]), la méthode dite de pressage à froid ([Ikesue 95]) ou bien encore la méthode de chimie douce [Mulder 85], [With 85]).

Dans le cas des sesquioxydes, l'obtention de céramique de qualité optique est plus difficile mais des échantillons ont été réalisées [Kong 04], [Takaichi 05] et mis en œuvre dans des cavités lasers en mode continu [Kong 03] ou à blocage de mode [Shirakawa 03]. Les

céramiques de sesquioxydes de terres rares dopés à l'ion ytterbium sont désormais disponibles commercialement dans des dimensions centimétriques [Konoshima]. Dans le cas du fluorure de calcium, l'obtention de céramiques transparentes a été beaucoup plus complexe à obtenir. A ce jour, l'équipe de Basiev *et al.* ont réussi à obtenir des céramiques Yb : CaF_2 dopé à 3 at. %, de 100 mm de diamètre [Basiev 10]. Notons également les travaux de Mortier *et al.* qui synthétisent ces céramiques par la méthode de la chimie douce [Lyberis 10].

Un autre avantage des céramiques transparentes réside dans le fait que la propagation des fractures au sein du matériau est limitée par les joints de grains. En conséquence, la relation de proportionnalité empirique liant la ténacité du matériau à son module d'Young n'est plus valable. Le coefficient de ténacité K_c peut être exalté d'un facteur 5 [Bisson 04]. Il en est de même pour les paramètres de résistance à la fracture R_T et R_P.

I.1.2.3. Morphologie des amplificateurs lasers solides

Dans les facteurs de mérite concernant la résistance aux contraintes thermiques R_T et laser R_P, ainsi que dans le facteur de mérite concernant l'effet de lentille thermique R_f, (Cf. § I.1.2.1), les critères morphologiques du milieu laser n'apparaissent pas. Ces facteurs de mérite permettent des comparaisons entre les matériaux mais à morphologie identique. Il est possible de jouer sur la forme du milieu laser pour gagner en résistance : un échantillon volumineux par rapport à la zone pompée évacuera difficilement la charge thermique emmagasinée. La différence de température entre le centre et le bord du cristal est alors importante et les contraintes internes sont fortes. La partie suivante présente les avantages et inconvénients des différentes morphologies envisageables telles que les fibres optiques, les disques minces ou encore les matériaux composites.

Les fibres

Une première manière de limiter les problèmes thermiques consiste à diminuer le diamètre d'un barreau de matériau laser pour réduire son volume tout en augmentant sa longueur, le but étant d'augmenter la surface d'échange thermique avec le milieu extérieur. On obtient ainsi une fibre optique qui possède un rapport volume sur surface d'échange très limité. Les fibres sont en général, faites de matériaux vitreux qui sont facilement malléables pour étirer des fibres de quelques dizaines à quelques centaines de microns de diamètre sur de grandes longueurs. Généralement, ces fibres sont faiblement dopées et la production de chaleur au sein du matériau par unité de longueur est ainsi limitée. Les fibres sont donc de bons candidats pour les lasers de puissance. Des systèmes fibrés délivrant des puissances de plusieurs kilowatts en régime continu ont été réalisés [Jeong 04]. En régime déclenché, les puissances moyennes obtenues atteignent quelques dizaines de watts, avec des impulsions ayant une énergie de 500 µJ avec un taux de répétition de 100 kHz [Limpert 05]. Si les fibres dopées à l'ion ytterbium permettent d'atteindre des puissances élevées en régime continu, leur utilisation en mode pulsé se limite à des impulsions faiblement énergétiques. En effet,

les fibres ont par définition une section transverse faible qui entraîne de fortes fluences lasers au sein du matériau, et la tenue au flux du matériau fibré limite alors l'énergie par impulsion.

Les disques minces

Etudions maintenant le cas de la géométrie des disques minces. Giesen *et al.* ont été les premiers à utiliser ce concept [Giesen 94]. L'objectif est de pouvoir limiter les problèmes thermiques tout en privilégiant de grandes sections transverses et de diminuer l'épaisseur du cristal pour favoriser son refroidissement : nous obtenons ainsi des disques minces dont le rapport volume sur surface d'échange thermique est également très limité.

Ceci est d'autant plus réalisable que dans le cas de l'ytterbium, la proximité des ions n'affecte pas le gain. La concentration en ion Yb^{3+} peut alors être très élevée sans pour autant entraîner des phénomènes parasites de relaxation croisée comme c'est le cas, par exemple, pour le néodyme. L'absorption du milieu laser est alors très importante et de faibles épaisseurs peuvent absorber une grande proportion de la puissance de pompe. Il existe également des systèmes de pompage multi-passage qui permettent une grande absorption de la pompe sur des disques minces faiblement dopés [Bourdet 06], [Giesen 07].

Les disques minces sont donc de bons candidats pour les lasers de puissance. Dans le domaine de l'amplification d'impulsions lasers nanosecondes, plusieurs projets actuellement en cours visent la réalisation d'amplificateurs à disques pour atteindre la gamme du kilowatt de puissance moyenne avec des impulsions d'une centaine de joules et un taux de répétition d'une dizaine de hertz [Avizonis 09], [Tummler 09], [Killi 09]. Nous pouvons citer par exemple le programme LUCIA en cours d'élaboration à l'Ecole Polytechnique [Chanteloup 03], [Bourdet 05].

Ces disques peuvent être refroidis par la face arrière du milieu laser, et traités, pour réfléchir à la fois l'onde de pompe et l'onde laser [Bourdet 05], [Casagrande 06].

Les matériaux composites

Dans le cas des amplificateurs à disque mince, et pour augmenter la dissipation de la charge thermique dans les disques lasers, un matériau possédant une bonne conduction thermique peut être collé sur la face d'entrée du milieu laser. L'évacuation de la chaleur se fait alors par les deux faces du disque et l'élévation de température due au pompage est ainsi réduite. Il faut naturellement que ce matériau conducteur soit transparent aux longueurs d'onde de pompe et laser. De tels systèmes composites peuvent également être réalisés à partir d'un matériau mince fortement dopé et du même matériau non dopé dans lequel il n'y a pas de génération de chaleur et une très bonne conduction thermique. Les céramiques transparentes cofrittées permettent d'obtenir de tels systèmes exempts de réflexion à l'interface entre les matériaux dopés et non dopés. Des collages de matériaux meilleurs conducteurs tels que le saphir ou le diamant ont également été utilisés [Tzuk 04], [Tokitai 05].

I.2 Pourquoi les mesures aux basses températures sont-elles si importantes ?

Les propriétés spectroscopiques et thermomécaniques des matériaux lasers sont très nettement améliorées à température cryogénique. Compte tenu du manque de résultat existant dans ce domaine de température pour les sesquioxydes, nous avons choisi de mesurer les paramètres les plus intéressants pour la conception d'un laser travaillant dans ce domaine de température.

La mise en place de mesures à basse température n'est pas simple à mettre en œuvre, et plus particulièrement du point de vue des moyens de métrologie nécessaires et spécifiques à ce domaine. Nous renvoyons le lecteur à l'annexe C pour de plus amples renseignements.

I.2.1. Amélioration des propriétés spectroscopiques

Tout d'abord, d'un point de vue spectroscopique, il a été montré que les spectres d'absorption et d'émission sont modifiés lorsque la température diminue. En effet, nous avons mesuré les spectres d'absorption et d'émission à température ambiante et à basse température (Cf. Annexe B), et nous en avons déduit les sections efficaces d'absorption et d'émission correspondantes. La diminution de la température du milieu amplificateur ne provoque pas seulement une augmentation des valeurs des sections efficaces, mais elle entraîne également un rétrécissement des raies d'absorption et d'émission. Comme évoqué au paragraphe I.1.1.4., cette partie est détaillée en annexe B. D'autre part, la diminution de la température du matériau étudié entraîne une faible diminution de la durée de vie radiative. Citons par exemple, les travaux de Dong *et al.* [Dong 03]. Ces derniers ont montré que lorsque la température de cristaux Yb :YAG diminue de 300 K à 50 K, les sections efficaces d'émission augmentent d'un facteur 5 et la durée de vie radiative diminue environ d'un facteur 1,5.

I.2.2. La conductivité thermique : une fonction de la température

Evoquons désormais le fait que la conductivité thermique dépende de la température, dépendance en *1/T* au voisinage de la température ambiante [Gaumé 02]. Ainsi, lorsque la température du matériau diminue, la conductivité thermique augmente. Des mesures de ce paramètre thermique ont été effectuées sur différents matériaux comme le YAG ou bien encore le sesquioxyde d'yttrium, et confirment cette relation entre conductivité thermique et température pour des gammes de température allant de 100 à 300 K [Klein 67], [Fan 07]. Pour une céramique de sesquioxyde d'yttrium Y_2O_3 non dopée, Fan *et al.* mesurent des valeurs de conductivité thermique de 52 W/m.K à 90 K et de 13 W/m.K à 298 K : la conductivité thermique est quatre fois plus importante à 90 K qu'à température ambiante.

Slack *et al.* ont également effectué des mesures de conductivité thermique de différents grenats et ont montré que cette dernière atteint un maximum situé aux alentours de 30 K, puis chute drastiquement pour tendre vers zéro lorsque la température se rapproche du zéro absolu [Slack 71]. La figure I-10 montre l'évolution de la conductivité thermique de quatre échantillons de YAG monocristallins en fonction de la température :

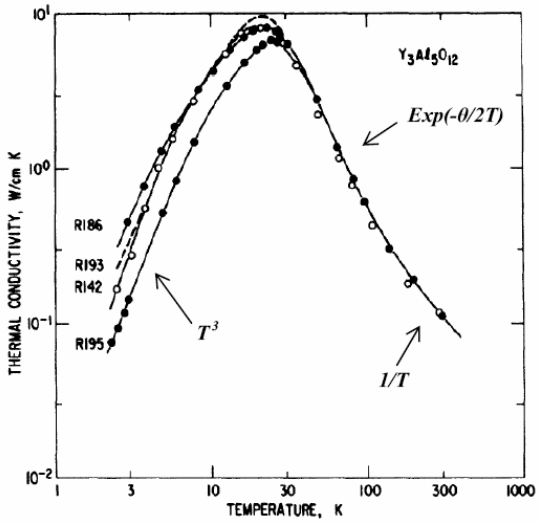


Figure I - 10 : Dépendance de la conductivité thermique en fonction de la température : cas pour un monocristal de YAG non dopé [Slack 71].

Plus précisément, pour un cristal de YAG, Bourdet *et al.* [Bourdet 07 b] se sont basés sur les travaux de Numazawa *et al.* [Numazawa 01] pour distinguer deux types de comportement de la conductivité thermique lorsque la température diminue : pour des températures comprises entre 30 et 160 K, la conductivité thermique est proportionnelle à un facteur $1/T^2$. Pour des températures supérieures à 160 K, la conductivité thermique se comporte en $1/T$.

Cette dépendance en température sera davantage détaillée lors de l'étude de ce paramètre, dans la seconde partie de ce mémoire. Nous verrons également que d'après le modèle de Gaumé [Gaumé 02], la conductivité thermique dépend également du taux de dopage en ions actifs. La conductivité thermique étant fonction des paramètres de diffusivité thermique, de densité du matériau et enfin de la capacité thermique massique, nous évaluerons également la dépendance de ces paramètres en fonction de la température.

De plus, nous verrons que la conductivité thermique dépend également de la nature de l'échantillon, de la taille des grains et du libre parcours moyen. Toutes ces dépendances seront analysées dans le chapitre 4 de ce mémoire.

I.2.3. Influence de la température sur les autres propriétés thermomécaniques des matériaux lasers

Soulignons le fait que la température joue également un rôle sur les coefficients de dilatation et thermo-optique. Comme pour le cas de la conductivité thermique, des mesures ont été réalisées, à basse température, sur des cristaux et des céramiques de YAG et de sesquioxyde

d'yttrium [Klein 67], [Wynne 99], [Aggarwal 05] et [Fan 07]. Prenons pour exemple les valeurs mesurées par Aggarwal *et al.* pour un cristal de YAG non dopé dont les valeurs expérimentales sont représentées sur la figure I-11 :

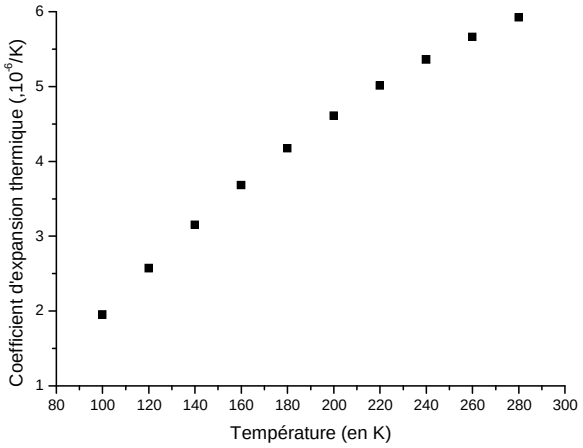


Figure I - 11 : Dépendance du coefficient de dilatation en fonction de la température : cas pour un monocristal de YAG non dopé [Aggarwal 05].

D'une manière générale, le coefficient de dilatation diminue lorsque la température du milieu baisse. Ce phénomène n'est pas applicable aux matériaux anisotropes.

Considérons à présent le coefficient thermo-optique *dn/dT*. Comme pour le coefficient de dilatation, de nombreuses mesures ont été effectuées sur des échantillons de YAG et de sesquioxyde d'yttrium. Dans le cas d'un cristal de YAG non dopé, l'évolution du coefficient thermo-optique *dn/dT* est représentée sur la figure I-12 [Aggarwal 05] :

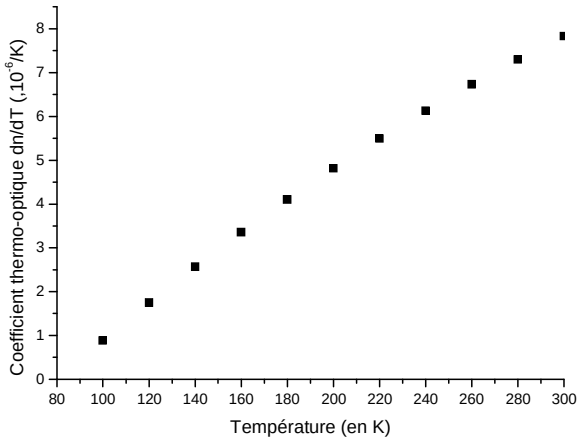


Figure I - 12 : Dépendance du coefficient thermo-optique *dn/dT* en fonction de la température : cas pour un monocristal de YAG non dopé [Aggarwal 05].

Nous pouvons là encore remarquer que la baisse de température entraîne une diminution du coefficient thermo-optique *dn/dT*. Lors de l'étude de ce paramètre à basse température (Cf. Chapitre 3), nous verrons que pour certains matériaux, ce coefficient est négatif.

Traduisons maintenant la dépendance de ces paramètres en fonction de la température sur les facteurs de mérite évoqués au paragraphe I.1.2.1. Nous avons vu que la baisse de la température du milieu amplificateur entraîne une augmentation de la conductivité thermique et une diminution du coefficient de dilatation. Ces deux effets ont pour conséquence une augmentation significative des deux facteurs de mérite R'_T et R_p, traduisant ainsi que le matériau est moins sensible aux chocs thermiques, c'est-à-dire aux gradients de température imposés par le pompage mais aussi que le milieu amplificateur est plus résistant à la puissance de pompage. Concernant le facteur de mérite R_f, ce dernier est inversement proportionnel au coefficient dn/dT. Une diminution de la température entraîne donc une augmentation de R_f non seulement en raison de l'augmentation de la conductivité thermique, mais également en raison de la chute de la valeur absolue du coefficient dn/dT.

Ces comportements confirment l'intérêt de refroidir un matériau laser à basse température pour des applications lasers de forte puissance moyenne.

I.3 Conclusion

Cette première partie s'est voulue être une partie introductive à l'utilisation de matériaux lasers dopés ytterbium à basse température.

Nous avons présenté les avantages et les inconvénients de l'ion ytterbium. Compte tenu de la grande durée de vie de l'état excité, de l'absence de phénomène de transfert d'énergie non radiatif, et du faible défaut quantique, l'ion ytterbium apparaît comme un ion actif parfaitement adapté à des applications lasers de haute puissance moyenne.

A ce jour, une centaine de matrices cristallines dopées à l'ion ytterbium est connue. Dès lors, se pose le problème de l'évaluation des matrices hôtes à cet ion actif. Nous avons repris les trois facteurs de mérite les plus répandus et nous nous sommes rendus à l'évidence que les sesquioxydes de scandium, de lutétium, et d'yttrium sont de bons candidats pour des applications lasers de forte puissance. Nous ne devons pas négliger la présence du fluorure de calcium qui se révèle être également un candidat potentiel pour ce type d'application.

Il a également été montré l'intérêt de travailler en configuration de disque mince, solution optimale pour la réalisation de systèmes lasers délivrant des impulsions fortement énergétiques. En raison de leur meilleure qualité optique et de la possibilité de les fabriquer dans des dimensions centimétriques, ces matériaux sont étudiés sous forme de céramique.

Par ailleurs, les propriétés thermomécaniques (conductivité thermique, dilatation, résistance à la fracture), thermo-optiques (variation de l'indice de réfraction du matériau avec la température) sont autant de paramètres à prendre en compte dans une évaluation exhaustive des potentialités des lasers de puissance. Mise à part pour le YAG et le sesquioxyde d'yttrium, ces paramètres sont très peu connus dans la littérature, et notamment à basse température.

Chapitre II

Comparaison expérimentale de matrices dopées ytterbium

Nous avons vu dans le chapitre I que les sesquioxydes de terres rares possèdent des propriétés thermomécaniques favorables à la réalisation de lasers de haute puissance moyenne. Il a été démontré que ces matériaux dopés à l'ytterbium permettent de réaliser des amplificateurs possédant des rendements de stockage et d'extraction d'énergie élevés, comparables à ceux du Yb : YAG [Casagrande 06].

L'objectif de cette deuxième partie est de présenter une comparaison expérimentale de ces nouveaux matériaux lasers.

Nous présenterons tout d'abord le dispositif expérimental que nous avons mis en œuvre afin d'évaluer les performances lasers des sesquioxydes de terres rares d'yttrium Y_2O_3, de lutétium Lu_2O_3 et de scandium Sc_2O_3 dopées à l'ion ytterbium. Dans ce but, nous avons réalisé un oscillateur en régime relaxé. L'avantage d'un tel dispositif expérimental réside en premier lieu dans sa simplicité de mise en œuvre. Ce montage, identique à celui développé par Casagrande [Casagrande 06], n'a pas pour vocation de développer un laser de puissance, mais c'est un montage de référence servant à montrer tout l'intérêt de travailler à basse température. De plus, ce dispositif expérimental nous a également permis d'extrapoler les expériences aux mesures de diffusivité thermique et des effets thermiques (mesures de surface d'onde et de focale thermique [Marmois 10], [Marmois 11]).

Nous exposerons dans un second temps une caractérisation complète de la source de pompage utilisée, à savoir un empilement de barrettes de diodes lasers puis, nous détaillerons l'architecture de pompage dans son ensemble. Dans un troisième temps, nous étudierons la cavité laser que nous avons mise en œuvre pour évaluer ces matrices lasers. Enfin, les performances lasers obtenues à basse température seront présentées et analysées.

II.1 Description du dispositif expérimental

II.1.1. Les échantillons : les systèmes de pompage et de refroidissement

Les échantillons sont utilisés en configuration de disques minces. Ce sont des céramiques transparentes de 20 mm de diamètre (pour les échantillons Yb : Y_2O_3), ou de 18 mm de diamètre (pour les échantillons Yb :Sc_2O_3 et Yb :Lu_2O_3) et d'épaisseur comprise entre 1 et 3 mm, toutes dopées à 10 at. % ytterbium. Ces échantillons nous ont été fournis par Konoshima Chemical Company, Japon [Konoshima]. La configuration de nos échantillons est considérée comme analogue à la configuration « thin disk » (Cf. § I.1.2.3.)

Concernant le pompage de ces matériaux lasers, deux aspects sont à prendre en considération. Comparé au pompage transverse, le pompage longitudinal apparaît comme être le plus avantageux puisqu'il permet un recouvrement spatial optimal entre le mode de pompe et la zone d'amplification. Le pompage longitudinal engendre des variations de l'intensité de pompe due à l'absorption uniquement dans la direction parallèle à la propagation de l'onde laser. Ainsi, les gradients thermiques générés au sein du matériau laser sont longitudinaux. La configuration « disque mince » permet les différentes architectures de pompage suivantes : en aller simple (*a*), en aller-retour (*b*) et en mode contra-propagatif (*c*) :

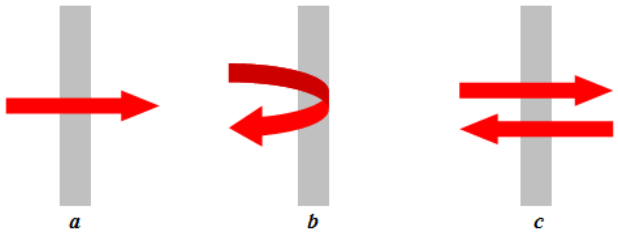


Figure II - 1 : Trois architectures de pompage longitudinal : simple passage (*a*), aller-retour (*b*) et contra-propagatif (*c*).

Pour chaque architecture de pompage, Casagrande a étudié l'évolution de la longueur optimale du matériau laser ainsi que l'évolution du gain à petit signal en fonction de la durée de pompage. Il a ainsi montré que l'architecture en aller-retour permet d'obtenir des longueurs optimales plus faibles, permettant ainsi une meilleure évacuation de la charge thermique et une limitation des effets thermiques, ce caractère étant primordial pour les applications aux lasers de forte puissance. De plus, cette solution permet d'obtenir de meilleurs gains. Il en est de même pour l'évolution du rendement de stockage d'énergie : les rendements atteints avec une architecture en aller-retour sont nettement supérieurs à ceux des deux autres architectures [Casagrande 06].

Concernant désormais le système de refroidissement des matériaux lasers, trois cas peuvent être envisagés :

- le disque laser est refroidi seulement sur une de ses faces (cas *a*),
- le disque laser est refroidi sur ses deux faces (cas *b*),

- le disque laser est refroidi sur ses faces latérales (cas *c*).

La figure II-2 représente les trois cas envisageables pour le refroidissement du matériau laser, dans le cas d'un pompage en aller-retour.

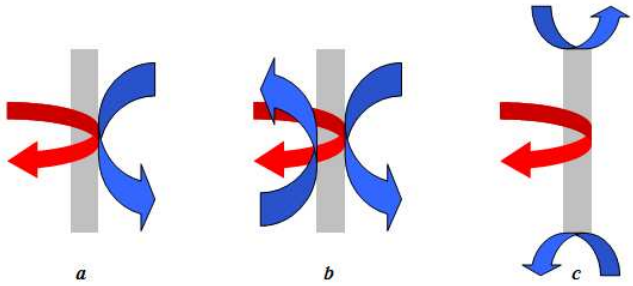


Figure II - 2 : Trois possibilités de refroidissement du matériau laser : refroidissement sur une face (*a*), sur deux faces (*b*) ou sur les faces latérales (*c*).

La configuration *c* est de loin le système de refroidissement du matériau laser le moins efficace puisqu'il est limité à la faible dimension des faces latérales du disque laser. A priori, c'est le moins bon refroidissement qu'il puisse être envisagé. Un modèle basé sur ce type de refroidissement a été développé par Bourdet *et al.* [Bourdet 10]. D'après les résultats obtenus lors des mesures de surface d'onde sur nos échantillons, Marmois *et al.* ont montré que ce modèle est concordant avec nos résultats [Marmois 11].

Afin d'obtenir un refroidissement le plus homogène possible, la configuration représentée en *b* semble être la plus appropriée. Cependant, lors du pompage du matériau laser, le liquide de refroidissement, risque d'introduire des aberrations non négligeables telles que l'absorbation du faisceau de pompe ou du faisceau laser lors d'un refroidissement à l'eau.

Le cas représenté en *a* est alors un bon compromis. Ce mode de refroidissement présente également l'avantage de ne créer des gradients de température que dans la direction longitudinale par rapport à la propagation de l'onde à amplifier [Giesen 94].

II.1.2. Le montage expérimental

Le disque laser est placé sur un support en cuivre relié au doigt froid du cryostat : le refroidissement est semblable au modèle représenté en figure II-2 *a*. Une feuille d'indium, d'épaisseur 125 µm, a été placée entre le support et l'échantillon afin d'assurer le meilleur contact thermique possible. Le dispositif cryogénique ainsi que les sondes de température utilisées sont décrits en annexe C.

La face avant est traitée antireflet pour des longueurs d'onde comprises entre 900 nm et 1100 nm. La face arrière est, quant à elle, hautement réfléchissante pour la même gamme de longueurs d'onde (le faisceau pompe émettant autour de 940 nm, et le faisceau laser ayant une longueur d'onde comprise entre 1030 et 1080 nm).

D'autres mesures de performances lasers ont été menées sur des échantillons placés sur un support en laiton percé d'un trou de 16 mm de diamètre. Ces mesures ont été réalisées pour

caractériser la focale thermique de nos matériaux [Marmois 10]. Les résultats sont détaillés en annexe D.

La cavité laser est constituée de la face arrière hautement réfléchissante de l'échantillon et d'un coupleur ayant une réflectivité de 95, 80 ou 70 %. L'angle entre le faisceau de pompe et la cavité est de 30°. Le dispositif expérimental est représenté sur la figure II-3 :

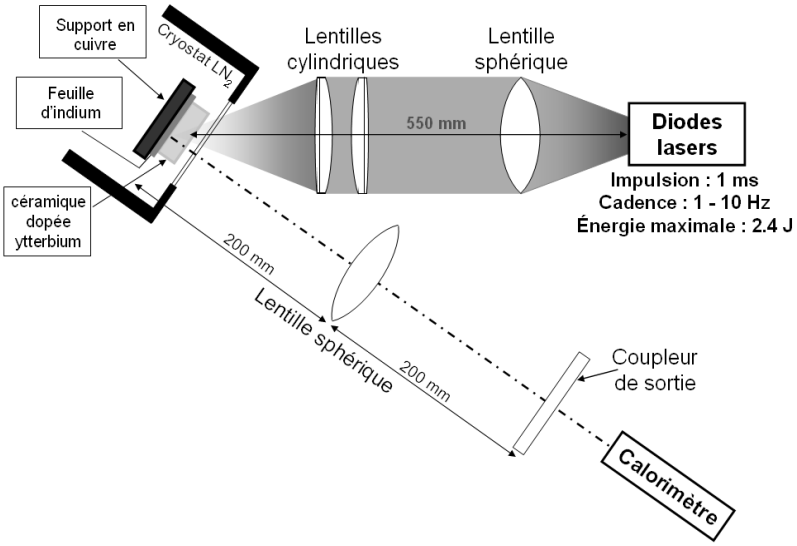


Figure II - 3 : Schéma du dispositif expérimental.

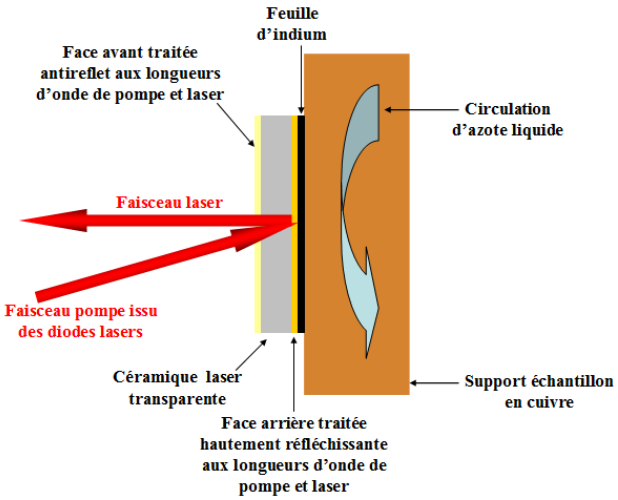


Figure II - 4 : Zoom sur l'échantillon : systèmes de pompage et de refroidissement du disque laser.

II.1.2.1. Le système de pompage

a. Les diodes lasers

La céramique laser, placée dans le cryostat, est pompée par un empilement de barrettes de diodes lasers, Jenoptik Laserdiode [Jenoptik]. Cet empilement est composé de 25 barrettes en série, chacune des barrettes étant constituée de 75 monoémetteurs à InGaAs en parallèle dont la longueur d'onde d'émission se situe autour de 940 nm. Chacune des barrettes est munie

d'une micro lentille cylindrique afin de réduire la divergence du faisceau suivant l'axe rapide (perpendiculaire à la jonction semi-conductrice) de 80° à environ 1° (largeur totale à mi hauteur). La divergence dans l'axe lent (parallèle à la jonction semi-conductrice) est de 16°.

Les diodes lasers sont alimentées par une source de courant d'intensité variant entre 0 et 100 A. La durée des impulsions électriques, de profil temporel carré, peut être réglée entre 0 et 1 ms et leur cadence peut varier de 1 à 10 Hz.

Les diodes lasers sont refroidies à l'aide d'une circulation d'eau dé-ionisée délivrée par un système de refroidissement, Neslab ThermoFlex 2500, Thermo Scientific (la température de l'eau peut être régulée entre 10°C et 40°C) [ThermoScientific].

L'intensité délivrée par la source de courant et la température du système de refroidissement jouent un rôle à la fois sur l'énergie et sur la longueur d'onde émise par les diodes lasers. Nous avons mesuré l'énergie à la sortie des diodes à l'aide d'un joulemètre pour différentes températures de l'eau de refroidissement et pour différentes intensités du courant d'alimentation. Nous avons également mesuré la longueur d'onde émise par les diodes en fonction de ces deux paramètres à l'aide d'une fibre, reliée à un spectrophotomètre, modèle HR 4000, Ocean Optics [OceanOptics]. Les valeurs mesurées sont données pour une précision de ± 1 %.

Enfin, les diodes lasers sont polarisées parallèlement au plan de la jonction.

Sur la figure II-5, nous avons représenté l'énergie émise par l'empilement des diodes lasers, pour une durée d'impulsion de 1 ms et une cadence de 1 Hz, en fonction de l'intensité I_{DL} délivrée par le courant d'alimentation et la température du système de refroidissement.

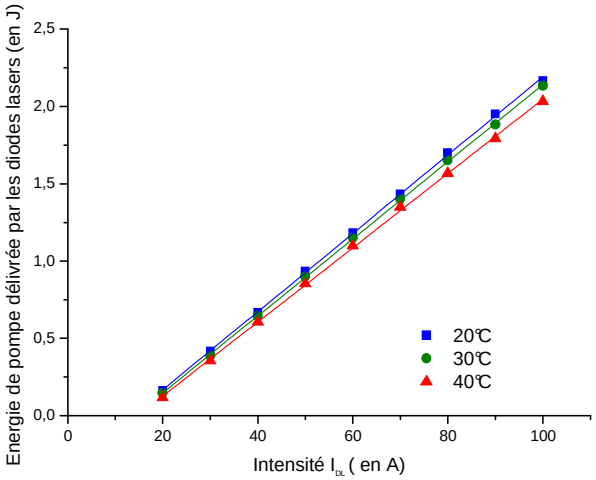
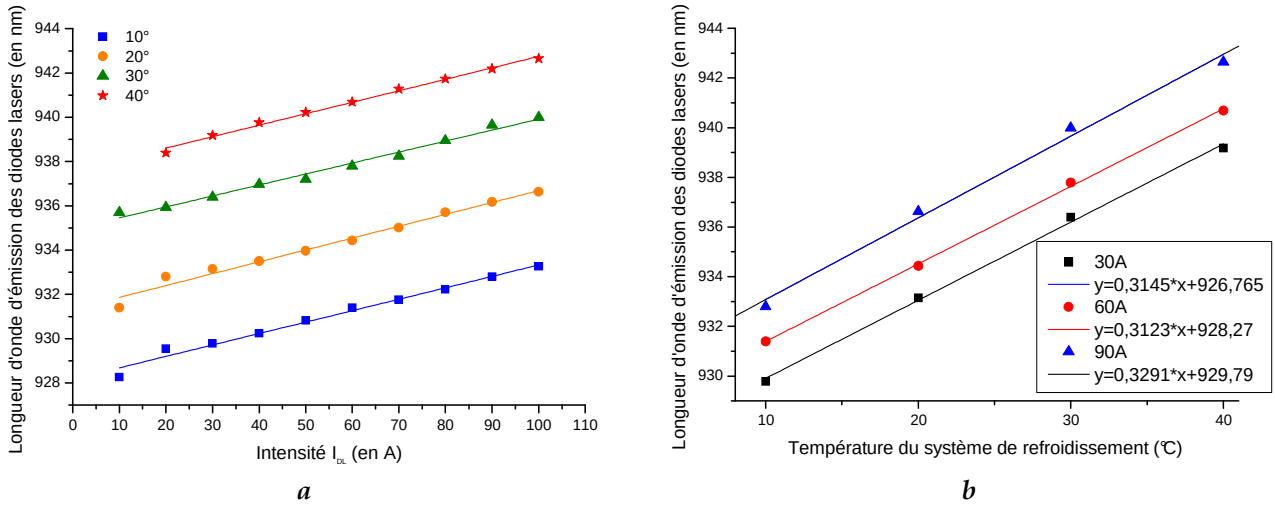


Figure II - 5 : Energie émise par l'empilement des diodes lasers, pour une durée d'impulsion de 1 ms et une cadence de 1 Hz, en fonction de l'intensité du courant d'alimentation et pour différentes températures du système de refroidissement.

Nous pouvons remarquer que plus la température du système de refroidissement est basse et plus l'énergie émise par l'empilement des diodes lasers est élevée. Ainsi, nous disposons d'une source de pompage capable de délivrer des impulsions d'environ 2,2 J à 1 Hz et

d'environ 2,4 J à 10 Hz pour une durée d'impulsion de 1 ms et une intensité du courant d'alimentation I_{DL} de 100 A.

La température de l'empilement des diodes lasers a également une influence sur son spectre d'émission. Afin de quantifier ce phénomène, nous avons mesuré la longueur d'onde émise par l'empilement des diodes lasers, pour une durée d'impulsion de 1 ms et une cadence de 1 Hz, en fonction de l'intensité I_{DL} délivrée par le courant d'alimentation (Figure II-6 *a*) et de la température du système de refroidissement (Figure II-6 *b*).



a *b*

Figure II - 6 : Longueur d'onde émise par l'empilement des diodes lasers, pour une durée d'impulsion de 1 ms et une cadence de 1 Hz, en fonction de l'intensité du courant d'alimentation (*a*) et pour différentes températures du système de refroidissement (*b*).

Nous pouvons remarquer que la longueur d'onde d'émission des diodes lasers augmente avec l'intensité du courant d'alimentation suivant un coefficient de 0,05 nm/A.

Le spectre émis par l'empilement des diodes dépend également de la température du système de refroidissement : la longueur d'onde d'émission augmente avec la température suivant un coefficient d'environ 0,3 nm/°C.

Nous avons également mesuré la largeur spectrale de l'émission de l'empilement des diodes lasers pour des courants de 30, 60 et 90 A, et des températures du fluide de refroidissement des diodes variant de 10°C à 40°C. Nous avons obtenu des largeurs à mi-hauteur constantes de l'ordre de 3 nm : les valeurs du courant d'alimentation et de la température du système de refroidissement n'a pas d'influence significative sur la largeur spectrale de l'émission des diodes.

L'idée est alors de fixer la température du système de refroidissement des diodes lasers afin que toute l'énergie émise par les diodes soit dans la bande d'absorption des matériaux.

b. L'architecture de pompage

Nous avons vu au paragraphe précédent que les diodes lasers peuvent délivrer des impulsions de l'ordre de 2,4 J en 1 ms, à 10 Hz ce qui correspond à une puissance crête de 2,4 kW pour un courant I_{DL} de 100 A. L'aire de la surface émettrice étant de 4 cm²,

l'éclairement moyen correspondant est seulement de 500 W.cm^{-2}. Or, les matériaux dopés ytterbium requièrent des intensités de pompe de quelques dizaines de kilowatts par centimètre carré permettant ainsi d'atteindre le seuil de fonctionnement des systèmes lasers quasi-3 niveaux. Nous pouvons par exemple citer l'exemple de cristaux Nd : YAG et Yb : YAG [Krupke 00] : alors que l'intensité minimum de pompe est voisine de zéro pour Nd : YAG, elle est de 2,8 kW/cm^2 pour Yb : YAG. Une mise en forme du faisceau émis par les diodes lasers est donc nécessaire pour atteindre ces énergies de pompe.

Le faisceau issu des diodes est mis en forme par une lentille sphérique de longueur focale 400 mm et par deux lentilles cylindriques de longueurs focales respectives 100 mm et 90 mm. L'encombrement du système de pompage est de 550 mm.

Le faisceau pompe est focalisé sur l'échantillon par ce système de lentilles (Figure II-3). La tache focale est de forme elliptique ; son diamètre à $1/e^2$ est de 2,5 mm dans le plan horizontal et de 1,3 mm dans le plan vertical. L'énergie maximale arrivant sur l'échantillon pour un courant d'alimentation I_{DL} = 100 A, des impulsions de 1 ms, à une cadence de 1 Hz est de 1,55 J pour des températures du système de refroidissement de 20°C à 40°C. Ceci correspond à une intensité maximale de pompe de 121,5 kW/cm^2. Compte tenu d'une transmission de 98 % du hublot du cryostat à une longueur de pompe de 943 nm, nous avons en réalité une énergie maximale de 1,53 J, correspondant à une intensité maximale de 119,7 kW/cm^2.

Nous avons également mesuré la caustique (Figure II-7) du faisceau issu du système de pompage pour un courant d'alimentation I_{DL} de 30 A, à une cadence de 10 Hz, des impulsions de 1 ms et une température du système de refroidissement de 20°C. Ces mesures ont permis de déduire les valeurs de la taille du faisceau de 1 mm dans le plan horizontal et de 0,6 mm dans le plan vertical. Les longueurs de Rayleigh ont quant à elles été estimées à 7 mm dans le plan horizontal et 18 mm dans le plan vertical. Nous avons considéré que ces mesures restent valables pour des courants d'alimentation des diodes plus élevés.

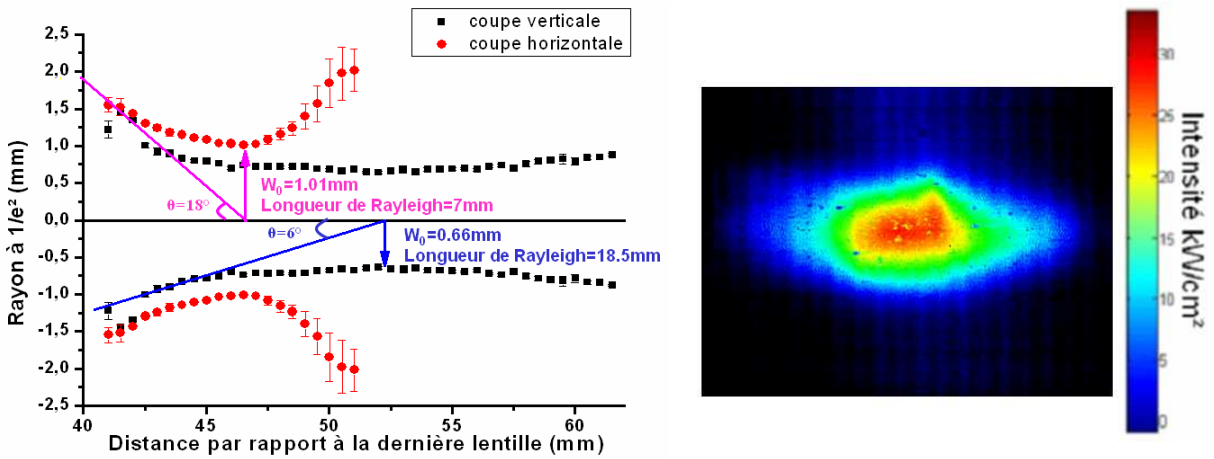


Figure II - 7 : Caustique du faisceau de pompe et représentation en 2 dimensions de la tache focale au meilleur foyer pour une cadence de 10 Hz, une durée d'impulsion de 1 ms, un courant d'alimentation de 30 A et une température du système de refroidissement de 20°C.

II.1.2.2. L'oscillateur

L'oscillateur fonctionne en mode relaxé. Rappelons que le matériau dopé ytterbium se présente sous la forme d'un disque mince traité antireflet sur sa face avant, un traitement de haute réflectivité est déposé sur sa face arrière. Il est pompé par le système décrit au paragraphe précédent avec un angle d'incidence de 30°. La cavité laser, d'une longueur $l = 400\ mm$, est constituée d'une part par la face réfléchissante du matériau laser et d'autre part par un coupleur plan de réflectivité R de 95, 80 ou 70 %. Cette cavité plan – plan est stabilisée par une lentille sphérique d'une longueur focale f de 10 m insérée en son milieu.

Deux types de diagnostics ont été mis en place afin de caractériser l'émission du laser. Nous avons dans un premier temps utilisé un joulemètre Coherent pour mesurer l'énergie émise par le laser et dans un second temps, nous avons mesuré la longueur d'onde de ce faisceau à l'aide d'une fibre reliée à un spectrophotomètre, modèle HR 4000, Ocean Optics.

Nous nous sommes appuyés sur l'étude de Casagrande pour mettre en place la meilleure configuration d'oscillateur relaxé (choix portant sur la réflectivité du coupleur de sortie, de l'épaisseur du milieu amplificateur, et du spectre d'émission du faisceau de pompe) permettant ainsi d'obtenir les meilleures performances lasers [Casagrande 06]. Pour chaque matériau étudié, nous avons réalisé trois diagnostics différents correspondants à la mesure du spectre de fluorescence, à la mesure de l'énergie en sortie de cavité en fonction de l'énergie de pompe incidente et enfin à la mesure de la longueur d'onde du faisceau cavité.

II.2 Résultats expérimentaux pour Yb : Y_2O_3

Cette partie présente les résultats obtenus avec une céramique, d'épaisseur 2 mm, Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. % (N_{tot} = 2,7x10^{21} cm^{-3}). Le schéma expérimental est celui décrit précédemment (Figure II-3). Les diodes lasers ont une cadence de 1 Hz avec des impulsions de 1 ms et sont refroidies à une température de 40°C. La longueur d'onde du faisceau de pompe est comprise entre 937 et 943 nm (Figure II-6). Nous avons utilisé un coupleur de sortie de réflectivité 70 %, pour des températures du porte échantillon comprises entre 77 K et 230 K, et un coupleur de sortie de réflectivité 95 % lorsque l'échantillon est à température ambiante.

Nous avons mesuré le spectre de fluorescence de la céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. % pour différentes températures du porte échantillon. Ce spectre a été obtenu en plaçant une fibre, reliée à un spectrophotomètre, devant le hublot d'entrée du cryostat (hublot par lequel passent les faisceaux de pompe et laser). En l'absence d'émission laser, cette fibre est placée dans l'axe de la cavité : elle mesure donc les phénomènes d'émission stimulée et de réabsorption. Afin de s'affranchir des effets d'émission stimulée, non désirables pour cette mesure, il aurait été préférable de placer la fibre perpendiculairement au faisceau de pompe. Les courbes que nous présentons ne sont donc que des informations qualitatives des

phénomènes d'émission de nos matériaux. Nous invitons le lecteur à se rendre en annexe B pour l'étude spectroscopique de ces derniers.

Afin d'analyser au mieux le spectre de fluorescence, nous avons fortement pompé notre disque laser, créant ainsi une saturation des pics obtenus aux longueurs d'onde de 940 nm (longueur d'onde de pompe des diodes lasers) et de 980 nm, correspondant à la *zéro-line*.

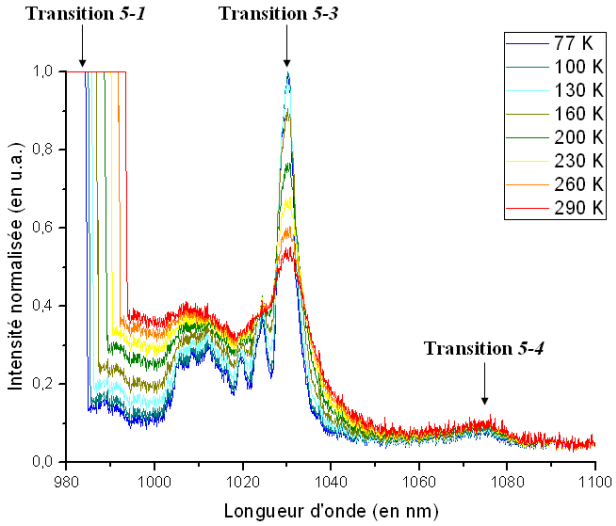


Figure II - 8 : Spectre de fluorescence de la céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. % en fonction de la température du support échantillon.

Les raies correspondant aux transitions lasers 5-3 et 5-4 sont situées respectivement autour de 1030 nm et 1076 nm. D'une manière générale, nous pouvons remarquer que lorsque la température de la céramique diminue, la largeur totale à mi-hauteur du pic d'émission diminue. Ce phénomène est principalement dû à l'augmentation significative des valeurs des sections efficaces d'absorption et d'émission lorsque la température du matériau baisse. De plus, cette chute de température entraîne également une augmentation de l'intensité du signal émis provoqué par une diminution des densités de population des sous-niveaux Stark du niveau fondamental : la réabsorption est alors moins importante à basse température.

Nous allons maintenant présenter les résultats obtenus avec l'oscillateur relaxé Yb : Y_2O_3 en fonction de la température. Rappelons que l'épaisseur de la céramique est de 2 mm.

Concernant les incertitudes de mesures, l'erreur relative a été évaluée à ± 15 %. L'incertitude sur la mesure de la température est donnée par le fournisseur de la sonde à ± 3 K. Afin de conserver toute la clarté de nos graphes, les barres d'erreur ne sont volontairement pas mises.

Pour chaque température, nous avons mesuré l'énergie extraite de la cavité en fonction de l'énergie de pompe incidente. Les résultats sont présentés sur la figure II-9 :

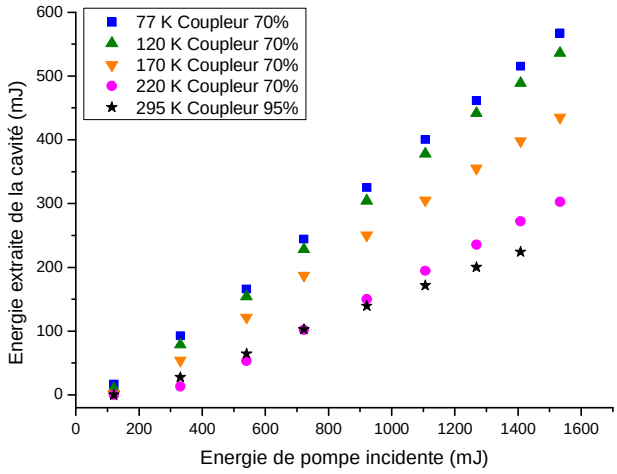


Figure II - 9 : Energie en sortie d'oscillateur Yb :Y_2O_3 d'épaisseur 2 mm en fonction de l'énergie de pompe incidente pour différentes températures du porte échantillon comprises entre 77 K et 293 K.

De cette figure, nous avons déterminé la pente d'efficacité laser et le seuil du fonctionnement laser de chaque courbe. Les résultats sont résumés dans le tableau II-1 :

Température	*Coupleur de sortie*	*Pente*	*Energie seuil*
77 K	70 %	39,3 %	95,5 mJ
120 K	70 %	37,8 %	114,2 mJ
170 K	70 %	31,2 %	133,6 mJ
220 K	70 %	22,7 %	235,6 mJ
293 K	95 %	17,9 %	118,2 mJ

Tableau II - 1 : Tableau récapitulatif des pentes d'efficacité et des énergies seuil de l'oscillateur Yb : Y_2O_3 obtenues à partir des courbes précédentes.

De la figure II-9 et du tableau II-1, nous pouvons en déduire deux phénomènes majeurs. Nous constatons que la pente d'efficacité laser augmente lorsque la température du porte échantillon diminue. La pente est améliorée d'environ un facteur deux lorsque la température passe de la température ambiante à la température de l'azote liquide. De plus, nous pouvons constater que la valeur du seuil de fonctionnement laser diminue lorsque la température diminue. En effet, lorsque la température passe de 220 K à 77 K, la valeur du seuil varie de 235,6 mJ à 95,5 mJ. Ces phénomènes s'expliquent par deux effets. D'une part, lorsque la température diminue, les sections efficaces d'émission et d'absorption augmentent (Cf. Annexe B). D'autre part, à basse température, la population des niveaux lasers 2, 3 et 4 (Figure I-1) est fortement réduite, le phénomène de réabsorption est fortement réduit, par conséquent, l'inversion de population croît.

Nous pouvons également remarquer que lorsque le milieu amplificateur est à température ambiante, l'emploi d'un coupleur de sortie de 70 % ne permet pas de franchir le seuil d'oscillation. Ainsi, l'utilisation d'un coupleur de sortie de 95 % a été nécessaire : dans ce cas précis, et par rapport à des températures inférieures à la température ambiante, nous

obtenons une pente d'efficacité laser plus faible, mais également un seuil de démarrage des oscillations lasers plus faible. L'utilisation d'un coupleur de sortie avec une réflectivité plus importante entraîne donc une diminution du seuil de fonctionnement laser.

Les pertes totales pour un aller-retour dans la cavité peuvent se décomposer en deux termes : l'un représentant les pertes de couplage, c'est-à dire les pertes de transmission de l'onde laser par le coupleur de sortie, et l'autre, γ, représentant les pertes internes de la cavité (diffusion, diffraction, absorption, ...). Pour un coupleur de sortie ayant une réflectivité R, les pertes totales Γ du système sont exprimées par :

$$\Gamma = \gamma - \ln(R) \qquad \text{Équation II-1}$$

Notons à présent, le gain au seuil, g_{seuil}, gain linéique minimal dans le matériau pour que les oscillations lasers puissent démarrer dans la cavité.

$$g_{seuil} = \frac{\gamma - \ln(R)}{2l} \qquad \text{Équation II-2}$$

où l représente l'épaisseur du milieu amplificateur.

Afin d'estimer le gain au seuil, considérons que les pertes internes du système sont nulles et que l'épaisseur de l'échantillon est de 2 mm. Pour des coupleurs ayant une réflectivité de 95 et 70 %, le gain seuil est respectivement égal à 12,8 et 89,2 m^{-1}.

Cette condition d'oscillation se traduit également par l'existence d'un taux d'excitation β_{seuil}, permettant d'atteindre le seuil g_{seuil} :

$$\beta_{seuil} = \frac{1}{\sigma_{em_L} + \sigma_{abs_L}} \left(\frac{\gamma - \ln(R)}{2lN_{Yb}} + \sigma_{abs_L} \right) \qquad \text{Équation II-3}$$

σ_{abs_L} et σ_{em_L} sont respectivement les sections efficaces d'absorption et d'émission du milieu amplificateur à la longueur d'onde laser. N_{Yb} représente la concentration en ion ytterbium dans la matrice hôte.

A perte interne identique, lorsque la réflectivité du coupleur de sortie augmente, les pertes totales pour un aller-retour dans la cavité diminuent, ce qui a pour conséquence, une diminution du gain linéique seuil et du taux d'excitation β_{seuil}. Le temps de création des oscillations laser diminue.

Casagrande a représenté la courbe de l'évolution du rendement de l'oscillateur en fonction de la réflectivité du miroir de sortie. Cette courbe passe par un maximum obtenu pour une valeur optimale de la réflectivité du miroir de sortie de cavité, notée R_{opt}. Pour des valeurs de R plus faibles que R_{opt}, les pertes totales intra cavité sont importantes et limitent l'intensité laser intra cavité. Lorsque $R > R_{opt}$, les pertes sont faibles et l'intensité circulant à l'intérieur de la cavité est importante. Cependant, seule une faible proportion de l'intensité laser moyenne intra cavité est transmise vers l'extérieur : en effet, l'intensité laser sortant de la cavité est proportionnelle à un facteur $(1-R)/(1+R)$ de l'intensité laser moyenne circulant à l'intérieur de la cavité. Ce facteur décroît lorsque R augmente. Il existe donc un compromis

entre la valeur de l'intensité laser intra cavité favorisée par des réflectivités importantes et la proportion de cette intensité effectivement émise par l'oscillateur qui est proportionnelle à *(1-R)/(1+R)*. Ce compromis explique l'existence d'une valeur optimale de la réflectivité du miroir de sortie de la cavité.

Nous pouvons également signaler qu'au même titre que les pertes de couplage, plus les pertes intra-cavité augmentent, plus le temps de création des oscillations lasers augmente et le rendement diminue.

Nous avons également mesuré la longueur d'onde d'émission de l'oscillateur Yb :Y_2O_3 pour différentes températures du porte échantillon (Figure II-10).

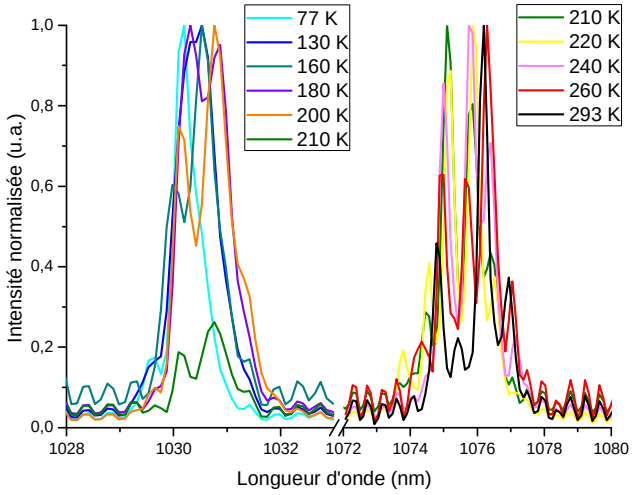


Figure II - 10 : Spectre émis par l'oscillateur laser Yb:Y_2O_3 en fonction de la température du porte échantillon.

Afin d'interpréter le spectre ci-dessus, nous avons représenté sur la figure suivante les résultats de calculs de sections efficaces d'émission de la céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. % à 76 K (Cf. Annexe B). Sur ce graphe, chaque transition laser a été attribuée aux niveaux Stark correspondants :

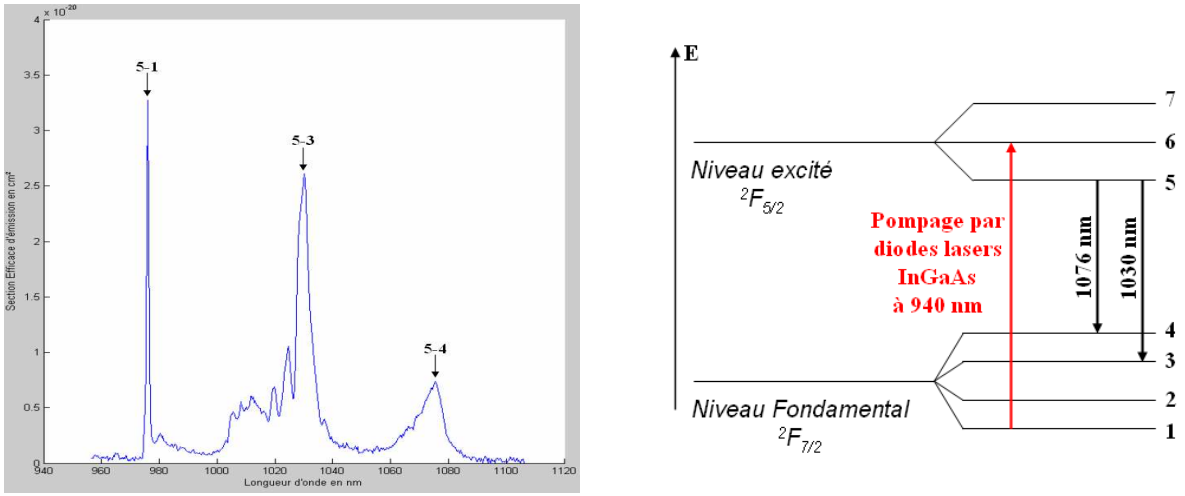


Figure II - 11 : Section efficace d'émission d'une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. % à 76 K et diagramme énergétique de l'ion Yb^{3+}.

A température ambiante, l'oscillateur Yb:Y_2O_3 a une longueur d'onde d'émission de 1076 nm, ce qui correspond à la transition 5-4. A basse température, l'émission laser se situe autour de 1030 nm, ce qui correspond à la transition 5-3. Nous pouvons donc remarquer que l'émission laser se décale vers les courtes longueurs d'onde lorsque la température diminue.

Pour les températures les plus élevées, le gain est plus important autour de 1076 nm (transition 5-4) qu'à 1030 nm (transition 5-3). Même si la section efficace d'émission est plus importante pour la transition 5-3 que pour la transition 5-4, la réabsorption est quant à elle moins importante pour la transition 5-4 que pour la transition 5-3.

Lorsque la température diminue, la densité de population des sous niveaux Stark d'énergie élevée chute et le phénomène de réabsorption est réduit.

Nous avons également pu remarquer qu'il existe une température pour laquelle le système émet à deux longueurs d'onde. En effet, si nous agrandissons la figure II-10 pour des températures de 200 et 210 K, nous obtenons la figure II-12 :

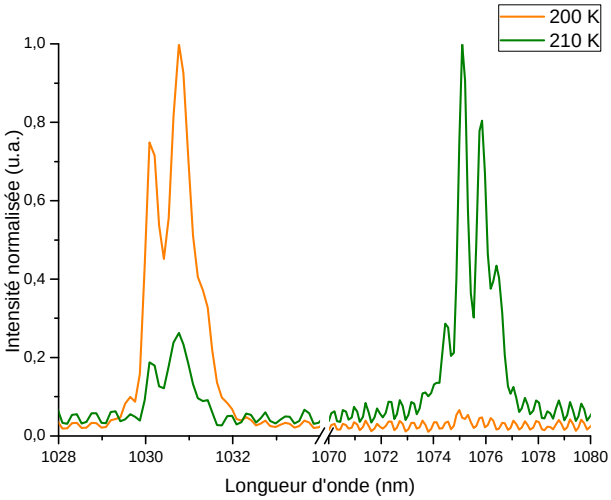


Figure II - 12 : Spectre émis par l'oscillateur laser Yb:Y_2O_3 à 200 K et 210 K.

Pour une température de 210 K, le laser émet à la fois autour de 1076 nm et de 1030 nm. Nous pouvons en déduire que pour cette température, le gain est quasiment identique pour ces deux longueurs d'onde. Les oscillations démarrent autour de 1030 nm, puis lorsque le gain à 1076 nm atteint le niveau des pertes de la cavité, les oscillations lasers passent de 1030 nm à 1076 nm.

Finalement, deux types de fonctionnement peuvent être distingués. Pour des températures inférieures à 210 K, la réabsorption est très faible et le laser émet à la longueur d'onde où la section efficace d'émission est la plus importante. Le matériau laser se rapproche d'un comportement de type quatre niveaux. A contrario, pour des températures supérieures à 210 K, le phénomène de réabsorption est prépondérant et fixe la longueur d'onde d'émission de l'oscillateur. Ce comportement est caractéristique des systèmes lasers quasi-trois niveaux qui dépendent de la température du matériau.

Afin de mieux appréhender ce phénomène, exprimons l'expression du gain laser pour les deux transitions 5-3 et 5-4 :

$$g_{53} = \sigma_{em_53} N_5 - \sigma_{abs_53} N_3 \text{ et } g_{54} = \sigma_{em_54} N_5 - \sigma_{abs_54} N_4 \quad \text{Équation II-4}$$

$$g_{53} = g_{54} \quad \text{Équation II-5}$$

correspondant à :

$$\sigma_{em_53} N_5 - \sigma_{abs_53} N_3 = \sigma_{em_54} N_5 - \sigma_{abs_54} N_4 \quad \text{Équation II-6}$$

$$N_5 = \frac{\sigma_{abs_53} N_3 - \sigma_{abs_54} N_4}{\sigma_{em_53} - \sigma_{em_54}} \quad \text{Équation II-7}$$

Nous pouvons tout d'abord noter qu'à température ambiante ou aux basses températures, la section efficace d'émission de la transition 5-3 est toujours plus grande que celle correspondante à la transition 5-4. De la même manière, par le théorème de réciprocité, cette relation est équivalente pour les sections efficaces d'absorption : la section efficace d'absorption de la transition 5-3 est plus grande que celle correspondante à la transition 5-4.

Les termes N_i, représentant les populations des sous niveaux Stark (Cf. Equation I.3), dépendent de la température du matériau. A partir de l'équation II-7, nous comprenons qu'il existe une température spécifique pour laquelle les gains lasers correspondant aux transitions 5-3 et 5-4 sont égaux.

II.3 Résultats expérimentaux pour Yb : Lu_2O_3

Cette partie présente les résultats expérimentaux obtenus à différentes températures sur une céramique de sesquioxyde de lutétium dopée 10 at. % ytterbium (N_{tot} = 2,2x10^{21} cm^{-3}), d'épaisseur 1,5 mm. Le schéma du dispositif expérimental est identique à celui représenté en figure II-3. Nous nous sommes placés dans la configuration où les diodes lasers ont une cadence de 1 Hz avec des impulsions de 1 ms et sont refroidies pour une température du système de refroidissement de 40°C. Nous avons utilisé deux coupleurs de sortie de réflectivité 70 et 95 %.

La figure II-13 représente le spectre de fluorescence obtenu avec notre disque laser pour différentes températures du support échantillon.

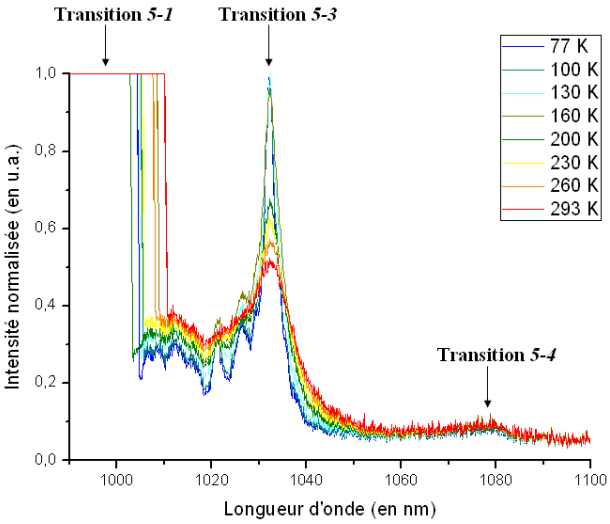


Figure II - 13 : Spectre de fluorescence de la céramique Yb : Lu_2O_3 dopée 10 at. % en fonction de la température du support échantillon.

Les raies correspondantes aux transitions lasers 5-3 et 5-4 sont respectivement situées autour de 1032 nm et 1079 nm. Les deux phénomènes de diminution de la largeur totale à mi-hauteur du pic d'émission et l'augmentation de son intensité lorsque la température du matériau diminue peuvent s'expliquer de la même manière que pour le spectre de fluorescence mesuré pour Yb : Y_2O_3.

Nous allons présenter les résultats obtenus à partir de l'oscillateur relaxé Yb : Lu_2O_3 dopé 10 at. %. Nous avons tracé l'énergie émise par l'oscillateur laser en fonction de l'énergie contenue dans la tache de pompe pour des températures de porte échantillon comprises entre 80 K et 300 K.

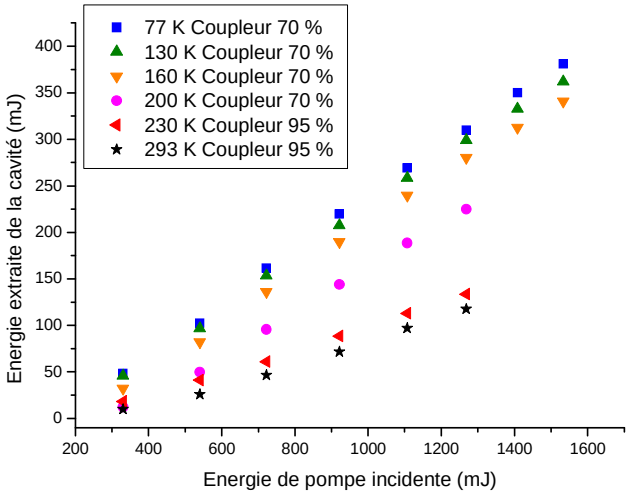


Figure II - 14 : Energie en sortie d'oscillateur Yb:Lu_2O_3 d'épaisseur 1,5 mm en fonction de l'énergie de pompe incidente pour différentes températures du porte échantillon comprises entre 77 K et 293 K.

Le tableau II-2 synthétise les valeurs des pentes d'efficacité et des énergies seuil obtenues à partir des courbes de la figure II-14 :

Température	*Coupleur de sortie*	*Pente*	*Energie seuil*
77K	70 %	27,9 %	153,4 mJ
130K	70 %	26,7 %	155,9 mJ
160K	70 %	26,1 %	205,1 mJ
200K	70 %	23,2 %	300,9 mJ
230K	95%	12,4 %	203,6 mJ
293K	95%	11,8 %	292,3 mJ

Tableau II - 2 : Tableau récapitulatif des pentes d'efficacité et des énergies seuil de l'oscillateur Yb :Lu_2O_3 obtenues à partir des courbes précédentes.

Là encore les performances de l'oscillateur sont améliorées de manière significative lorsque la température de l'échantillon diminue. D'une part, la pente d'efficacité laser est plus importante à basse température et passe de 27,9 % à 77 K à 23,2 % à 200 K. D'autre part, le seuil de démarrage des oscillations lasers dans la cavité est plus faible lorsque la température de l'échantillon diminue. Ce phénomène s'explique avec les mêmes arguments que ceux utilisés pour les résultats obtenus avec le disque Yb : Y_2O_3.

La figure II-15 représente la longueur d'onde émise par l'oscillateur laser en fonction de la température du porte échantillon.

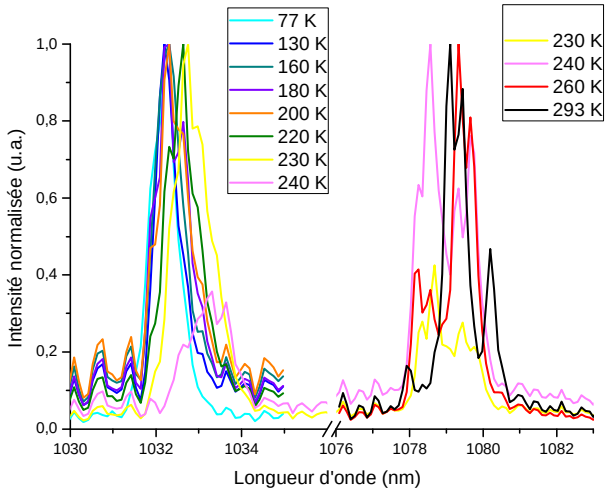


Figure II - 15 : Spectre émis par l'oscillateur laser Yb : Lu_2O_3 en fonction de la température du porte échantillon.

Comme pour l'oscillateur laser Yb : Y_2O_3, nous remarquons un décalage en longueur d'onde qui se produit entre 230 et 240 K. Pour des températures comprises entre 77 K et 230 K, la longueur d'onde d'émission de l'oscillateur est de 1033 nm alors que pour des températures comprises entre 240 K et 293 K, la longueur d'onde d'émission est de 1079 nm. Les explications de ce phénomène sont les mêmes que celles explicitées dans le paragraphe II.2.

De la même manière que pour l'échantillon Yb : Y_2O_3, nous avons pu remarquer qu'il existe deux températures pour lesquelles le système présente deux longueurs d'onde d'émission possibles. Pour des températures du porte échantillon de 230 et 240 K, nous obtenons la figure II-16 :

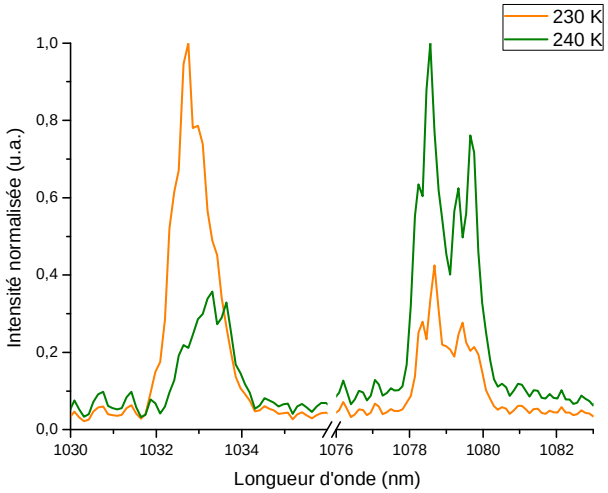


Figure II - 16 : Spectre émis par l'oscillateur Yb:Lu_2O_3 à 230 K et 240 K.

Pour des températures de 230 K et 240 K, le laser émet à la fois autour de 1033 nm et de 1079 nm.

II.4 Résultats expérimentaux pour Yb : Sc_2O_3

De la même manière que pour Yb : Y_2O_3 et Yb : Lu_2O_3, des mesures ont été réalisées sur une céramique de Yb : Sc_2O_3 dopée 10 at. %, d'épaisseur 1 mm (N_{tot} = 3,35x10^{21} cm^{-3}) : les diodes lasers ont une cadence de 1 Hz avec des impulsions de 1 ms et sont refroidies pour une température du système de refroidissement de 40°C, le coupleur de sortie est de 80 %.

Nous avons tout d'abord tracé le spectre de fluorescence de Yb : Sc_2O_3 en fonction de la température du support échantillon.

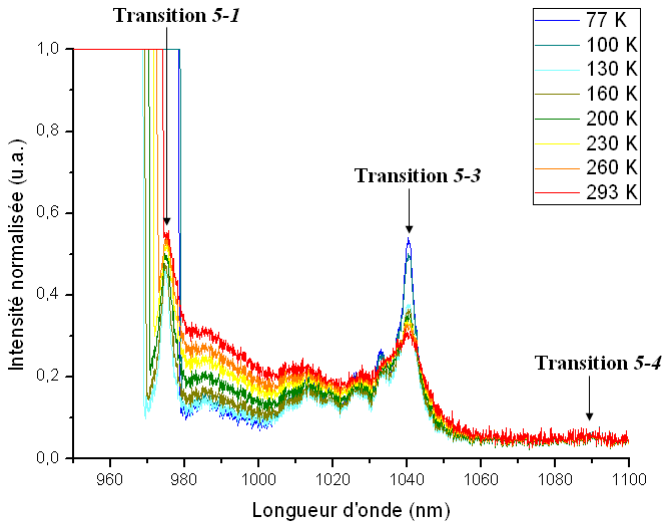


Figure II - 17 : Spectre de fluorescence de la céramique Yb : Sc_2O_3 dopée 10 at. % en fonction de la température du support échantillon.

Le pic situé autour de 940 nm correspondant à la longueur d'onde d'émission des diodes lasers de pompe utilisées pour exciter le matériau laser n'est pas visible. Cependant, contrairement aux spectres de fluorescence de Yb : Y_2O_3 et Yb : Lu_2O_3, nous pouvons voir la raie correspondant à la transition laser 5-1. Celle-ci est située autour de 976 nm. Lorsque la température diminue, le rétrécissement du pic de fluorescence devrait entraîner une augmentation de sa valeur maximale : d'une part l'affinement des raies voisines à la *zéro-line* fait chuter leur contribution à la fluorescence autour de 976 nm et d'autre part, la réabsorption à cette longueur d'onde augmente car la densité de population du sous niveau 1 augmente.

Les raies correspondantes aux transitions lasers 5-3 et 5-4 sont situées autour de 1041 nm et 1090 nm. Lorsque la température diminue, nous pouvons noter à la fois une diminution des largeurs totales à mi-hauteur des pics de fluorescence mais également une augmentation de l'intensité de ces pics. L'explication est identique à celle faite pour les spectres de fluorescence de Yb : Y_2O_3 et Yb : Lu_2O_3 : lorsque la température du matériau baisse, les sections efficaces d'émission et d'absorption augmentent et la densité de population des sous-niveaux Stark diminuent (ayant pour conséquence une diminution du phénomène de réabsorption).

Nous avons tracé l'évolution de l'énergie émise par l'oscillateur laser en fonction de l'énergie de pompe incidente pour différentes températures du support échantillon (Figure II-18).

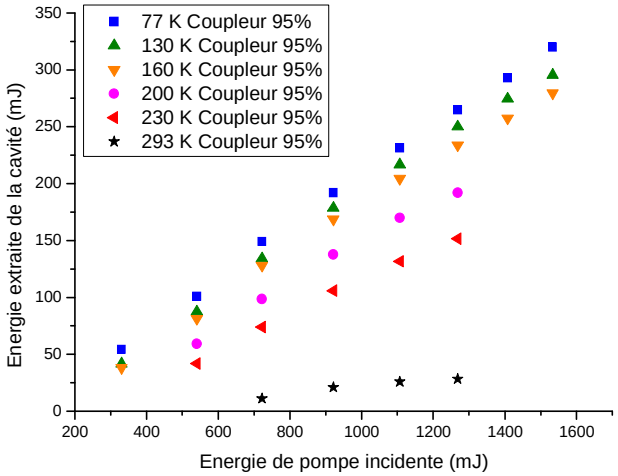


Figure II - 18 : Energie en sortie d'oscillateur Yb : Sc_2O_3 d'épaisseur 1 mm en fonction de l'énergie de pompe incidente pour différentes températures du porte échantillon comprises entre 77 K et 293 K.

Le tableau II-3 synthétise les valeurs des pentes d'efficacité et des énergies seuil obtenues à partir des courbes de la figure II-18 :

Température	*Coupleur de sortie*	*Pente*	*Energie seuil*
77 K	95 %	22,1 %	68,6 mJ
130 K	95 %	21,3 %	111,9 mJ
160 K	95 %	20,1 %	114,7 mJ
200 K	95 %	18,4 %	195,9 mJ
230 K	95 %	15,1 %	242,2 mJ
293 K	95 %	3,1 %	318,2 mJ

Tableau II - 3 : Tableau récapitulatif des pentes d'efficacité et des énergies seuil de l'oscillateur Yb : Sc_2O_3 obtenues à partir des courbes précédentes.

Nous pouvons constater que les performances de l'oscillateur sont améliorées de manière significative lorsque la température de l'échantillon diminue. D'une part, la pente d'efficacité laser est plus importante à basse température, et d'autre part, le seuil de démarrage des oscillations lasers dans la cavité est plus faible pour les basses températures.

Nous avons représenté sur la figure II-19 le spectre émis par l'oscillateur pour différentes températures du porte échantillon. Nous pouvons remarquer que, comparés aux oscillateurs Yb : Y_2O_3 et Yb : Lu_2O_3, nous n'avons pas de saut significatif de longueur d'onde pour une température donnée. Il n'y a donc qu'un seul type de fonctionnement. Mais la longueur d'onde d'émission augmente quand la température diminue.

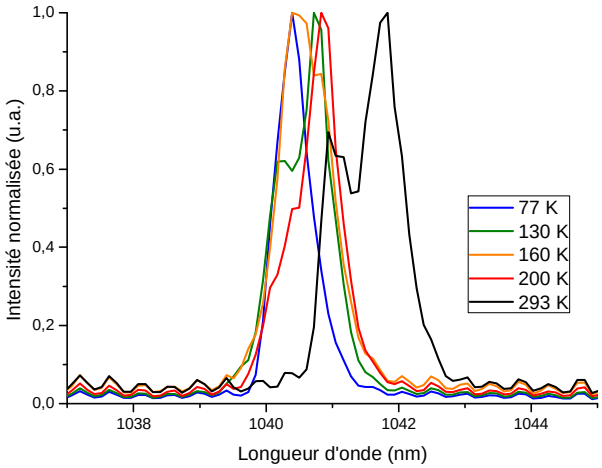


Figure II - 19 : Spectre émis par l'oscillateur laser Yb : Sc_2O_3 en fonction de la température du porte échantillon.

II.5 Conclusion

Nous avons démontré expérimentalement que les performances de l'oscillateur sont améliorées de manière très significative lorsque la température du matériau diminue. Ainsi pour les trois céramiques sesquioxydes Y_2O_3, Lu_2O_3 et Sc_2O_3 dopées 10 at. % ytterbium, d'une part, la pente d'efficacité laser est plus importante à basse température, et d'autre part, le seuil de démarrage des oscillations lasers dans la cavité est plus faible. Le tableau ci-dessous récapitule les résultats obtenus sur nos matériaux lasers à température ambiante et à la température de l'azote liquide :

	Yb : Y_2O_3 dopé 10 at. %		**Yb : Lu_2O_3 dopé 10 at. %**		**Yb : Sc_2O_3 dopé 10 at. %**	
	Pente	***Seuil***	***Pente***	***Seuil***	***Pente***	***Seuil***
300 K	17,9 %	118,2 mJ	11,8 %	292,3 mJ	3,1 %	318,2 mJ
77 K	39,3 %	95,5 mJ	27,9 %	153,4 mJ	22,1 %	68,6 mJ

Tableau II - 4 : Tableau récapitulatif des pentes d'efficacité et des énergies seuil des oscillateurs Yb : Y_2O_3, Yb : Lu_2O_3 et Yb : Sc_2O_3 obtenues à 77 et 300 K.

Nous pouvons remarquer que les rendements sont d'autant plus importants que la température est basse : les pentes d'efficacité laser augmentent d'un facteur compris entre deux et sept lorsque la température chute de la température ambiante à celle de l'azote liquide.

Le matériau donnant les meilleurs résultats se révèle être le sesquioxyde d'yttrium.

Conclusion de la première partie :

Cette première partie s'est articulée autour de deux chapitres présentant à la fois de nouvelles technologies lasers (système de pompage, ion actif, matrice hôte, système d'évacuation de la chaleur) pour des applications lasers de forte puissance moyenne et les performances lasers obtenues à partir de céramiques sesquioxydes d'yttrium, de scandium et de lutétium dopées ytterbium à basse température.

L'émergence de diodes lasers émettant autour de 940 nm a relancé l'intérêt de l'utilisation de l'ion ytterbium comme ion actif. Outre le fait de posséder un diagramme énergétique simplifié, comparé à l'ion néodyme, l'ion ytterbium a un rendement quantique faible (l'énergie dissipée sous forme de chaleur est réduite) et une durée de vie radiative plus importante (permettant ainsi un meilleur stockage d'énergie). L'évaluation des matrices hôtes à l'ion ytterbium a été permise par des figures de mérite : il s'est avéré que les grenats et les sesquioxydes de terre rare sont de très bons candidats en tant que matrices hôtes à l'ion ytterbium pour des applications lasers de forte puissance. Du fait de la température de fusion élevée de ces matériaux, l'obtention de monocristaux s'avère délicate : la solution réside dans la synthétisation de céramique transparente. Ces matériaux lasers sont refroidis jusqu'à la température de l'azote liquide. Lorsque la température du matériau diminue, les propriétés thermiques sont améliorées : la conductivité thermique augmente (jusqu'à atteindre un maximum), les sections efficaces d'émission et d'absorption augmentent et les coefficients de dilatation et thermo-optique dn/dT diminuent.

Des céramiques de sesquioxydes d'yttrium, de scandium et de lutétium dopées 10 at. % ont été testées en configuration d'oscillateur laser relaxé à basse température. Après avoir décrit le montage expérimental que nous avons mis en place, nous avons montré que lorsque la température de la céramique diminue, les performances lasers sont améliorées : la pente d'efficacité laser augmente et le seuil de fonctionnement des oscillations diminue. Nous avons également pu remarquer un décalage vers les courtes longueurs d'onde du faisceau cavité lorsque la température chute. Enfin, parmi les trois matériaux testés, il s'est avéré que le sesquioxyde d'yttrium est le matériau laser permettant d'obtenir les meilleures performances lasers.

De plus, des mesures de spectres d'absorption et d'émission ont été réalisées sur ces échantillons à température ambiante et à basse température. Cependant, nous n'avons pas toutes les données nécessaires notamment pour établir les spectres de gain de nos matériaux. Il serait alors intéressant de faire d'autres mesures de spectres, notamment pour des températures proches de celles où le décalage en longueur d'onde a été observé et ainsi de tracer les spectres de gain correspondants.

Le problème pour ces matériaux est que leurs propriétés thermomécaniques et thermo-optiques sont quasiment inconnues dans la littérature, et plus particulièrement à basse température. Le second chapitre se propose de développer des métrologies permettant de mesurer ces différents paramètres.

Seconde Partie :

Etude des propriétés thermomécaniques de matériaux lasers dopés ytterbium à basse température

Le pompage longitudinal par diodes lasers de matériaux en configuration « thin disk » suscite un grand intérêt pour le développement des lasers de forte puissance. La géométrie la plus couramment utilisée pour ce type de configuration consiste à pomper sur une face de l'échantillon et à refroidir sa face arrière. Même à fort dopage, il est nécessaire de recycler la pompe pour atteindre la plus grande absorption possible et ainsi obtenir de grandes efficacités lasers.

Cependant, le problème majeur est la génération de chaleur due à l'absorption de la pompe. Lorsqu'un matériau laser est pompé, une partie de l'énergie du photon incident est transformée en chaleur : l'écart d'énergie entre le photon de pompe et le photon laser est défini comme étant le défaut quantique η_Q et est responsable en partie de la charge thermique du matériau. On sait également que pour un photon de pompe, on obtiendra moins d'un photon de fluorescence. Le rendement total η du système s'écrit alors :

$$\eta = \eta_Q \eta_f$$

avec η_f le rendement de fluorescence.

Dans tous les milieux solides, ce dépôt de chaleur engendre une distribution de température inhomogène à l'intérieur du matériau, et il s'en suit en général un gradient de température entre la zone pompée et la face refroidie du matériau. Ce gradient fait naître des contraintes mécaniques au sein du matériau, contraintes qui peuvent à l'extrême mener à sa fracture. Mais avant d'en arriver là, le matériau laser voit déjà certaines de ses propriétés physiques changer, en particulier son indice de réfraction et sa longueur : le front d'onde du faisceau laser qui passe à travers sera modifié.

De nombreuses investigations théoriques sur la mesure de ces effets thermiques ont été menées sur du YAG [Fan 93], [Brown 97], [Giesen 94] et sur des verres [Brown 01]. Après une description des origines et des conséquences des effets thermiques dans des lasers à barreaux, Bonnefois quantifie par des calculs théoriques les effets thermo-optiques dans ce type de lasers [Bonnefois 06]. Mais concernant les mesures physiques à proprement dites, seule l'équipe du Laboratoire Charles Fabry, de l'Institut d'Optique, à Palaiseau, a montré des premiers résultats sur des matériaux lasers dopés à l'ytterbium. Ces premiers résultats sont décrits dans la thèse de Chénais [Chénais 02]. La caractérisation des effets thermiques reste toutefois difficile à mettre en œuvre.

Cette partie est divisée en deux chapitres.

Le premier s'appliquera à mesurer les coefficients de dilatation *a* et thermo-optiques *dn/dT*. Pour chacun de ces deux paramètres, nous décrirons les bancs expérimentaux, puis nous présenterons les résultats de mesures obtenus à basse température. Les mesures ont été effectuées sur des céramiques de sesquioxydes de scandium Sc_2O_3, d'yttrium Y_2O_3, et de lutétium Lu_2O_3 dopées ytterbium. A ceux-ci s'ajoutent des cristaux et des céramiques de YAG non dopés et dopés ytterbium, des cristaux de CaF_2 non dopé et dopé ytterbium et enfin des verres phosphates dopés néodyme.

Trois raisons majeures nous ont amené à mesurer d'autres matériaux que des céramiques sesquioxydes :

- le YAG peut être considéré comme un matériau de référence : il est couramment utilisé comme matériau laser et de nombreuses données sur ses propriétés thermo-optiques sont présentes dans la littérature. Il est alors facile de développer une métrologie et de faire des premières mesures sur des échantillons de YAG. La comparaison des résultats expérimentaux avec les données de la littérature permettent de valider la métrologie développée, et de qualifier la pertinence de nos mesures.

- le verre phosphate dopé néodyme, utilisé comme matériau laser dans le Laser MégaJoule, s'est imposé très facilement du fait de sa disponibilité, de sa faible conductivité thermique comparée à celle du YAG. Son coefficient thermo-optique dn/dT étant négatif, cela nous a permis de valider nos mesures dans le cas dn/dT négatif.

- enfin, depuis quelques années, on constate un regain d'intérêt pour l'utilisation du fluorure de calcium comme matériau laser. Ce dernier peut être dopé à l'ion ytterbium et possède une conductivité thermique intéressante. Cependant, son frittage sous forme de céramique n'est pas maîtrisé : seule une utilisation sous forme monocristalline est possible.

Le second chapitre s'attachera à mesurer la conductivité thermique à basse température. Du fait de la transparence et des petites dimensions de nos échantillons, les méthodes usuelles de détermination de la conductivité thermique sont difficiles à mettre en œuvre à température cryogénique, d'autant plus que nous nous attendons à ce que ce paramètre augmente de manière significative lorsque la température du matériau diminue. Nous proposerons deux méthodes différentes qui permettent de mesurer ce paramètre à basse température, soit directement par la méthode de la sonde annulaire, soit indirectement par la méthode flash laser.

Enfin, précisons que toutes les mesures ont été faites en faisant continûment varier la température du matériau de la température de l'azote liquide, 77 K, jusqu'à la température ambiante.

Chapitre III

Mesures des coefficients d'élongation thermique et thermo-optique de matériaux lasers à basse température

La variation de la longueur du matériau, appelée couramment coefficient d'élongation thermique ou coefficient de dilatation, se traduit par un allongement ou rétrécissement de la longueur du matériau en fonction de la température de ce dernier.

L'indice de réfraction linéaire d'un matériau optique dépend à la fois de la longueur d'onde de travail et de la température du matériau. Ainsi, la dispersion en longueur d'onde des indices de réfraction d'un matériau est généralement décrite par une représentation de Sellmeier à quatre coefficients. Le coefficient thermo-optique *dn/dT* caractérise quant à lui, la variation de l'indice de réfraction du matériau en fonction de sa température.

Des premières mesures ont été effectuées sur des céramiques de sesquioxydes d'yttrium Y_2O_3, de scandium Sc_2O_3, et de lutétium Lu_2O_3 dopées ytterbium à respectivement 10 at. %, 1 at. % et 1 at. %. Comme pour les mesures de performances lasers à basse température, ces échantillons nous ont été fournis par Konoshima Chemical Company [Konoshima], au Japon.

D'autres mesures ont été réalisées sur des échantillons de YAG non dopés et dopés ytterbium. Ces échantillons sont soit des céramiques, fournies par Konoshima Chemical Company, au Japon, soit des cristaux, fournis par Laserayan [Laserayan], en Arménie. Le but est de pouvoir à la fois comparer les propriétés thermo-optiques des céramiques sesquioxydes dopées ytterbium avec celles du matériau laser le plus fréquemment utilisé et d'appréhender l'influence du taux de dopage en ion ytterbium sur les valeurs des coefficients de dilatation et du *dn/dT*.

Enfin, à ceux-ci s'ajoutent des cristaux de fluorure de calcium CaF_2 non dopé et dopé ytterbium, fournis par Hellma [Hellma], en Allemagne, et des verres phosphates dopés néodyme (verre Hoya, LHG-8, [Hoya]).

Les matériaux testés se présentent sous la forme de cylindre de diamètre 4 mm et d'épaisseur 6 mm ou de parallélépipède de dimensions 5x5x10 mm^3. Seules les céramiques Yb : Lu_2O_3 et Yb : Sc_2O_3 sont des cylindres de diamètre 4 mm et d'épaisseur 3 mm.

III.1 Etat de l'art des mesures du coefficient d'élongation thermique α et du coefficient thermo-optique *dn/dT*

III.1.1. Etat de l'art sur le coefficient d'élongation thermique

Ce premier chapitre propose une étude bibliographique des différentes méthodes optiques de mesure du coefficient d'élongation thermique existantes sur une plage de température donnée. Il existe d'autres méthodes permettant de mesurer ce coefficient comme le dilatomètre à capacitance [Hovartic 91], [Lanchester 70], [Browder 69] ou bien encore la méthode de diffraction des rayons X [Edwards 49]. Celles-ci sont plus difficiles à mettre en œuvre comparées à des méthodes optiques que nous nous attacherons à développer plus en détail dans ce qui suit.

III.1.1.1. Méthode interférométrique : modèle de l'interféromètre de Michelson

L'une des méthodes les plus fréquemment utilisées pour mesurer le coefficient d'élongation thermique est la méthode interférométrique optique. Son principe est de placer l'échantillon dont on veut mesurer la variation de longueur, dans un des bras de l'interféromètre. Une variation de la température induit une modification de la différence de marche entre le bras de référence et le bras où est placé l'échantillon. Cette modification est comptée en nombre de franges qui défilent dans un intervalle de température donné.

Par sa facilité de mise en place et d'utilisation, l'interféromètre de Michelson reste la méthode la plus couramment utilisée pour ce type de mesures. De nombreux interféromètres tels que l'interféromètre de Benett [Benett 77] ou bien celui de Müller et Cezairliyan [Müller 91] ont été développés. Ces méthodes ont de nombreux inconvénients comme des difficultés de réglage de l'interféromètre ou bien le besoin d'avoir des échantillons longs.

Le schéma de principe du Michelson est décrit dans la figure III-1 :

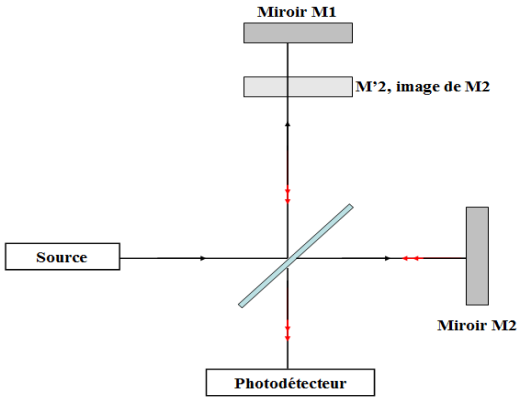


Figure III - 1 : Schéma de l'interféromètre de Michelson.

Le faisceau provenant d'une source *S* est séparé par une lame séparatrice en deux faisceaux d'amplitude égale. Après réflexion sur les deux miroirs *M1* et *M2*, les deux faisceaux viennent se recombiner sur la lame séparatrice : l'interférence est recueillie sur la photodiode.

Dans le cadre des mesures du coefficient d'élongation thermique, la face supérieure de l'échantillon est métallisée et joue ainsi le rôle du miroir *M2*. Lorsque la température de l'échantillon varie, l'information portée par l'interférence des deux faisceaux est caractéristique de la variation de la longueur du matériau.

Une variante de ce système est de l'utiliser en double passage, permettant ainsi d'améliorer la précision que l'on peut obtenir avec un interféromètre à passage unique. Ce mode d'utilisation de l'interféromètre est très fréquemment utilisé par les auteurs pour la mesure de ce paramètre [Aggarwal 05].

Hariharan *et al.* ont été les premiers à utiliser cette méthode pour mesurer ce coefficient [Hariharan 60 a], [Hariharan 60 b] et [Hariharan 61]. Le schéma du dispositif expérimental est similaire à celui de l'interféromètre simple passage, à la différence que dans leurs cas, ils jouent sur la polarisation du faisceau pour obtenir un double passage.

Une application de l'utilisation de l'interféromètre de Michelson est le dilatomètre JPL (Jet Propulsion Laboratory) [Dudik 03], [Halverson 07]. Ce dilatomètre a été conçu pour les besoins de la NASA, et plus particulièrement pour le télescope JWST, James Webb Space Telescope, ce dernier étant refroidi à 30-40 K. En vue de choisir correctement les éléments constituants ce télescope, le but du dilatomètre JPL est de pouvoir déterminer le coefficient de dilatation des matériaux constituants ce télescope à basse température. Ce dilatomètre est composé d'un laser YAG doublé en fréquence et d'un interféromètre Michelson. Des mesures ont été réalisées sur des échantillons de carbone de silicium à 70 K. L'erreur absolue de cette mesure a été évaluée à $\pm 1x10^{-6}$.

III.1.1.2. Autres méthodes optiques

D'autres méthodes existent pour mesurer le coefficient d'élongation thermique d'un matériau. Cependant, celles-ci étant très peu utilisées, nous ne les citerons qu'à titre indicatif et nous les décrirons très brièvement :

- la méthode de Friedrichs propose de mesurer la dilatation d'un matériau quelconque par rapport à celle d'un matériau de référence dont la dilatation est supposée connue, comme le cuivre [Friedrichs 89]. L'échantillon de référence présente une fente rectangulaire couverte par l'échantillon à étudier. Un rayon lumineux issu d'une LED est envoyé sur la fente. Du fait de la variation de longueur des matériaux de référence et à mesurer, la largeur de la fente change et la variation de l'intensité transmise, mesurée par une photodiode, permet de comparer la variation de la longueur de l'échantillon par rapport à celle de la référence.

  D'un point de vue expérimental, le principal inconvénient de cette méthode est d'illuminer uniformément la fente. Ceci n'est envisageable que par l'utilisation d'une lentille divergente et des verres diffusants positionnés entre la LED et la fente. De plus, cette méthode nécessite de connaître, avec une grande précision, le coefficient de dilatation du matériau de référence.

- la méthode de Shapiro consiste à utiliser une « bande torsadée » en cuivre et béryllium à laquelle est attachée le matériau à étudier et en son centre une fenêtre [Shapiro 64], [Pereira 70]. La dilatation du matériau se traduit par une rotation du miroir. Cette rotation est détectée par l'intermédiaire d'un bras de levier. La « bande torsadée » a une sensibilité de 200 mrad/cm.

  Cette méthode présente une haute sensibilité dans des conditions bien définies : forme cylindrique des échantillons et longueur de l'ordre de quelques centimètres.

III.1.1.3. Dilatomètres commerciaux ou développés en laboratoire

Actuellement, des dilatomètres commerciaux (NETZSCH) permettent de réaliser des mesures à basse et à haute températures [Netzsch]. La figure III-2 représente une photo du dilatomètre DIL 402 C, permettant de faire des mesures à basse température. Une photo du support échantillon est également montrée.

Pendant l'essai, l'échantillon à étudier est placé sous une sonde de dilatation. Un thermocouple est également placé près de l'échantillon afin de mesurer la température de celui-ci. La variation de la longueur de l'éprouvette se traduit par un déplacement de la sonde. Ce déplacement est répercuté par la sonde sous forme d'un signal électronique traduit en unité de longueur par un logiciel adapté.



Figure III - 2 : Photos d'un dilatomètre NETZSCH, modèle DIL 402 C, et de son support échantillon.

<u>Remarque</u> :

Il existe deux types de dilatomètres :

- le dilatomètre standard mesure directement la variation de la longueur de l'échantillon en fonction de sa température. L'inconvénient de ce type de dilatomètre est qu'il nécessite d'être régulièrement étalonné.

- le dilatomètre différentiel mesure à la fois la variation de la longueur de l'échantillon à étudier et la variation d'un échantillon de référence. Ce type de dilatomètre permet une sensibilité plus grande que le dilatomètre standard.

Des dilatomètres expérimentaux ont également été réalisés. C'est le cas du dilatomètre développé par le Service des Basses Températures du CEA de Grenoble. Le schéma de mesure est représenté sur la figure III-3 :

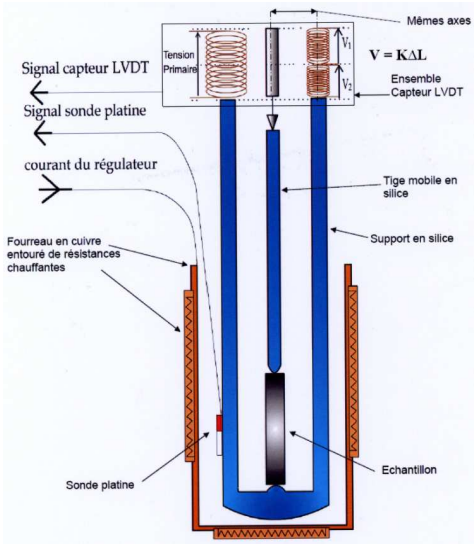


Figure III - 3 : Schéma du dilatomètre développé par le Service des Basses Températures, CEA, Grenoble.

L'échantillon est placé dans un trépied en silice à l'intérieur d'un cryostat. La variation de longueur de l'éprouvette est transmise au capteur de déplacement par l'intermédiaire d'une tige en silice. Le capteur de déplacement est situé en partie haute du cryostat et fonctionne donc à température ambiante.

L'étalonnage primaire du banc est réalisé en mesure comparative avec un échantillon étalon de silice. Cet étalonnage permet d'appliquer les corrections nécessaires aux mesures brutes obtenues, pour tenir compte de l'ensemble des erreurs de la chaîne de mesure (dilatation parasite du système, capteur de déplacement, ...)

L'erreur de mesure commise sur le coefficient de dilatation est, sur une plage de température comprise entre 4 et 300 K, inférieure à 5 %.

L'inconvénient de ce dilatomètre est qu'il nécessite des échantillons sous forme de barreau d'une longueur minimum de 50 mm.

III.1.2. Etat de l'art sur le coefficient thermo-optique *dn/dT*

Il existe trois types de méthodes permettant de mesurer le coefficient thermo-optique *dn/dT* : la méthode du minimum de déviation, l'ellipsométrie spectroscopique et les méthodes interférométriques.

III.1.2.1. La méthode du minimum de déviation

Cette méthode est la plus couramment utilisée pour les mesures d'indice de réfraction et de coefficient thermo-optique *dn/dT*. De son principe, l'échantillon est un prisme taillé dans un

matériau transparent qui est posé sur la plateforme d'un goniomètre pour en assurer sa rotation autour de son axe vertical.

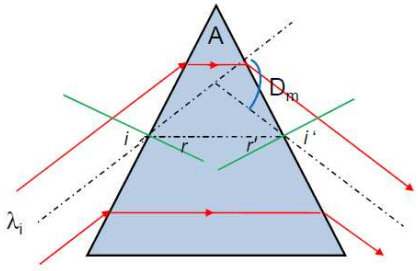


Figure III - 4 : Schéma de propagation dans un prisme.

Considérons un rayon contenu dans le plan perpendiculaire à l'arête du prisme. Ce rayon traverse le prisme en subissant une réfraction à l'entrée et une à la sortie, tout en restant dans le plan d'incidence. L'angle que fait le rayon incident avec le faisceau émergent est l'angle de déviation D_m. Les lois de la réfraction permettent d'écrire :

$$\sin i = n.\sin r$$
$$\sin i' = n.\sin r'$$
$$A = r + r'$$
$$D_m = i + i' - A$$

D_m est une fonction de A, n et i. Pour un prisme donné, A et n sont fixes : la déviation est une fonction de i présentant un minimum. Ce minimum est obtenu en dérivant l'angle D_m par rapport à i et en égalant ce rapport à 0. Il en résulte les relations suivantes :

$\frac{\delta D_m}{\delta i} = 0$ => $i = i' = i_m$, ce qui équivaut à écrire $r_m = r'_m = \frac{A}{2}$

Nous en déduisons la valeur de l'indice de réfraction par la relation :

$$n = \frac{\sin i}{\sin r} = \frac{\sin \frac{D_m + A}{2}}{\sin \frac{A}{2}} \qquad \text{Équation III-1}$$

La précision obtenue par cette méthode dépend de la qualité des images fournies par le prisme. Ces images dépendent de l'homogénéité du matériau, de l'état des surfaces et des phénomènes de diffraction. Ces phénomènes peuvent être réduits pour des faces de prisme de plusieurs centimètres de largeur mais cela entraîne, dans le cas de la mesure d'indice en fonction de la température, des problèmes d'uniformité de la température de l'échantillon. Les précisions de mesure sont de l'ordre de 10^{-4}.

La configuration de Littrow est une déviante de la méthode du prisme. En effet, l'échantillon à étudier est sous une forme prismatique possédant une de ses faces métallisées. De la même manière que pour la méthode du minimum de déviation, le prisme est placé sur un goniomètre.

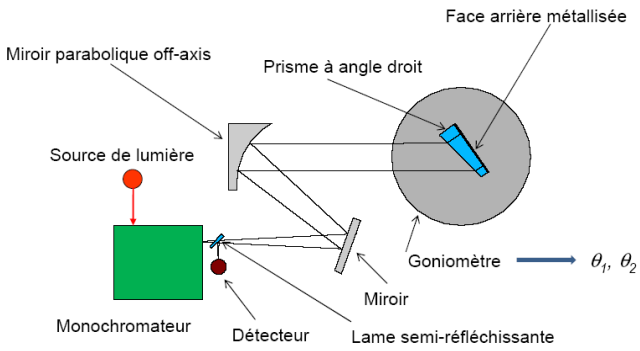


Figure III - 5 : Configuration de Littrow.

Si $D = \theta_2 - \theta_1 - 180°$, nous obtenons $n = \dfrac{\sin(A+D)}{\sin A}$.

Platt *et al.* utilisent la méthode du prisme pour mesurer l'indice de réfraction d'un matériau en fonction de sa température [Platt 75]. Ainsi, en reprenant la méthode de Platt, Harvey *et al.* ont mesuré l'indice de réfraction de l'Irtran 6 en fonction de la longueur d'onde (entre 2 et 30 µm) et pour une gamme de température allant de 80 à 300 K. L'incertitude de leur mesure est de 3.10^{-4} [Harvey 75].

La méthode du minimum de déviation a été également utilisée par la NASA, Goddard Space Flight Center [Frey 07]. Le montage est appelé CHARMS (Cryogenic, High-Accuracy Refraction Measuring System) et il se compose principalement d'un réflectomètre. La NASA a ainsi utilisé le montage CHARMS pour déterminer les coefficients thermo-optiques *dn/dT* de trois verres : N-BK7, BaLKN3 et SF15 dans des gammes de longueurs d'onde comprises entre 0,45 et 2,7 µm et pour des températures comprises entre 50 et 300 K [Levinton 03].

Pour des matériaux avec de faibles indices de réfraction, tel que la silice, l'incertitude de mesure est donnée jusqu'à la sixième décimale. Pour des valeurs d'indice de réfraction plus grandes, la précision des mesures est donnée à la cinquième décimale.

III.1.2.2. L'ellipsométrie spectroscopique

Cette méthode permet de mesurer directement l'indice de réfraction d'un matériau. Si ce dernier est placé dans un four de température, il est alors possible de déterminer son coefficient thermo-optique *dn/dT*.

L'ellipsométrie est basée sur la mesure du changement de l'état de polarisation d'une lumière polarisée, après réflexion en incidence oblique, sur la surface à étudier.

Lorsqu'une onde lumineuse interagit avec un matériau, son état de polarisation est modifié. La mesure de la variation de polarisation entre l'onde incidente *(i)* et l'onde réfléchie *(r)* permet de déduire des informations sur les propriétés de l'échantillon. La représentation du champ électrique, E_p pour la composante parallèle et E_s pour la composante perpendiculaire au plan d'incidence, dans une réflexion par une surface plane est donnée par le schéma III-6 :

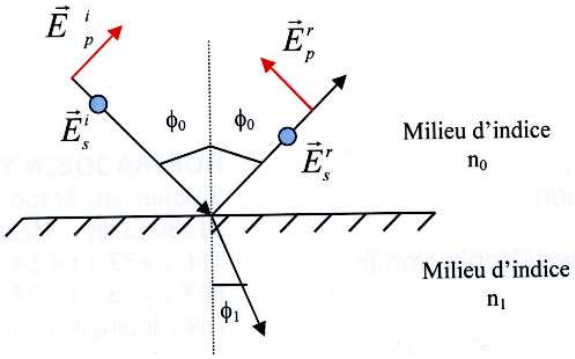


Figure III - 6 : Représentation du champ électrique lors d'une réflexion sur une surface plane.

L'ellipsométrie analyse la modification de polarisation par l'intermédiaire du rapport ρ des coefficients de réflexion parallèle et perpendiculaire. L'équation caractéristique de l'ellipsométrie est :

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \left|\frac{r_p}{r_s}\right| e^{i(\delta_{r_s} - \delta_{r_p})} = \tan(\Psi) e^{i\Delta} \qquad \text{Équation III-2}$$

$\tan(\Psi)$ représente le rapport des modules de coefficient de réflexion. Il traduit la modification de l'amplitude, et plus précisément l'atténuation du champ électrique.

$\Delta = \delta_{r_p} - \delta_{r_s}$ est la différence de phase introduite par la réflexion sur l'échantillon.

Ψ et Δ, appelés angles ellipsométriques, sont deux angles que l'on peut mesurer de façon indépendante. Il s'agit d'une mesure absolue qui ne nécessite aucune référence. Ces angles étant des fonctions de l'indice, du coefficient d'extinction et de l'épaisseur de l'échantillon, il est alors possible d'obtenir le paramètre souhaité, dans notre cas, l'indice de réfraction du matériau.

Il existe sur le marché, trois technologies principales utilisées pour la fabrication d'ellipsomètres : l'ellipsomètre à extinction, l'ellipsomètre à éléments tournants et l'ellipsomètre à modulation de phase. Elles sont toutes trois basées sur le même schéma de base représenté sur la figure III-7 :

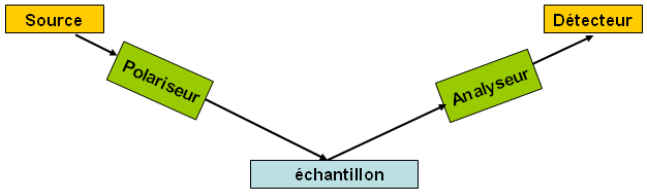


Figure III - 7 : Principe de base de l'ellipsométrie.

Le principe de l'ellipsométrie consiste à envoyer sur l'échantillon en incidence oblique un faisceau de lumière dont la polarisation est connue (passage à travers le polariseur), et d'analyser la polarisation réfléchie (passage à travers l'analyseur).

Il existe deux grandes familles d'ellipsomètres :

- l'ellipsomètre laser qui permet la mesure des paramètres (ψ,Δ) à une seule longueur d'onde, généralement celle de l'hélium-néon.

- l'ellipsomètre spectroscopique qui intègre une source de lumière blanche permettant de couvrir une large gamme spectrale de l'ultraviolet lointain au proche infrarouge, typiquement de 190 à 2100 nm. Les angles ellipsométriques (ψ,Δ) sont mesurés à chaque longueur d'onde.

Intéressons nous au principe de l'ellipsomètre spectroscopique à modulation de phase développé et commercialisé par Jobin-Yvon. Comparé au schéma de base de l'ellipsomètre, le montage optique inclut un modulateur photo-élastique qui se trouve avant l'analyseur (Figure III-8) :

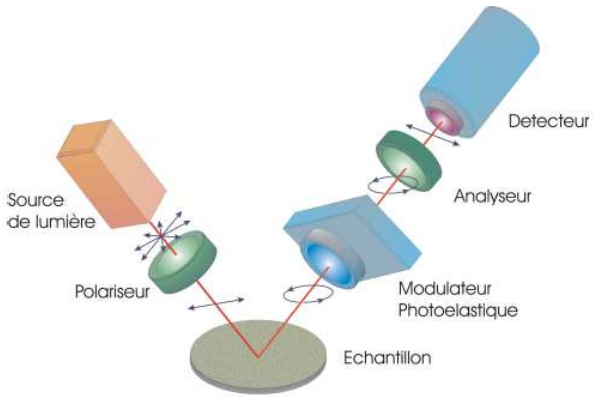


Figure III - 8 : Ellipsomètre spectroscopique à modulation de phase.

La source de lumière est une lampe à arc de Xénon dont le spectre s'étend du proche infrarouge à l'ultraviolet (190 – 2100 nm). Le modulateur est un barreau de silice, fonctionnant par effet photo-élastique. Ses propriétés optiques sont modifiées lorsqu'on lui applique une contrainte. Afin d'atteindre directement la mesure de $tan(\psi)$, la contrainte est sinusoïdale.

Le détecteur mesure l'intensité de la lumière réfléchie sur l'échantillon à chaque longueur d'onde.

Lors d'une mesure, la première étape consiste à placer l'échantillon sur son support, de repérer, à l'aide d'un faisceau référence, la réflexion de la face avant, et ensuite de positionner l'échantillon de telle manière que le faisceau réfléchi aille dans le modulateur. Dans le cas où les échantillons sont peu épais, il se peut qu'en plus du faisceau réfléchi par la face avant, il y ait la réflexion par la face arrière. Un dispositif a été mis en place permettant de s'affranchir de ce faisceau provenant de la face arrière.

Les angles ellipsométriques (ψ_{exp} , Δ_{exp}) sont mesurés en fonction de la longueur d'onde.

Un modèle est ensuite établi permettant de décrire l'échantillon mesuré. En effet, l'échantillon est composé d'un nombre de couches discrètes, possédant des valeurs d'épaisseur et de constantes optiques. Les valeurs de ce modèle permettent de calculer les valeurs théoriques des angles ellipsométriques (ψ_{th} , Δ_{th}).

Un modèle d'ajustement est utilisé pour que les paramètres « théoriques » se rapprochent au mieux des paramètres expérimentaux mesurés, de façon à obtenir le plus petit χ^2. Ce dernier est défini par l'équation suivante :

$$\chi^2 = \min \sum_{i=1}^{n} \left(\frac{(\Psi_{th} - \Psi_{\exp})_i^2}{\Gamma_{\Psi,i}} + \frac{(\Delta_{th} - \Delta_{\exp})_i^2}{\Gamma_{\Delta,i}} \right) \qquad \text{Équation III-3}$$

où Γ représente l'erreur expérimentale sur les angles ellipsométriques.

Nous avons utilisé cette méthode pour mesurer l'indice de réfraction de quelques uns de nos matériaux, et plus précisément des parallélépipèdes de dimensions 5x5x10 mm^3. Ces échantillons sont des céramiques de Y_2O_3 non dopée et dopée 10 at. % ytterbium et de YAG non dopée et dopée 10 at. % ytterbium.

III.1.2.3. Les méthodes interférométriques

Les méthodes interférométriques peuvent servir à déterminer le coefficient de dilatation et le coefficient thermo-optique *dn/dT*. Ces méthodes mesurent la variation de chemin optique en fonction de la température du matériau. Si nous posons δ comme étant le chemin optique, nous avons la relation suivante :

$$\delta = nL \qquad \text{Équation III-4}$$

En dérivant cette équation par rapport à la température, nous obtenons :

$$\frac{d\delta}{dT} = L\frac{dn}{dT} + n\frac{dL}{dT} \qquad \text{Équation III-5}$$

En posant $\alpha = \frac{1}{L}\frac{dL}{dT}$, le coefficient de dilatation, l'équation III-5 est équivalente à :

$$\frac{1}{nL}\frac{d\delta}{dT} = \frac{1}{n}\frac{dn}{dT} + \alpha \qquad \text{Équation III-6}$$

En connaissant ou en mesurant le coefficient d'élongation thermique du matériau pour la même plage de température que les mesures de variation de chemin optique, il est alors possible d'en déduire le coefficient thermo-optique *dn/dT*. Nous pouvons également remarquer que d'après l'équation III-6, un coefficient thermo-optique *dn/dT* négatif peut compenser le déphasage thermique engendré par la dilatation du matériau.

Nous allons désormais décrire trois types d'interféromètre permettant de réaliser ces mesures.

a. L'interféromètre Fizeau

Cette méthode de mesure a été développée par Foster et Osternik [Foster 68] et a été reprise par Wynne [Wynne 99] et Fan [Fan 98] pour des mesures de variation d'indice de réfraction d'un échantillon de YAG en fonction de la température. Elle est basée sur le schéma de l'interféromètre de Fizeau, à la différence près que dans le cas de Foster et Osternik, l'échantillon, sous la forme d'un barreau, a chacune de ses deux faces en contact avec une lame de matériau connu. Un faisceau laser He-Ne plan, est partiellement réfléchi par la première lame et constitue ainsi le faisceau de référence. L'autre partie du faisceau est réfléchie par la seconde lame et contient ainsi l'information de la variation de chemin optique de l'échantillon. Les deux faisceaux interfèrent sur le trajet retour et sont déviés de la source laser par un cube séparateur. Les franges, appelées communément franges de Fizeau, sont observées sur un écran ou à l'aide d'une caméra.

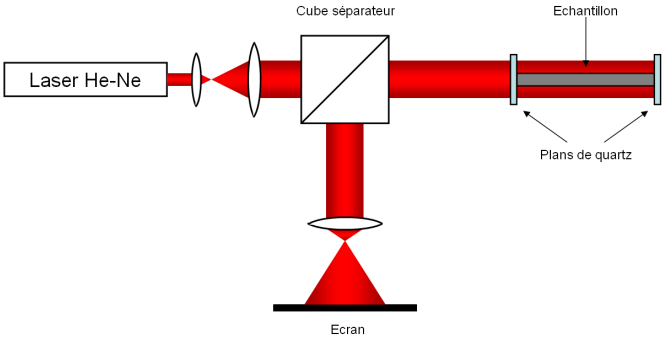


Figure III - 9 : Schéma de l'interféromètre selon Foster et Osternik [Foster 68].

Dans le cas des mesures à basse température (environ 100 K), l'erreur de mesure est de $0{,}2 \times 10^{-6}$ K^{-1}. La principale source d'erreur vient de la mesure en température de l'échantillon : il y a un léger décalage de mesure entre la température réelle de l'échantillon et la température mesurée par le détecteur.

b. L'interféromètre de Michelson

Le principe de mesure est identique à celui décrit pour les mesures du coefficient de dilatation. Dans le cadre des mesures du coefficient thermo-optique *dn/dT*, la face avant de l'échantillon est non métallisée, et la face arrière est solidaire d'un miroir.

c. L'interféromètre Mach-Zehnder

Le principe de l'interféromètre Mach-Zehnder est représenté sur la figure III-10 :

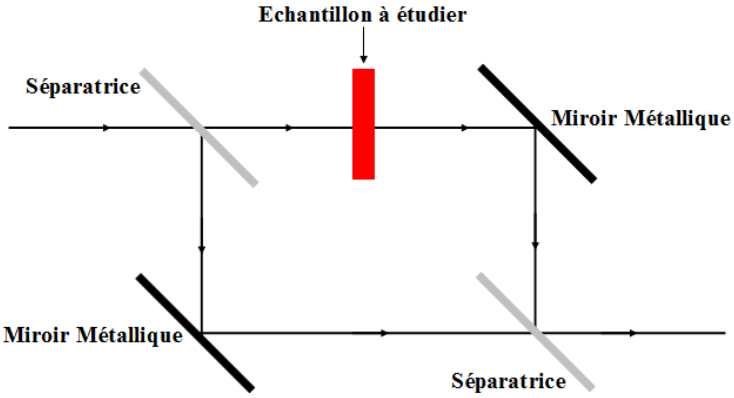


Figure III - 10 : Schéma de principe d'un interféromètre Mach-Zehnder.

Le matériau à étudier est placé dans l'un des bras de l'interféromètre. Le deuxième bras constitue le bras de référence. La différence de marche est exprimée par la relation :

$$\delta = (n-1)L \qquad \text{Équation III-7}$$

où n est l'indice de réfraction du matériau et L sa longueur.

Deux remarques peuvent être faites quant à ce type d'interféromètre :

- dans le cas où les faces de l'échantillon sont métallisées, l'interféromètre type Mach-Zehnder peut servir à la mesure du coefficient d'élongation thermique,
- de plus, dans le paragraphe 3, nous verrons que cet interféromètre est utilisé pour les mesures du coefficient thermo-optique *dn/dT* de nos échantillons à basse température.

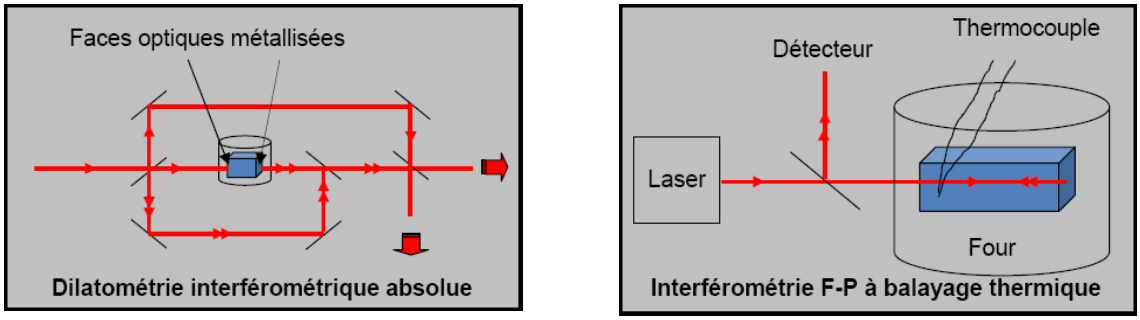
III.1.3. Méthode 2 en 1

Il existe une méthode qui permet, lors d'une même expérience, de mesurer à la fois le coefficient de dilatation et le coefficient thermo-optique *dn/dT* d'un matériau. Le dispositif expérimental permet de réaliser les mesures à différentes températures et à différentes longueurs d'onde. Cette méthode a été développée par Mangin au Laboratoire de Physique de l'Université de Bourgogne, LPUB à Dijon, et assure une précision de mesure à 10^{-6} [Mangin 93], [Lahlou-Kassi 94]. Partant du même raisonnement que pour la mesure du coefficient thermo-optique *dn/dT* par méthode interférométrique, la méthode proposée par Mangin s'appuie sur l'expression III-8 :

$$\frac{1}{nL}\frac{d\delta}{dT} = \frac{1}{n}\frac{dn}{dT} + \alpha \qquad \text{Équation III-8}$$

$\frac{1}{nL}\frac{d\delta}{dT}$ est le coefficient de variation de chemin optique normalisé, α est le coefficient de dilatation normalisé et $\frac{1}{n}\frac{dn}{dT}$ est le coefficient thermo-optique normalisé.

Mangin propose de mesurer les coefficients de variation de chemin optique et de dilatation pour ainsi en déduire les valeurs du coefficient thermo-optique. Pour les mesures de dilatation, le montage est analogue à un montage type Mach Zehnder modifié où, comme pour l'interféromètre de Müller et Cezairliyan, une partie des deux faces optiques de l'échantillon est métallisée et est utilisée comme réflecteur. Les parties non métallisées de l'échantillon sont utilisées dans un montage type Fabry-Pérot pour en déterminer la variation de chemin optique du matériau. Le principe de ces mesures est résumé sur les deux schémas suivants [Mangin 93] :



Mesure du coefficient d'élongation thermique

Mesure du coefficient de variation de chemin optique

Figure III - 11 : Schéma de principe des mesures développées par Mangin.

Pour la mesure du coefficient d'élongation thermique, les parties des faces de l'échantillon sont métallisées et agissent comme des miroirs plans. Un faisceau laser est divisé en deux faisceaux perpendiculaires par une première lame séparatrice d'un montage type Mach-Zehnder. Le premier faisceau constitue ainsi le faisceau de référence. Concernant la deuxième partie du faisceau, celle-ci va se réfléchir sur la face avant, métallisée, de l'échantillon pour passer dans le deuxième bras de l'interféromètre et se réfléchir sur la face arrière du matériau. Les deux faisceaux se recombinent sur la deuxième lame séparatrice pour donner naissance aux franges d'interférences.

Concernant les mesures de variation de chemin optique, le montage utilisé est un interféromètre type Fabry-Pérot. Les mesures se font sur la partie non métallisée de l'échantillon. Le système d'interférences issu des réflexions multiples sur ses faces, est réfléchi par la lame séparatrice et envoyé sur un détecteur.

Le dispositif optique présente l'avantage de pouvoir combiner les deux expériences simultanément. Cependant, il est nécessaire que l'échantillon ait une section d'environ 5x7 mm^2 pour pouvoir être éclairé par les deux faisceaux lasers de travail. Un autre avantage de cette méthode est qu'elle peut être utilisée dans une large gamme de longueurs d'onde avec typiquement 5 lasers différents. Ainsi, les coefficients de Sellmeier du matériau considéré peuvent être déterminés directement dans toute la gamme de température.

Les précisions de mesures dépendent de la nature du matériau étudié et de la valeur des paramètres mesurés. L'ordre de grandeur de ces mesures est situé autour de $3x10^{-7}$ K^{-1} pour la mesure du coefficient d'élongation thermique et de quelque 10^{-6} K^{-1} pour le coefficient thermo-optique.

III.2 Détermination du coefficient de dilatation thermique linéique

Les mesures ont été réalisées sur nos échantillons par le Laboratoire Nationale d'Essais et de métrologie, LNE, à Trappes, France [LNE]. Les essais ont été effectués sur un analyseur thermomécanique, dilatomètre standard Perkin Elmer, permettant de déterminer les variations dimensionnelles de l'éprouvette lorsque celle-ci est soumise à une rampe de température.

III.2.1. Conditions d'essai

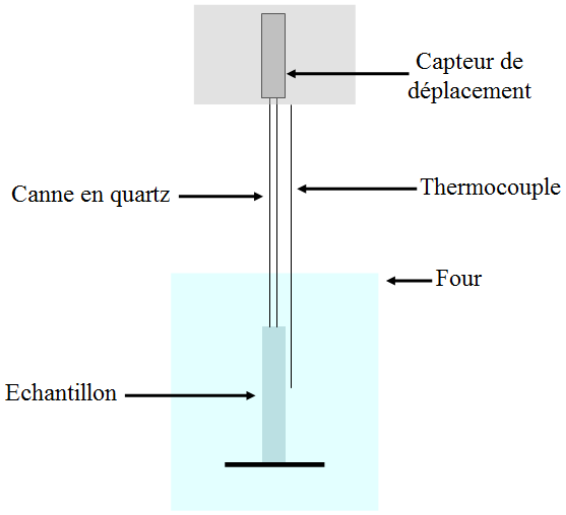
Les éprouvettes se présentent sous la forme de cylindres de 4 mm de diamètre et de 6 mm de longueur ou de parallélépipèdes de dimensions 5x5x10 mm^3. Les essais sont réalisés dans le sens longitudinal.

Le dilatomètre utilisé est un dilatomètre commercial, Perkin Elmer, modèle TMA7. Le schéma de principe ainsi qu'une photo du montage est représenté en figure III-12.

Le montage expérimental est vertical. Pendant l'essai, l'éprouvette est placée sous une sonde de dilatation en quartz, avec une force d'appui de 10 mN : l'échantillon est en appui sur lui-même, posé sur une face plane. Le dilatomètre est pourvu d'un système de balayage de gaz d'hélium permettant ainsi à l'éprouvette de descendre en température. La mesure se fait lors de la remontée en température, rendue possible grâce à une résistance chauffante. La variation de la longueur de l'éprouvette se traduit par un déplacement de la canne en quartz en contact avec le matériau. Le déplacement de la canne donne un signal qui est directement converti en micromètre, grâce au logiciel fourni par Perkin Elmer. Une sonde de température, thermocouple N519-0417, est placée à proximité de l'échantillon.



a) Photo du montage expérimental de mesure du coefficient de dilatation à basse température



b) Schéma du dispositif expérimental

Figure III - 12 : Représentation du dispositif expérimental mis en place pour la mesure du coefficient d'élongation thermique. *a*) Photo du dilatomètre TMA7, Perkin Elmer. *b*) Schéma du dispositif expérimental.

Après un palier de stabilisation, à 296 K, l'échantillon subit le cycle de température suivant :

- L'échantillon est refroidi jusqu'à 103 K à une vitesse de 5 K/min
- Un palier a lieu à 103 K pendant 5 minutes pour stabiliser le signal
- L'échantillon subit une montée en température de 103 K à 296 K à une vitesse de 5 K/min.

L'échantillon subit un deuxième cycle en température permettant ainsi de vérifier la reproductibilité des mesures.

Le coefficient de dilatation des échantillons est déterminé pour des températures comprises entre 123 K et 296 K.

III.2.2. Expression des résultats

Le dilatomètre mesure l'allongement de l'échantillon entre sa longueur initiale à la température T_0 et sa longueur à la température T. Deux distinctions sont à prendre en considération. A partir de la mesure de l'allongement de l'échantillon, mesuré par le dilatomètre, nous pouvons en déduire le coefficient de dilatation moyen et le coefficient de dilatation vrai.

Le coefficient de dilatation moyen a_m est déterminé à partir de l'allongement $\Delta L\big|_{T_0}^{T}$ mesuré entre les températures T_0 et T :

$$\alpha_m = \frac{\Delta L\big|_{T_0}^{T}}{(T - T_0)L_{T_0}} \qquad \text{Équation III-9}$$

où L_{T0} représente la longueur initiale de l'échantillon à T_0 = 296 K. Cette longueur est mesurée par le LNE en utilisant un micromètre, appareil de mesure également appelé « palmer ».

Le coefficient vrai d'élongation thermique a_v représente quant à lui l'allongement de l'échantillon à une température donnée. Il n'est donc pas déterminé par rapport à la longueur initiale de l'échantillon, à la température T_0. Il se déduit de la courbe de l'allongement mesurée en fonction de la température, en calculant la pente de cette dernière à une température donnée. L'expression du coefficient de dilatation vrai est donnée par l'équation :

$$\alpha_v = \frac{1}{L}\frac{dL}{dT} \qquad \text{Équation III-10}$$

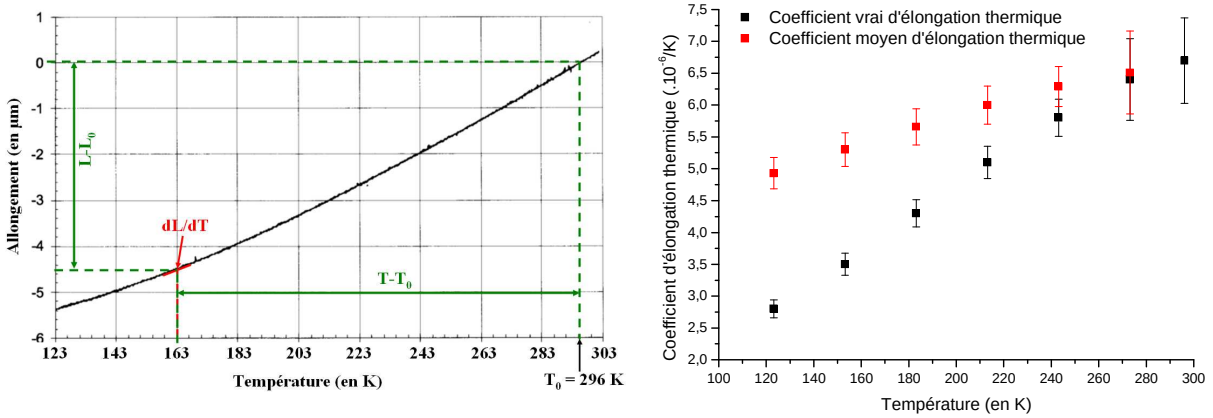
Le terme $\frac{dL}{dT}$ représente la pente de la courbe à la température où l'on souhaite mesurer le coefficient de dilatation vrai. Le terme $\frac{1}{L}$ représente l'inverse de la longueur de l'échantillon mesurée à température ambiante.

Les incertitudes de mesure pour les coefficients moyen et vrai de dilatation sont de ± 10 % pour des températures comprises entre 273 et 296 K, et de ± 5 % pour les autres températures. Ces incertitudes ont été déterminées en se référant à la norme NF ENV 13005 de 1999.

Pour étalonner la température, une boule de gallium est placée sous la sonde en quartz et un échauffement lui est appliqué. Lorsque le gallium fond, la sonde chute, et la courbe d'allongement s'écroule. A cet instant précis, la température affichée par le logiciel est relevée et comparée à la valeur théorique de fusion du gallium (302,76 K). L'écart de température entre la valeur théorique et la valeur expérimentale sert à établir une correction en température.

L'erreur relative associée à la mesure de température est de ± 3 K.

Les deux figures suivantes se proposent de montrer les résultats obtenus pour une céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. %. La longueur initiale de l'échantillon L_{T0} mesurée est de 6,284 mm. La figure III-13 *a* montre l'évolution de l'allongement de l'échantillon entre 123 et 296 K. La figure III-13 *b* illustre les coefficients moyen et vrai d'élongation thermique mesurés à partir de la courbe d'allongement.



a) Allongement d'une céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. % entre 123 et 296 K

b) Coefficients moyen et vrai d'élongation thermique d'une céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at %

Figure III - 13 : ***a)*** **Courbe d'allongement mesurée par le dilatomètre TMA7, Perkin Elmer, sur une céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. % pour des températures comprises entre 123 et 296 K.** ***b)*** **Comparaison entre les coefficients vrai et moyen d'élongation thermique.**

D'une manière générale, les valeurs des coefficients d'élongation thermique vrai et moyen diminuent lorsque la température de l'échantillon diminue.

Nous pouvons également remarquer que lorsque la température diminue, le coefficient vrai de dilatation est plus faible que le coefficient moyen d'élongation thermique (Figure III-13 *b*). Cette différence est due au fait que le coefficient vrai est déterminé par le calcul de la tangente de la courbe de l'allongement à une température donnée. En prenant en considération la courbe d'allongement représentée en figure III-13 *a*, la courbe s'assimile à une droite entre 270 et 296 K ; il est donc difficile d'en mesurer une valeur précise de la tangente. Cette explication est également applicable pour les incertitudes de mesure : l'incertitude de mesure est deux fois plus grande entre 273 et 323 K car la différence d'allongement de l'échantillon est faible.

III.2.3. Résultats de mesures

Dans cette partie, nous nous attacherons à ne présenter que les valeurs des coefficients vrais de dilatation obtenus à basse température de tous les échantillons préalablement cités dans l'introduction à ce chapitre.

III.2.3.1. Coefficients d'élongation thermique de céramiques de sesquioxydes Y_2O_3, Sc_2O_3 et Lu_2O_3 dopées ytterbium à basse température

Nous avons testé dans un premier temps des céramiques Yb :Y_2O_3. Les échantillons sous forme parallélépipédique et cylindrique sont tous deux dopés 10 at. % mais proviennent de deux frittages différents. La figure III-14 montre les valeurs des coefficients vrais de dilatation pour une gamme de température allant de 120 K à la température ambiante.

Une comparaison avec les valeurs expérimentales de Fan est également illustrée [Fan 07]. Ce dernier a mesuré le coefficient de dilatation d'une céramique Y_2O_3 non dopée par la méthode interférométrique double passage de Michelson. L'erreur absolue estimée sur ses mesures est de ± 0,1x10^{-6} K^{-1}, pour des températures inférieures à 200 K. Pour des températures supérieures, l'erreur est supposée plus grande, mais aucune donnée n'est précisée. Comparée à notre erreur relative de ± 10 % pour des températures comprises entre 273 et 296 K, et de ± 5 %, pour les autres températures, l'erreur absolue obtenue sur nos valeurs expérimentales est inférieure à ± 0,6x10^{-6} K^{-1}.

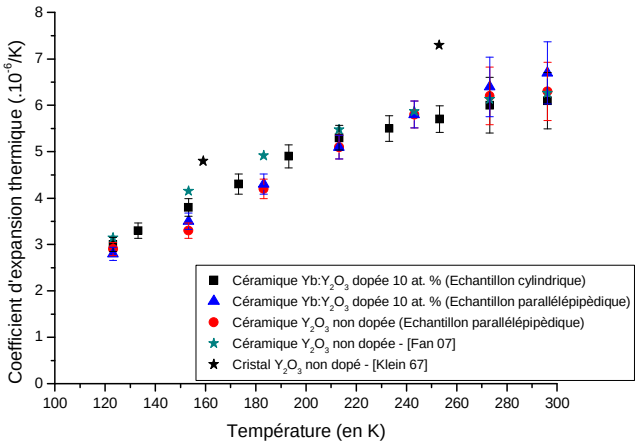


Figure III - 14 : Coefficients d'élongation thermique de céramiques Yb: Y_2O_3 dopées 10 at. % à basse température.

D'une manière générale, les coefficients de dilatation diminuent d'un facteur deux lorsque la température de l'échantillon passe de la température ambiante à 120 K. Compte-tenu des barres d'erreur, nos valeurs expérimentales sont semblables, au maximum à 10 %, des valeurs mesurées par Fan [Fan 07]. De plus, aucune distinction n'apparaît dès lors que l'échantillon soit dopé ou non ou qu'il provienne d'un frittage différent.

Fan fait un ajustement de la courbe par une fonction polynômiale (Equation III-11). Nous avons fait de même pour nos mesures expérimentales (Tableau III-1).

$$\alpha = a + bT + cT^2 + dT^3 \qquad \text{Équation III-11}$$

	a Yb:Y_2O_3 10 at. % (Echantillon cylindrique)	*a* Yb:Y_2O_3 10 at. % (Echantillon parallélépipédique)	*a* Y_2O_3 céramique non dopée (Echantillon parallélépipédique)	*a* Y_2O_3 céramique non dopée [Fan 07]
a (en K^{-1})	-1,78497	2,2355	8,00084	-4,2499
b (en K^{-2})	0,04526	-0,01932	-0,11197	0,085464
c (en K^{-3})	-4,64197x10^{-5}	2,49266x10^{-4}	7,22168x10^{-4}	-2,3333x10^{-4}
d (en K^{-4})	-5,60896x10^{-8}	-4,49499x10^{-7}	-1,22865x10^{-6}	2,1817x10^{-7}

Tableau III - 1 : Coefficients des régressions polynômiales obtenues sur les valeurs expérimentales du coefficient de dilatation des céramiques Y_2O_3 non dopée et dopées en ion ytterbium.

Klein *et al.* ont mesuré le coefficient de dilatation de cristaux d'oxyde d'yttrium non dopés à l'aide de la méthode de diffraction par rayons X pour des températures comprises entre 77 et 300 K [Klein 67]. Ainsi, à 159 K et à 253 K, ils trouvent respectivement des valeurs de $4{,}8\text{x}10^{-6}$ K^{-1} et $7{,}3\text{x}10^{-6}$ K^{-1}. Comparées à nos mesures expérimentales, à ces deux températures, leurs valeurs sont supérieures aux nôtres. Cette différence peut s'expliquer par deux raisons : la première est que les barres d'erreur de mesure de Klein *et al.* ne sont pas mentionnées, la seconde est que mise à part ces deux valeurs, aucune autre valeur précise n'est donnée dans leur article.

Après avoir montré les résultats de mesures des coefficients d'élongation thermique de céramiques Y_2O_3 non dopée et dopée en ion ytterbium, étudions désormais l'évolution des coefficients de dilatation de céramiques de sesquioxydes de scandium et de lutétium dopées ytterbium à basse température.

Les figures suivantes montrent les résultats de mesures obtenus sur des céramiques Yb :Sc_2O_3 (Figure III-15 *a*) et Yb :Lu_2O_3 (Figure III-15 *b*) dopées 1 at. %.

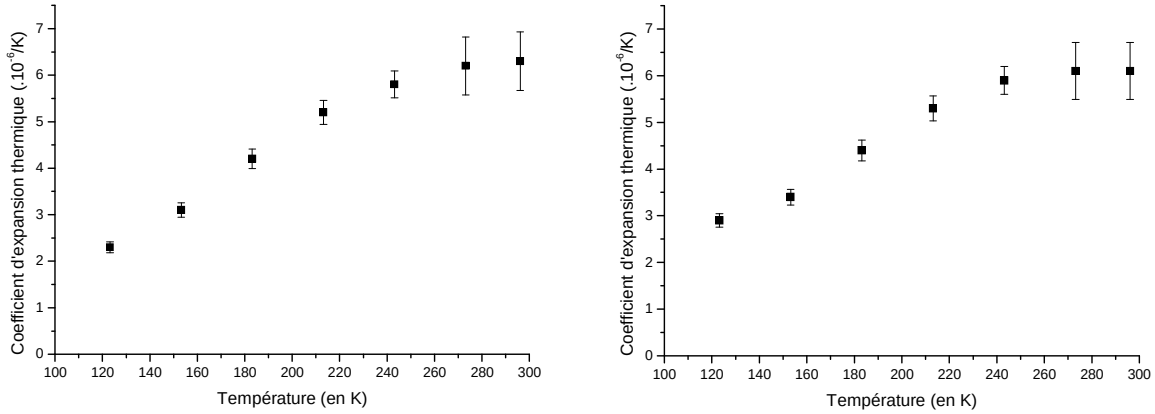


Figure III - 15 : Coefficients de dilatation de céramiques Yb : Sc_2O_3 (*a*) et Yb : Lu_2O_3 (*b*) dopées 1 at. % à basse température.

Concernant l'ajustement polynômial basé sur l'équation III-11, nous trouvons les coefficients suivants :

	a Yb:Sc_2O_3 1 at. %	*a* Yb:Lu_2O_3 1 at. %
a (en K^{-1})	1,95002	6,42747
b (en K^{-2})	-0,03534	-0,09235
c (en K^{-3})	$4{,}0676\text{x}10^{-4}$	$6{,}61783\text{x}10^{-4}$
d (en K^{-4})	$-8{,}04397\text{x}10^{-7}$	$-1{,}1963\text{x}10^{-6}$

Tableau III - 2 : Coefficients des régressions polynômiales obtenues sur les valeurs expérimentales du coefficient d'élongation thermique des céramiques Sc_2O_3 et Lu_2O_3 dopées ytterbium à 1 at. %.

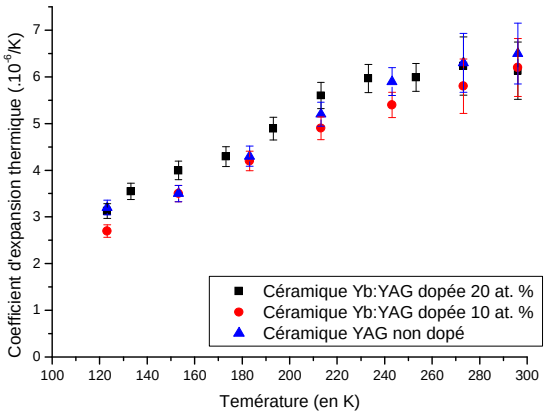
Aucune valeur de la littérature ne présente les coefficients de dilatation de ces deux matériaux pour les basses températures. Cependant, quelques valeurs sont données à température ambiante. En effet, Mix donne respectivement les valeurs de 8 et $9\text{x}10^{-6}$ K^{-1} pour les coefficients de dilatation de Lu_2O_3 et Sc_2O_3, à température ambiante [Mix 99]. Gaumé

donne un coefficient de dilatation de $8x10^{-6}$ K^{-1} pour Lu_2O_3 sous forme cristalline, à température ambiante [Gaumé 02]. Nos valeurs expérimentales sont légèrement inférieures aux valeurs mentionnées. Cependant, aucune indication n'est clairement évoquée quant à l'origine de ces valeurs, ni même sur les barres d'erreur.

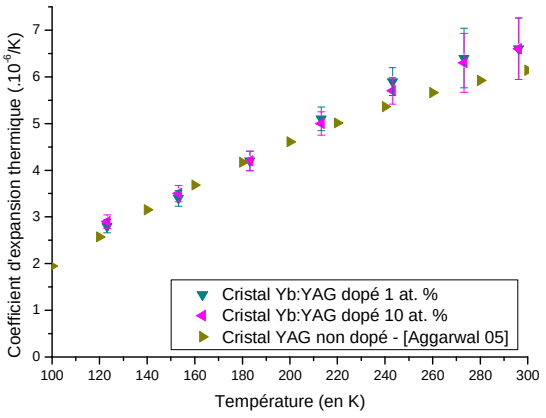
III.2.3.2. Coefficients d'élongation thermique de cristaux et de céramiques YAG non dopés et dopés en ion ytterbium à basse température

Nous avons testé différents échantillons de $Y_3Al_5O_{12}$, sous formes cristalline et de céramique. Les échantillons étudiés ont des taux de dopage différents, ce qui a permis de mettre en évidence l'influence du taux de dopage en ion ytterbium sur les mesures du coefficient d'élongation thermique.

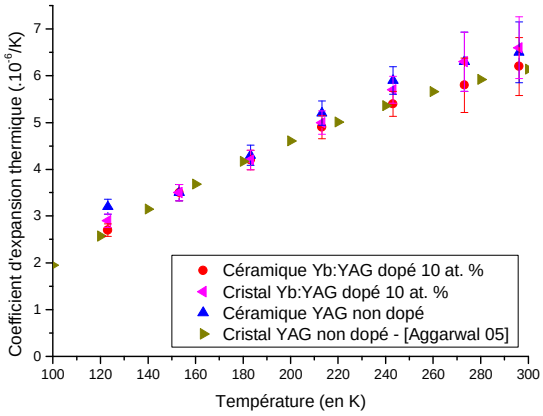
La figure III-16 *a* présente une comparaison entre différentes céramiques YAG avec des taux de dopage de 0, 10 et 20 at. %. La figure III-16 *b* montre les résultats de mesures obtenus pour différents cristaux dopés 1 et 10 at. %. Cette figure présente également les résultats de mesures obtenus par Aggarwal *et al.* pour un cristal YAG non dopé [Aggarwal 05]. Comme dans le cas de la mesure du coefficient de dilatation d'une céramique Y_2O_3 non dopée, ces mesures ont été menées à l'aide d'un interféromètre Michelson double passage. L'erreur des mesures est identique à celle donnée par Fan [Fan 07]. Enfin, la figure III-16 *c* regroupe les différents résultats expérimentaux obtenus dans le cas des céramiques et des cristaux (pour un même taux de dopage), permettant ainsi de faire une comparaison entre les différents résultats de mesures et de voir l'influence de la nature de l'échantillon testé.



a



b



c

Figure III - 16 : Coefficients d'élongation thermique de YAG sous forme de céramiques non dopée et dopées 10 et 20 at. % (*a*) et sous forme cristallines dopés 1 et 10 at.% (*b*) à basse température. *c*) Comparaison entre les valeurs des coefficients de dilatation d'une céramique et d'un cristal Yb :YAG non dopés et dopés 10 at. % à basse température.

Comme pour les céramiques Y_2O_3 non dopée et dopée 10 at. % ytterbium, le coefficient de dilatation de céramiques/cristaux de YAG non dopés/dopés en ion ytterbium diminue avec la température.

Que ce soit pour des échantillons sous formes de céramiques (Figure III-16 *a*) ou de cristaux (Figure III-16 *b*), nous pouvons en conclure qu'avec la précision des mesures, le taux de dopage n'a aucune influence sur les valeurs des coefficients de dilatation.

Sur la figure III-16 *b*, les valeurs expérimentales obtenues pour un cristal de YAG sont comparables, avec une différence maximum de 7 %, aux valeurs mesurées par Aggarwal *et al.* [Aggarwal 05]. Pour un cristal de YAG non dopé, à 120 K, Aggarwal mesure un coefficient de dilatation de (2,57 ± 0,1) x $10^{-6}K^{-1}$. Dans notre cas, pour un cristal Yb : YAG dopé 1 at. %, à 123 K, nous mesurons un coefficient d'élongation thermique de (2,8 ± 0,1) x 10^{-6} K^{-1}.

Si nous prenons le cas d'un cristal Yb : YAG dopé 10 at. %, à température ambiante, nous mesurons un coefficient de dilatation de (2,9 ± 0,1) 10^{-6} K^{-1}. Xu a mesuré le coefficient de dilatation d'un cristal Yb : YAG, avec le même taux de dopage, à l'aide d'un dilatomètre Netzsch, modèle DIL 402PC : à température ambiante, il trouve une valeur de 5,1x10^{-6} K^{-1} [Xu 04]. Sa valeur est environ 1,5 fois plus petite que celle que nous avons mesurée, cependant, aucune barre d'erreur n'est mentionnée pour ses mesures.

Pour un cristal YAG non dopé, Wynne mesure, par l'utilisation d'un interféromètre Fizeau, un coefficient de dilatation de (2,7 ± 0,2) x 10^{-6} K^{-1} et de (6,01 ± 0,2) x 10^{-6} K^{-1} respectivement à 125 et 266 K [Wynne 99]. Comparées à nos valeurs expérimentales de (2,8 ± 0,1) x 10^{-6} K^{-1} et de (6,4 ± 0,6) x 10^{-6} K^{-1}, pour un cristal Yb :YAG dopé 1 at.% respectivement à 123 et à 273 K, nous pouvons en conclure que nos valeurs expérimentales sont à 6 % près semblables à celles mesurées par Wynne.

Enfin, la figure III-16 *c* permet de montrer que pour un même taux de dopage, la nature des échantillons n'influe pas sur la valeur du coefficient de dilatation.

Concernant les ajustements polynômiaux, le tableau III-3 regroupe tous les coefficients polynômiaux relatifs à nos mesures expérimentales ; une comparaison avec les valeurs des coefficients polynômiaux calculées par Aggarwal *et al.* et Wynne *et al.* y apparaît.

	a Yb:YAG 10 at. % Céramique	*a* Yb:YAG 20 at. % Céramique	*a* YAG non dopée Céramique
a (en K^{-1})	9,02907	4,04807	-2,06435
b (en K^{-2})	-0,11938	-0,04705	0,04899
c (en K^{-3})	$7{,}32842\times10^{-4}$	$4{,}2976\times10^{-4}$	$-9{,}34489\times10^{-5}$
d (en K^{-4})	$-1{,}21215\times10^{-6}$	$-8{,}35289\times10^{-7}$	$7{,}40978\times10^{-8}$

	a Yb:YAG 10 at. % Cristal	*a* Yb:YAG 1 at. % Cristal	*a* YAG non dopée Cristal [Aggarwal 05]	*a* YAG non dopée Cristal [Wynne 99]
a (en K^{-1})	5,85467	3,81009	-1,8496	
b (en K^{-2})	-0,07861	-0,03958	0,04368	$1{,}9998\times10^{-8}$
c (en K^{-3})	$5{,}52821\times10^{-4}$	$3{,}29879\times10^{-4}$	$-5{,}6844\times10^{-5}$	1.56101×10^{-11}
d (en K^{-4})	$-9{,}42187\times10^{-7}$	$-5{,}55171\times10^{-7}$		$-2{,}19111\times10^{-4}$

Tableau III - 3 : Coefficients des régressions polynômiales obtenues sur les valeurs expérimentales des coefficients d'élongation thermique de céramiques et de cristaux de YAG non dopés et dopés en ion ytterbium.

Fan *et al.* proposent un nouvel ajustement polynômial pour les valeurs du coefficient de dilatation sur une plage de température allant de 100 à 300 K [Fan 98]. Cette nouvelle régression est régie par l'équation III-12 :

$$\alpha = -1{,}78\times10^{-6} + 3{,}3\times10^{-8}T \qquad \text{Équation III-12}$$

Une autre approximation est donnée par l'équation [Fan 98] :

$$\alpha = 1{,}14\times10^{-7}T^{0.69} \qquad \text{Équation III-13}$$

Aucune barre d'erreur n'est donnée pour ces deux équations qui proviennent de mesures de dilatométrie par la méthode de diffraction de rayons X.

Lorsque la température tend vers 0 K, la première équation tend à sous-estimer les valeurs du coefficient de dilatation et n'est donc plus valable. La deuxième équation impose au coefficient de dilatation d'être égal à 0 lorsque la température devient nulle. Cependant, pour des températures proches de la température ambiante, cette équation tend à sous-estimer les valeurs du coefficient de dilatation.

En prenant en compte l'équation III-12, pour une céramique de YAG non dopée, la figure III-17 se propose de comparer les valeurs du coefficient de dilatation entre les résultats de calcul de l'équation proposée par Fan (points rouges) et nos valeurs expérimentales (points noirs).

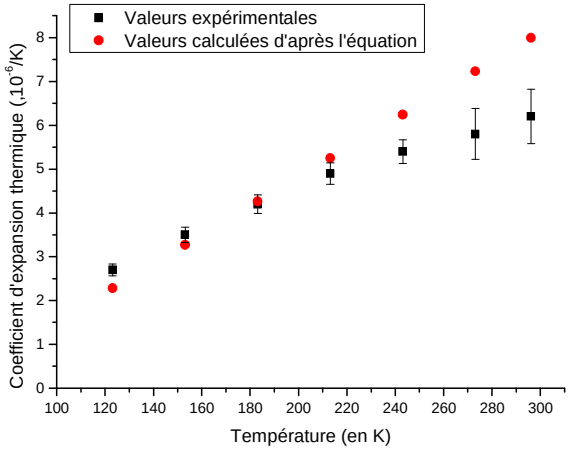


Figure III - 17 : Coefficients d'élongation thermique d'un cristal de YAG non dopé à basse température. Comparaison avec les valeurs d'élongation thermique calculées par la régression de Fan *et al.* [Fan 98].

Compte tenu de nos barres d'erreur, et des explications de Fan, l'approximation du coefficient d'élongation thermique ne serait valable que pour des températures comprises entre 150 à 210 K. L'équation tendrait à surestimer les valeurs du coefficient pour des températures proches de la température ambiante, et à les sous-estimer pour les basses températures.

III.2.3.3. Coefficients de dilatation de cristaux CaF_2 non dopés et dopés en ion ytterbium à basse température

A température ambiante, et pour un cristal de fluorure de calcium CaF_2 non dopé, Harris donne une valeur du coefficient de dilatation de $19{,}5 \times 10^{-6}$ K^{-1} [Harris 77], alors que Boudeile en donne une valeur de $18{,}9 \times 10^{-6}$ K^{-1} [Boudeile 08]. Seul le site de Corning nous donne les valeurs du coefficient de dilatation d'un cristal de CaF_2 non dopé pour des températures allant de 93 à 473 K [Corning]. Ces valeurs ont été reprises dans la figure III-18 : elles permettent de comparer ces données avec nos valeurs expérimentales trouvées sur des cristaux de CaF_2 non dopé et dopé 3 at. % ytterbium.

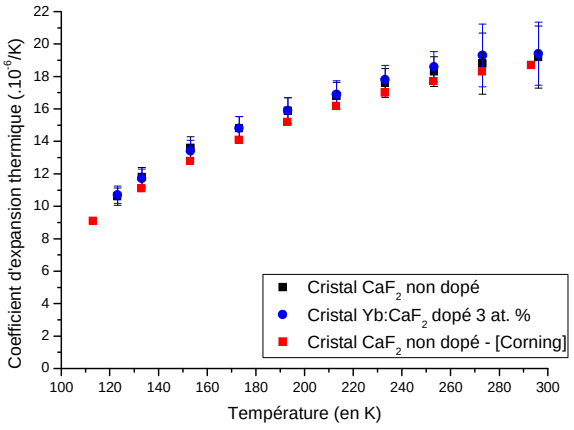


Figure III - 18 : Coefficients d'élongation thermique de cristaux de CaF_2 non dopé et dopé à basse température. Comparaison avec les valeurs de dilatation données par Corning.

Comme pour les céramiques Yb : Y_2O_3 ou les échantillons de YAG que nous avons étudiés, les coefficients d'élongation thermique de cristaux de CaF_2 non dopé et dopé en ion ytterbium diminuent lorsque la température chute : entre la température ambiante et 123 K, le coefficient d'élongation thermique diminue pratiquement d'un facteur 2. Par rapport aux valeurs données par Corning, nos valeurs expérimentales sont similaires, avec un écart maximal de 7 %.

Concernant les ajustements polynômiaux, le tableau III-4 regroupe les coefficients polynômiaux relatifs à nos mesures expérimentales.

	a Yb:CaF_2 3 at. % Cristal	*a* Yb:CaF_2 non dopé Cristal
a (en K^{-1})	-11,14006	-4,81873
b (en K^{-2})	0,26547	0,16368
c (en K^{-3})	$-8{,}30997\times10^{-4}$	$-3{,}18653\times10^{-4}$
d (en K^{-4})	9.49713×10^{-7}	$1{,}46364\times10^{-7}$

Tableau III - 4 : Coefficients des régressions polynômiales obtenues sur les valeurs expérimentales des coefficients d'élongation thermique de cristaux de CaF_2 non dopé et dopé en ion ytterbium.

III.2.3.4. Coefficients de dilatation de verre phosphate dopé néodyme à basse température

Nous avons également testé des verres phosphates dopés 4 at. % néodyme. Ces verres sont des verres Hoya, LHG-8 [Hoya]. La figure III-19 illustre les résultats de mesure du coefficient d'élongation thermique pour des températures comprises entre 123 et 300 K.

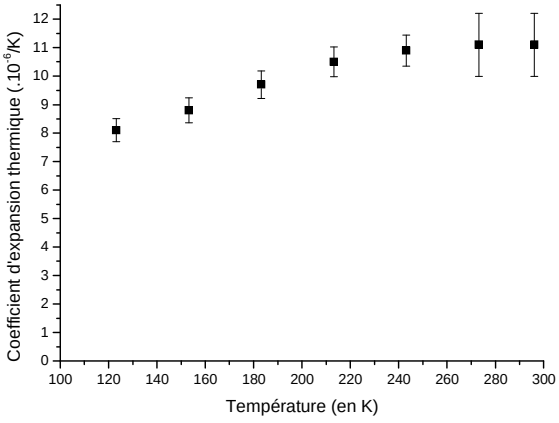


Figure III - 19 : Coefficients d'élongation thermique du verre phosphate dopé 4 at. % néodyme, LHG-8, Hoya, à basse température.

Aucune donnée dans la littérature n'est disponible quant aux valeurs des coefficients de dilatation sur les verres phosphates dopés néodyme à basse température. Cependant, le producteur de verre HOYA donne une valeur de 10^{-7} K^{-1} pour des températures comprises entre 373 et 573 K. Pour une même gamme de température, le coefficient de dilatation est donné à $11{,}2\times10^{-6}$ K^{-1} [LLNL 81].

III.2.4. Conclusion des mesures du coefficient de dilatation à basse température

Cette partie a montré les résultats de mesures des coefficients de dilatation obtenus sur des céramiques sesquioxydes de scandium, d'yttrium et de lutétium dopées ytterbium, sur des cristaux et des céramiques de YAG non dopés et dopés ytterbium, sur des cristaux de CaF_2 non dopé et dopé ytterbium et enfin sur des verres phosphates dopés néodyme. La plage de température des mesures s'étend de 123 à 296 K.

D'une manière générale, pour tous les échantillons étudiés :

- le coefficient d'élongation thermique diminue lorsque la température du matériau diminue,
- le coefficient de dilatation n'a pas un comportement linéaire : nous pouvons retrouver, dans chacun des matériaux étudiés, une concavité de la courbe d'élongation thermique. Dans le cas de certains matériaux, tels que les céramiques de Sc_2O_3, de Lu_2O_3 ou bien encore de YAG, cette concavité se traduit par un aplanissement de la courbe pour des températures proches de la température ambiante.

Du fait que le coefficient d'élongation thermique n'a pas un comportement linéaire lorsque la température du matériau diminue, de nombreux auteurs font un ajustement polynômial d'ordre 3 des points expérimentaux obtenus. Nous constatons que pour un même matériau, même si les valeurs des coefficients polynomiaux sont très différentes entre nos mesures et celles de la littérature, les coefficients de dilatation sont similaires.

De plus, nous avons montré que le taux de dopage en ion ytterbium mais aussi la nature du matériau (céramique/cristal) n'influent pas sur la valeur du coefficient de dilatation. Cette conclusion est en contradiction avec l'article de Xu [Xu 04]. En effet, Xu *et al.* mesurent, à l'aide d'un dilatomètre commercial, le coefficient de dilatation de cristaux Yb:YAG dopés 5, 10 et 25 at. % pour des températures allant de 293 à 773 K. Il a pu remarquer que lorsque le taux de dopage en ion ytterbium augmente, le coefficient de dilatation augmente. Aucune donnée n'est précisée quant aux valeurs exactes des coefficients de dilatation mesurées et des barres d'erreur.

Enfin, une distinction est à noter entre le coefficient d'élongation thermique que nous avons mesuré et le coefficient de dilatation volumique. Les mesures que nous avons proposées tout au long de cette partie correspondent aux mesures du coefficient d'élongation thermique linéaire. La relation entre ces deux coefficients est très simple à mettre en œuvre dans le cas des matériaux à maille cubique. En effet, nous savons que le volume d'un matériau, de forme cubique, est proportionnel à la longueur au cube. Nous pouvons donc écrire :

$$\frac{dV}{V} = 3\frac{dl}{l} \qquad \text{Équation III-14}$$

Le coefficient d'élongation thermique volumique est proportionnel au coefficient de dilatation que nous avons mesuré.

III.3 Mesure du coefficient thermo-optique *dn/dT*

III.3.1. Principe des mesures

L'interféromètre utilisé pour les mesures de variation du chemin optique est de type Mach-Zehnder. La présence de l'échantillon dans l'un des bras de l'interféromètre induit une différence de marche δ, exprimée par :

$$\delta = (n-1)L \qquad \text{Équation III-15}$$

où n est l'indice de réfraction du matériau et L est sa longueur à une température et une longueur d'onde données.

Du fait que l'indice de réfraction ainsi que la longueur du matériau varient avec la température, ce chemin optique varie avec la température de l'échantillon. Cette variation s'exprime selon l'équation III-16 :

$$\frac{d\delta}{dT} = L\frac{dn}{dT} + (n-1)\frac{dL}{dT} \qquad \text{Équation III-16}$$

équivalente à :

$$\frac{d\delta}{dT} = L\left(\frac{dn}{dT} + \frac{n-1}{L}\frac{dL}{dT}\right) \qquad \text{Équation III-17}$$

En considérant que $\frac{1}{L}\frac{dL}{dT} = \alpha$ est le coefficient de dilatation du matériau, nous obtenons :

$$\frac{1}{L}\frac{d\delta}{dT} = \frac{dn}{dT} + (n-1)\alpha \qquad \text{Équation III-18}$$

Le coefficient thermo-optique $\frac{dn}{dT}$ est donc calculé d'après l'expression suivante :

$$\frac{dn}{dT} = \frac{1}{L}\frac{d\delta}{dT} - (n-1)\alpha \qquad \text{Équation III-19}$$

Certaines publications donnent l'expression du coefficient thermo-optique normalisé $\frac{1}{n}\frac{dn}{dT}$:

$$\frac{1}{n}\frac{dn}{dT} = \frac{1}{nL}\frac{d\delta}{dT} - \frac{n-1}{n}\alpha \qquad \text{Équation III-20}$$

D'un point de vue expérimental, la variation de chemin optique en fonction de la température se traduit par une variation de l'interfrange dans le Mach-Zehnder. Il suffit d'enregistrer cette variation pour connaître le coefficient $\frac{d\delta}{dT}$.

Le schéma expérimental de notre montage est représenté sur la figure III-20 :

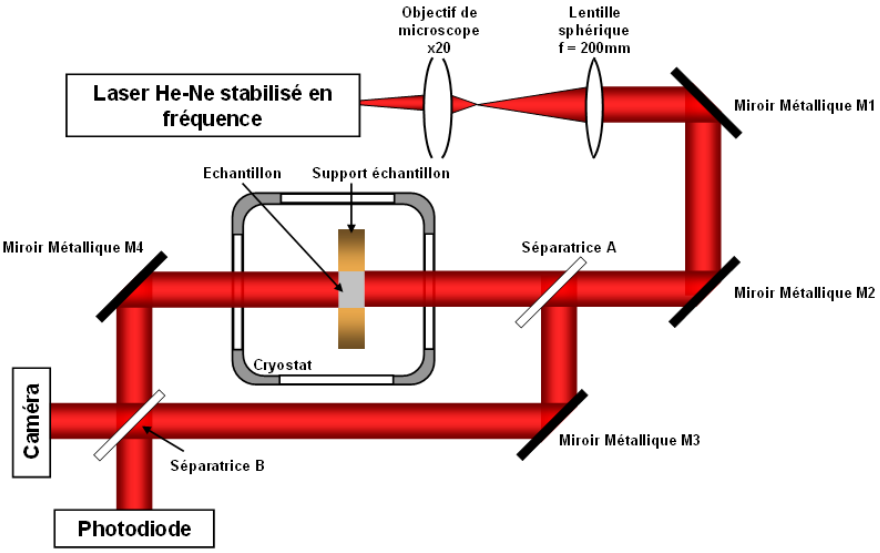


Figure III - 20 : Schéma de l'interféromètre type Mach-Zehnder.

A la sortie d'un faisceau laser He-Ne linéairement polarisé émettant à 632,8 nm, stabilisé en fréquence (Melles Griot, *Single Frequency Laser*, modèle 05-STP-910), un système constitué d'un objectif de microscope et d'une lentille a été mis en place afin d'obtenir un faisceau laser collimaté de 15 mm de diamètre.

La lame séparatrice *A* divise le faisceau laser He-Ne en deux faisceaux perpendiculaires. Un faisceau passe par le miroir métallique *M3* et arrive à la lame séparatrice *B* pour former le faisceau de référence. Le second faisceau, constituant le bras échantillon, traverse la lame séparatrice *A* et l'échantillon placé dans le cryostat. Le faisceau se réfléchit sur le miroir *M4* pour se recombiner avec le faisceau référence sur la lame séparatrice *B*. Cette recombinaison donne naissance aux franges d'interférences.

Ces franges sont mesurées de deux manières différentes :

- L'intensité lumineuse en fonction de la température est détectée par une photodiode. Selon la configuration dans laquelle nous faisons la mesure (configuration de la teinte plate ou du coin d'air), une lentille ou un trou de filtrage est placé devant la photodiode, modèle DT 210, Thorlabs.
- Une caméra CCD (Basler A102f de 1040 x 1392 pixels (6,45 µm)) est placée à la deuxième sortie de l'interféromètre. Elle nous permet d'une part de régler l'interféromètre mais aussi d'enregistrer directement les franges d'interférences et d'en suivre l'évolution.

Le montage a été rendu le plus rigide possible afin que le système de franges de l'interféromètre soit stable. L'évolution lente du système de franges ne doit pas être perturbée par les variations résiduelles de l'interféromètre induites par les vibrations de la pompe à vide du cryostat, et les mouvements d'air de la climatisation de la salle d'expérience.

Les deux figures suivantes représentent d'une part, une photo de notre montage expérimental (Figure III-21), et d'autre part, une photo représentant un des supports échantillons que nous avons utilisés : ce support est fixé sur la tige en cuivre du cryostat (Figure III-22).

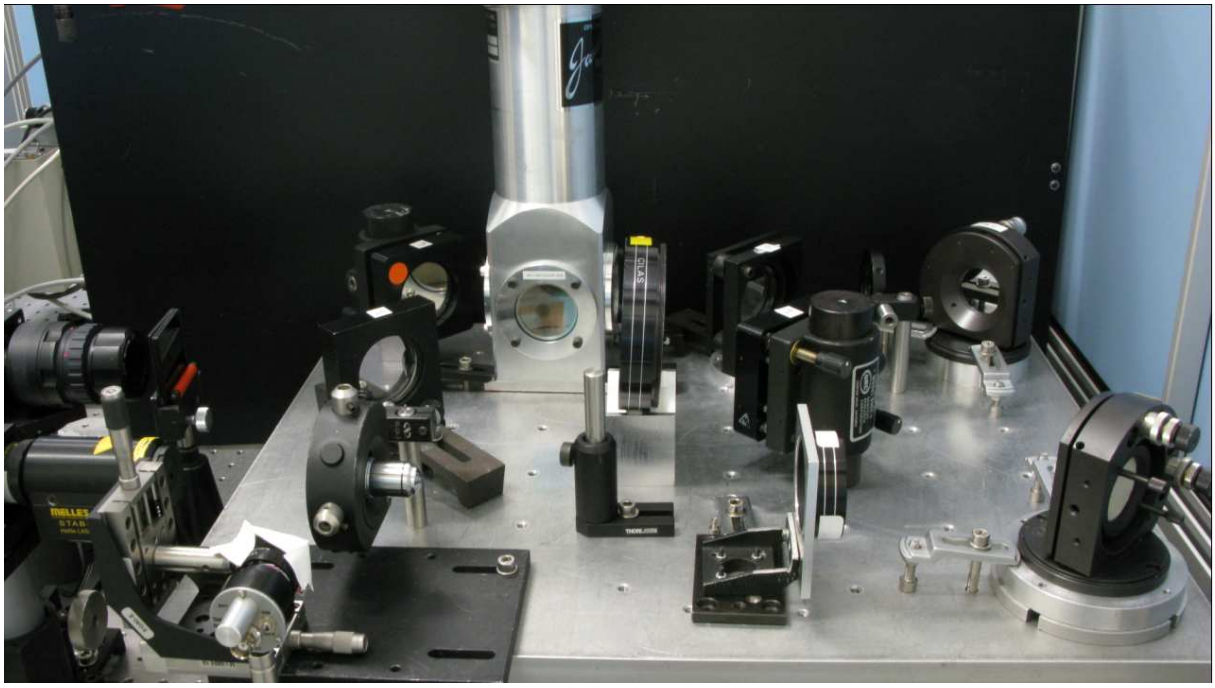


Figure III - 21 : Photo de l'interféromètre type Mach-Zehnder.



Figure III - 22 : Photo du support échantillon en laiton avec un échantillon de verre phosphate dopé néodyme.

A partir de la recombinaison des deux faisceaux de l'interféromètre Mach-Zehnder, il existe deux types de configurations possibles : la configuration en coin d'air (*cas 1*) et la configuration en teinte plate (*cas 2*).

<u>Cas 1</u> : Mesure en coin d'air

Cette mesure correspond à l'obtention de franges d'interférence rectilignes (Figure III-23). Cette image est filtrée par un trou de diamètre 0,4 ou 0,25 mm, placé devant la photodiode, trou nécessaire pour localiser une frange et en suivre son évolution. Le nombre de franges

doit être au minimum supérieur à 2 pour mesurer au moins un interfrange, mais il ne doit pas être trop grand car la dimension de l'interfrange doit être supérieure au diamètre du trou de filtrage.

Suivant que les échantillons sont soient sous forme cylindrique de diamètre 4 mm, soit sous forme parallélépipédique de dimensions 5x5x10 mm^3, nous avons travaillé avec un interfrange compris entre 0,67 mm et 1,18 mm.

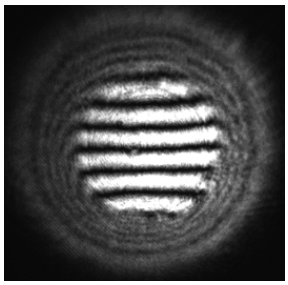


Figure III - 23 : Photo de la figure d'interférence obtenue en configuration du coin d'air dans le cas d'un échantillon cylindrique.

Nous avons évalué l'influence du nombre de franges sur les mesures : toujours en considérant le principe que l'interfrange doit être supérieure au diamètre du trou de filtrage, nous avons réalisé deux mesures différentes sur un même échantillon, avec un nombre de franges d'interférence différent (Cf. § III.3.6.4)

<u>Cas 2</u> : Mesure en teinte plate

La figure III-24 représente une teinte uniforme, qui peut être brillante ou sombre, selon la différence de marche introduite. Le champ est focalisé sur la photodiode à l'aide d'une lentille convergente.

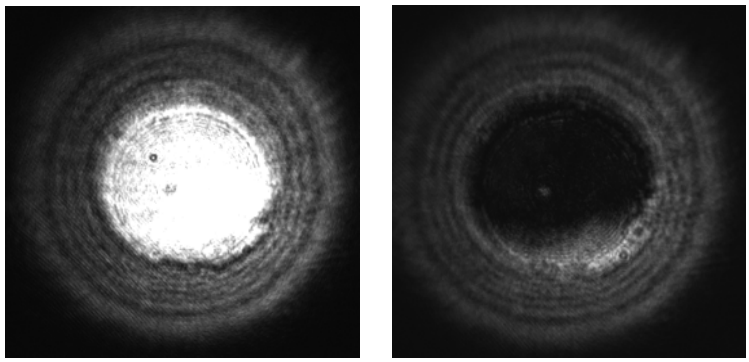


Figure III - 24 : Photo de la figure d'interférence obtenue en configuration de la teinte plate dans le cas d'un échantillon cylindrique.

La mesure en teinte plate peut sembler être moins précise que la mesure en coin d'air. En effet, la photodiode enregistre un signal moyenné de la surface de l'échantillon : on intègre donc les défauts de l'échantillon dans tout son volume. Dans la configuration du coin d'air, le trou de filtrage ne pointe qu'une partie de la figure d'interférence.

Un chapitre sera consacré à l'étude de phénomènes parasites que nous avons observés aux basses températures (Cf. § III.3.6.6) : comparées aux valeurs de la littérature, nous montrerons que les configurations en coin d'air ou en teinte plate donnent exactement les mêmes résultats.

III.3.2. Acquisition et traitement des données

III.3.2.1. Acquisition

Un semi-conducteur en silicium permet de mesurer la température au contact de l'échantillon. Cette sonde reliée à un système de mesure est couplée à une centrale d'acquisition. La photodiode est également reliée à cette même centrale d'acquisition. Cette dernière permet donc de mémoriser à la fois les valeurs de température mais également le signal de l'interféromètre reçu par la photodiode. Pour toutes les acquisitions, nous avons enregistré un point toutes les 10 secondes. Ainsi, pour effectuer une rampe de température allant de 77 K à la température ambiante, la centrale d'acquisition enregistre environ 6000 points de mesures à la fois de la température de l'échantillon et de la tension mesurée par la photodiode. L'enregistrement dure environ 16 heures.

III.3.2.2. Traitement des données

La figure III-25 représente un exemple d'enregistrement, fourni par la centrale d'acquisition, du signal reçu par la photodiode lorsque la température de l'échantillon évolue de 77 à 293 K.

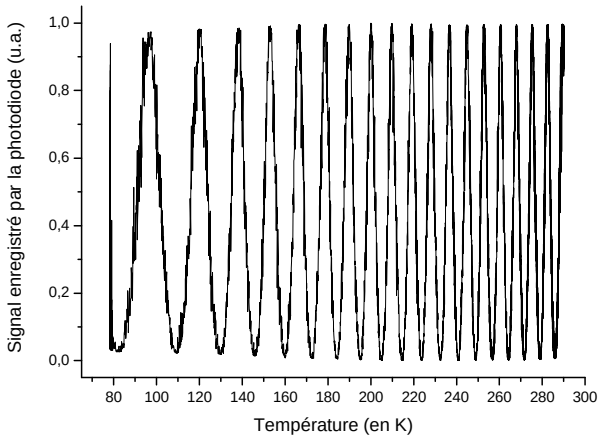


Figure III - 25 : Enregistrement du signal reçu par la photodiode lors d'une mesure sur un échantillon pour une plage de température allant de la température de l'azote liquide à la température ambiante.

Cette figure représente le défilement des franges que l'on observe lorsque la température de l'échantillon passe de 77 à 293 K. Ce défilement des franges est représentatif de la variation

de différence de marche, cette dernière étant reliée à la longueur d'onde de travail de notre système par l'équation :

$$\Delta\delta = k\lambda \qquad \text{Équation III-21}$$

avec k, un nombre entier et λ la longueur d'onde du laser He-Ne, soit 632,8 nm.

Ainsi, nous obtenons, en première approximation :

$$\frac{d\delta}{dT} \approx \frac{\Delta\delta}{\Delta T} = \frac{k\lambda}{\Delta T} \qquad \text{Équation III-22}$$

k représente le défilement de 1, 2 ou 3, … franges brillantes ou sombres. ΔT est quant à lui l'intervalle entre deux températures, correspondant respectivement soit à des maxima (franges brillantes), soit des minima (franges sombres), …

Dans le cadre de nos mesures, les données interférométriques sont enregistrées en fonction de la température de l'échantillon par la centrale d'acquisition. Nous déterminons les températures auxquelles se situent les maximums et les minimums des franges. Une routine Matlab a été mise en place pour calculer la variation de chemin optique δ en fonction de la température, et ceci, pour un, deux et trois défilements de franges.

Par exemple, pour un défilement de frange, les températures où se positionnent les maxima des franges sont notées T_i et T_{i+1}. La variation de chemin optique en fonction de la température s'écrit :

$$\frac{d\delta}{dT} = \frac{\lambda}{T_{i+1} - T_i} = \frac{632{,}8\times10^{-9}}{T_{i+1} - T_i} \qquad \text{Équation III-23}$$

Cette variation de chemin optique est donnée pour une température moyenne T_{moy} telle que :

$$T_{moy} = \frac{T_{i+1} + T_i}{2}$$

Concernant le coefficient de dilatation de l'échantillon, nous utilisons la régression polynômiale calculée à partir des résultats trouvés par le LNE. A partir de cette régression, nous en calculons le coefficient d'élongation thermique correspondant, à la température T_{moy}.

Enfin, le coefficient thermo-optique dn/dT est obtenu en soustrayant ce coefficient d'élongation thermique au coefficient de variation du chemin optique.

Dans certains cas, le coefficient dn/dT peut être négatif. Si nous considérons uniquement la figure du défilement des franges enregistrée sur la photodiode, cette dernière n'est pas suffisante pour nous indiquer le signe de la variation de chemin optique en fonction de la température, et par conséquent, le signe du coefficient thermo-optique. Il est ainsi primordial de déterminer le sens de défilement des franges. Pour chaque matériau étudié, nous avons suivi le protocole expérimental suivant : à température ambiante, nous nous plaçons en configuration de teinte plate. Le miroir, placé derrière le cryostat (Figure III-21) subit une rotation de telle manière à obtenir des franges d'interférence horizontales ; le sens de rotation

de la vis micrométrique placée sur le miroir étant toujours le même. Lors de la descente en température du matériau, il suffit de repérer le sens de défilement des franges d'interférence.

Dans le cas d'un cristal YAG, le coefficient thermo-optique *dn/dT* est positif [Aggarwal 05], ce dernier sert alors de référence. Lors des mesures du coefficient de variation de chemin optique en fonction de la température, nous avons repéré le sens de défilement des franges du cristal YAG.

Lors des mesures avec d'autres matériaux, si les franges défilent en sens inverse, nous en déduisons un coefficient de variation de chemin optique de signe négatif.

III.3.2.3. Précision de la mesure

a. Quelques notions sur l'estimation des incertitudes

D'un point de vue métrologique, au sens où nous l'avons exploitée, l'incertitude est un paramètre non négatif qui caractérise la dispersion des valeurs attribuées à une mesurande. L'incertitude-type, notée *u*, est l'incertitude de mesure exprimée sous la forme d'un écart-type. Pour l'estimation de ce paramètre, il est conseillé de calculer la variance, notée *V*, qui n'est autre que le carré de l'incertitude-type. Cette étape est nécessaire puisqu'elle permet d'évaluer au mieux chacune des variables. Pour des variables indépendantes, un autre avantage de l'estimation de la variance est qu'il existe des lois de propagation simples qui permettent de la calculer. Par exemple, pour deux variables *a* et *b*, nous avons :

- si $y = a + b$ alors $V(y) = u^2(y) = u^2(a) + u^2(b)$, Équation III-24

- de plus, si $y = a * b$ alors $\frac{u^2(y)}{y^2} = \frac{u^2(a)}{a^2} + \frac{u^2(b)}{b^2}$ Équation III-25

Dans ce dernier cas, nous pouvons parler d'incertitude relative.

Enfin, un dernier point important à introduire est la notion d'incertitude élargie *U*, égale à *k* fois l'incertitude type :

$$U = ku$$ Équation III-26

Dans le cas d'une distribution gaussienne, appelée encore loi normale, si le nombre *k* est égal à 2 : la valeur vraie se trouve dans l'intervalle d'incertitude estimé avec un niveau de confiance de 95 %.

b. Incertitude sur le coefficient d'élongation thermique : u_a

Une première source d'incertitude est liée à la mesure du coefficient d'élongation thermique. Comme explicité au paragraphe 2.2, les mesures du LNE sont données avec une précision de ± 10 % pour des températures comprises entre 273 K et 296 K, et de ± 5 % pour des températures inférieures à 273 K. Ainsi, en termes de valeur absolue, l'erreur faite sur le coefficient d'élongation thermique est inférieure à $0{,}5 \times 10^{-6}$ K^{-1} pour des températures d'échantillons inférieures à 273 K, et de ± $0{,}6 \times 10^{-6}$ K^{-1} pour des températures comprises entre

273 et 296 K. Ces incertitudes sont données à *k* égal à 2 (il suffit donc de les diviser par deux pour obtenir l'incertitude type). Le tableau suivant représente les incertitudes-types calculées en fonction de la mesure du coefficient d'élongation thermique *a* pour différentes plages de température :

Plage de température	*Incertitude type* u_a
T < 273 K	0,025x*a(T)*
273 K < T < 296 K	0,05 x*a(T)*

Tableau III - 5 : Incertitude-type calculée en fonction de la valeur du coefficient d'élongation thermique *a* pour différentes plages de températures.

c. Incertitude sur la mesure de la variation du chemin optique en fonction de la température : $u_{\frac{d\delta}{dT}}$

Rappelons l'expression de la variation de chemin optique en fonction de la température que nous considérons (ce paramètre est donné pour un calcul sur un défilement de frange) :

$$\frac{1}{L}\frac{d\delta}{dT} = \frac{1}{L}\frac{\lambda}{\Delta T} \qquad \text{Équation III-27}$$

L'incertitude-relative, ou encore la variance, est calculée suivant l'équation III-28 :

$$\frac{u^2_{\frac{1}{L}\frac{d\delta}{dT}}}{\left(\frac{1}{L}\frac{d\delta}{dT}\right)^2} = \frac{u_L^2}{L^2} + \frac{u^2_{d\delta/dT}}{\left(\frac{d\delta}{dT}\right)^2} \qquad \text{Équation III-28}$$

Facilitons le calcul en analysant chaque terme de l'équation précédente.

En utilisant la propriété relative à l'équation III-25, nous obtenons :

$$\frac{u^2_{d\delta/dT}}{\left(\frac{d\delta}{dT}\right)^2} = \frac{u_\lambda^2}{\lambda^2} + \frac{u^2_{\Delta T}}{(\Delta T)^2} \qquad \text{Équation III-29}$$

Pour le premier terme, il s'agit de l'erreur associée à la mesure de la longueur d'onde du laser. Celle-ci est négligeable.

Le second terme correspond à la précision de la température à laquelle nous avons déterminé la position des minima/maxima des franges. Cette erreur a été estimée à 1,5 K. Deux points sont à prendre en considération :

- La variation de la température ΔT correspond à la différence de température entre deux maxima/minima. L'incertitude associée est donc double. En effet, si nous posons T_1 et T_2, les températures associées aux maxima, nous pouvons noter :

$$\Delta T = T_2 - T_1 \qquad \text{Équation III-30}$$

L'incertitude associée s'écrit par conséquent :

$$u_{\Delta T}^2 = u_{T_1}^2 + u_{T_2}^2 = 2 \times u_T^2 \qquad \text{Équation III-31}$$

- Prenant en considération une loi uniforme, l'incertitude-type associée à un maximum est donnée par :

$$u_T = \frac{1{,}5}{\sqrt{12}} \qquad \text{Équation III-32}$$

$$\frac{u_{d\delta/dT}^2}{\left(\frac{d\delta}{dT}\right)^2} = \frac{u_{\Delta T}^2}{(\Delta T)^2} = 2 \times \frac{(1{,}5)^2}{12} \frac{1}{(\Delta T)^2} \qquad \text{Équation III-33}$$

Considérons à présent, l'incertitude-type sur la valeur de la longueur de l'échantillon. Celle-ci a été mesurée, à température ambiante, en utilisant un pied à coulisse numérique FACOM : le chiffre donné par l'appareil est un chiffre à deux digits en dessous de la virgule. L'erreur de justesse est donnée à ± 30 µm. La vraie valeur de la longueur L de l'échantillon est donc la somme de la longueur mesurée $L_{mesurée}$ par le pied à coulisse et de la justesse C_J :

$$L = L_{mesurée} + C_J \qquad \text{Équation III-34}$$

En considérant une loi statistique uniforme sur la longueur mesurée (sur 10 µm) et sur la valeur de la justesse (sur 60 µm), l'incertitude-type de la variable de la longueur de l'échantillon est donnée par :

$$u_L^2 = u_{L_{mesurée}}^2 + u_{C_J}^2 = \left(\frac{10\mu m}{\sqrt{12}}\right)^2 + \left(\frac{60\mu m}{\sqrt{12}}\right)^2 \approx 3 \times 10^{-10} m^2 \qquad \text{Équation III-35}$$

d. Erreur sur le calcul du coefficient thermo-optique dn/dT : $u_{\frac{dn}{dT}}$

Rappelons l'expression du coefficient thermo-optique *dn/dT* en fonction de la variation de chemin optique et du coefficient d'élongation thermique *a* d'un échantillon de longueur L et d'indice de réfraction n :

$$\frac{dn}{dT} = \frac{1}{L}\frac{d\delta}{dT} - (n-1)\alpha \qquad \text{Équation III-36}$$

L'expression de l'incertitude associée au coefficient *dn/dT* est :

$$u_{\frac{dn}{dT}}^2 = u_{\frac{1}{L}\frac{d\delta}{dT}}^2 + (n-1)^2 u_\alpha^2 + \alpha^2 u_n^2 \qquad \text{Équation III-37}$$

équivalent à :

$$u^2_{\frac{dn}{dT}} = \left(\frac{1}{L}\frac{d\delta}{dT}\right)^2\left(\frac{u^2_L}{L^2} + \frac{u^2_{d\delta/dT}}{\left(\frac{d\delta}{dT}\right)^2}\right) + (n-1)^2 u^2_\alpha + \alpha^2 u^2_n \qquad \text{Équation III-38}$$

u_α représente l'incertitude-type de la mesure du coefficient de dilatation. En se référant aux données du LNE, nous obtenons, pour une erreur de ± 5 % :

$$u_\alpha = 0{,}025\alpha \qquad \text{Équation III-39}$$

u_n correspond à l'incertitude sur la mesure de la valeur de l'indice de réfraction du matériau. La distinction entre mesure et valeur de la littérature est faite : rappelons que des mesures de l'indice de réfraction, à température ambiante de certains échantillons, ont été réalisées en utilisant la technique de l'ellipsométrie spectroscopique. Il s'agit de céramiques d'Y_2O_3 et de YAG non dopées et dopées ytterbium à 10 at. %. L'erreur relative pour cette mesure est évaluée à ± 5 %. Rappelons également que la valeur de l'indice de réfraction d'un matériau dépend de la longueur d'onde. Pour chaque matériau étudié, nous avons pris soin de relever les valeurs de la littérature de l'indice de réfraction à la longueur d'onde de 632,8 nm.

Enfin, nous considérons que nos incertitudes suivent une loi gaussienne, l'incertitude élargie, telle qu'elle a été définie dans l'équation III-26, s'écrit :

$$U_{dn/dT} = 2u_{dn/dT} \qquad \text{Équation III-40}$$

III.3.3. Mesures du coefficient thermo-optique entre 77 K et 293 K

III.3.3.1. Les échantillons

Les échantillons testés sont identiques à ceux utilisés pour les mesures de dilatométrie, à savoir :

- des céramiques sesquioxydes d'yttrium, de lutétium et de scandium dopées ytterbium
- des céramiques de YAG non dopé et dopé ytterbium,
- des cristaux de YAG dopés ytterbium,
- des cristaux de CaF_2 non dopé et dopé en ion ytterbium,
- et enfin, des verres phosphates dopés néodyme.

Les faces des échantillons sont polies. Ils sont maintenus par des supports échantillons en cuivre ou en laiton. Ces supports ont été spécialement conçus pour assurer un bon contact de l'échantillon. Une feuille d'indium d'épaisseur 125 µm a été également mise en place entre le support échantillon et l'échantillon pour assurer un bon contact thermique sur la périphérie de l'échantillon.

Le système « échantillon - support échantillon » est préalablement mis à la température de l'azote liquide, puis il se relaxe durant toute une nuit pour atteindre la température ambiante. La rampe de température que subit l'échantillon est de 0,1 K/min. Les mesures se font de nuit ; de ce fait, le montage Mach Zehnder ne subit aucune perturbation externe (absence de lumière dans la salle, absence de vibration de la table d'expérience, …).

III.3.3.2. Résultats de mesures sur des céramiques sesquioxydes Y_2O_3, Lu_2O_3 et Sc_2O_3 dopés ytterbium

Les mesures interférométriques ont été menées sur des céramiques Yb : Sc_2O_3 et Yb :Lu_2O_3 dopées 1 at. %. Ces échantillons sont des cylindres de diamètre 4 mm et d'épaisseur 3 mm. Concernant les échantillons Yb : Y_2O_3 dopés 10 at. %, nous avons testé deux céramiques venant de deux frittages différents : un parallélépipède de dimensions 5x5x10 mm^3 et un cylindre de diamètre 4 mm et d'épaisseur 6 mm.

Les figures III-26, III-27, et III-28 représentent, respectivement, les résultats de mesures obtenus sur des céramiques Yb : Sc_2O_3 dopée 1 at. %, Yb : Lu_2O_3 dopée 1 at. %, et Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. % en configuration de teinte plate. Pour l'yttrium, nous avons montré les résultats obtenus pour une céramique non dopée et dopée en ion ytterbium mais également les résultats obtenus pour les céramiques provenant des deux frittages différents (échantillons parallélépipédique et cylindrique).

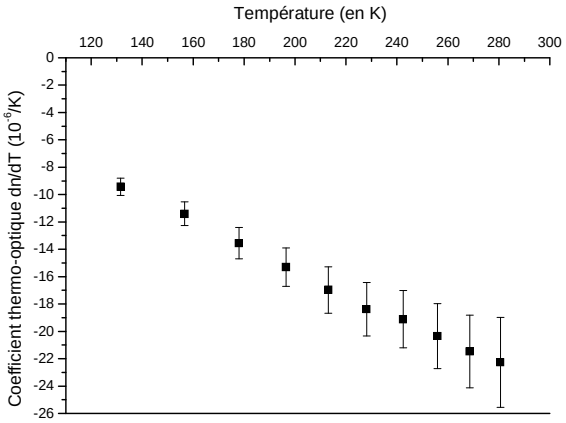


Figure III - 26 : Coefficient thermo-optique d'une céramique Yb :Sc_2O_3 dopée 1 at. %, diamètre 4 mm et épaisseur 3 mm, d'indice de réfraction de 1,85 à la longueur d'onde de 632,8 nm.

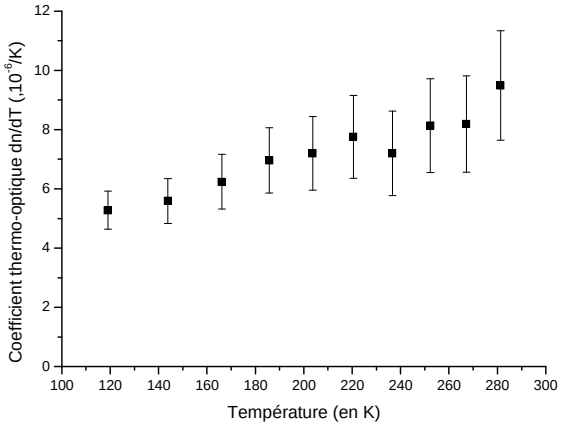


Figure III - 27 : Coefficient thermo-optique d'une céramique Yb :Lu_2O_3 dopée 1 at. %, diamètre 4 mm et épaisseur 3 mm, d'indice de réfraction de 1,85 à la longueur d'onde de 632,8 nm.

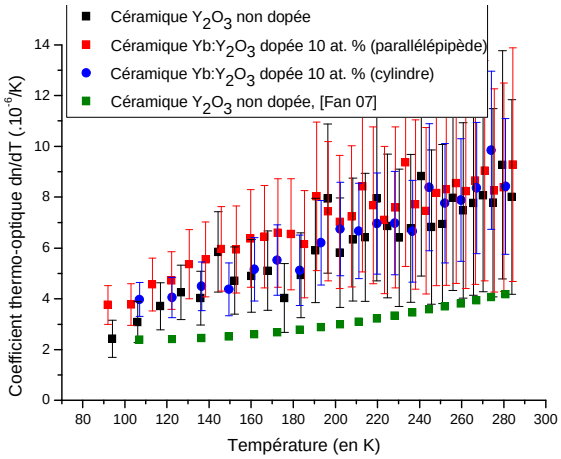


Figure III - 28 : Coefficients thermo-optiques de céramiques Y_2O_3 non dopée et dopées 10 at. %, échantillons parallélépipédiques d'épaisseur 9,86 mm et cylindrique d'épaisseur 6,36 mm, d'indice de réfraction de 1,89 à la longueur d'onde de 632,8 nm.

Que ce soit pour les matériaux lasers Yb : Lu_2O_3 et Yb : Sc_2O_3 dopés 1 at. %, et Y_2O_3 non dopés et dopés ytterbium à 10 at. %, nous pouvons remarquer que lorsque la température de l'échantillon diminue, la valeur absolue du coefficient thermo-optique *dn/dT* diminue. Nous pouvons également remarquer que le coefficient thermo-optique de la céramique Yb : Sc_2O_3 dopée 1 at. % est négatif.

Aucune donnée concernant les sesquioxydes de scandium et de lutétium ne se trouvent dans la littérature, que ce soit à température ambiante ou pour les basses températures.

Concernant les céramiques Y_2O_3, deux points sont à noter.

Nous avons testé deux céramiques provenant de deux frittages différents (points rouges et bleus de la figure III-28). Compte tenu des barres d'erreur, aucune différence significative entre les valeurs des coefficients thermo-optiques n'est à noter. De la même manière, si nous comparons les valeurs expérimentales obtenues pour des céramiques non dopée et dopées

10 at. %, elles sont quasiment identiques : le taux de dopage en ion ytterbium n'influe pas sur les valeurs des coefficients thermo-optiques.

Pour en déduire les valeurs du coefficient thermo-optique *dn/dT*, Fan a mesuré le coefficient de dilatation et le coefficient de variation de chemin optique par des méthodes interférométriques à la longueur d'onde de 1064 nm, sur une céramique Y_2O_3 non dopée [Fan 07]. Ainsi, à 280 et 90 K, ils mesurent respectivement, un coefficient thermo-optique de $5{,}74\times10^{-6}$ K^{-1} et de $2{,}39\times10^{-6}$ K^{-1}. L'erreur est estimée entre ± 0,4 x 10^{-6} et ± 0,7 x 10^{-6}. Pour une céramique Y_2O_3 non dopée, et à des températures identiques, nous trouvons un coefficient *dn/dT* respectivement de (8,01 ± 3,83) x 10^{-6} K^{-1} et (2,43 ± 0,8) x 10^{-6} K^{-1}. Nos valeurs expérimentales sont supérieures aux valeurs trouvées par Fan (à 30 % pour 280 K et de 2 % pour 90 K). Cette différence peut s'expliquer par la différence du choix de la longueur d'onde de travail, l'indice de réfraction dépendant de ce paramètre (rappelons que nos mesures ont été réalisées à la longueur d'onde de 633 nm).

De la même manière que nous l'avons fait pour les résultats des mesures du coefficient d'élongation thermique par le LNE, nous avons calculé les régressions polynômiales pour chacune des courbes. Les résultats sont résumés dans le tableau III-6.

	dn/dT Yb : Sc_2O_3 1 at. %	*dn/dT* Yb : Lu_2O_3 1 at. %
a (en K^{-1})	$-3{,}85713\times10^{-6}$	$-6{,}61916\times10^{-6}$
b (en K^{-2})	$2{,}01107\times10^{-8}$	$1{,}76866\times10^{-7}$
c (en K^{-3})	$-6{,}17189\times10^{-10}$	$-8{,}28422\times10^{-10}$
d (en K^{-4})	$1{,}11372\times10^{-12}$	$1{,}41987\times10^{-12}$

	dn/dT Y_2O_3 non dopé	*dn/dT* Yb : Y_2O_3 10 at. % (Parallélépipède)	*dn/dT* Yb : Y_2O_3 10 at. % (Cylindre)	*dn/dT* Y_2O_3 non dopé [Fan 07]
a (en K^{-1})	$-2{,}77217\times10^{-6}$	$-3{,}01938\times10^{-6}$	$4{,}94506\times10^{-6}$	4,0719
b (en K^{-2})	$7{,}42343\times10^{-7}$	$9{,}3882\times10^{-8}$	$-3{,}7176\times10^{-8}$	-0,038973
c (en K^{-3})	$-2{,}03409\times10^{-10}$	$-2{,}77223\times10^{-10}$	$3{,}00278\times10^{-10}$	$2{,}5755\times10^{-4}$
d (en K^{-4})	$2{,}84638\times10^{-13}$	$3{,}29028\times10^{-13}$	$-4{,}16109\times10^{-13}$	$-3{,}51\times10^{-7}$

Tableau III - 6 : Coefficients des régressions polynômiales obtenues sur les valeurs expérimentales des coefficients thermo-optiques *dn/dT* de céramiques Yb : Lu_2O_3 et Yb : Sc_2O_3 dopées 1 at.% et de céramiques Y_2O_3 non dopée et dopées en ion ytterbium à 10 at. %.

III.3.3.3. Résultats de nos mesures sur des échantillons de YAG dopés ytterbium

Des échantillons de YAG ont été mesurés sous forme de céramiques et de cristaux avec différents taux de dopage en ion ytterbium.

Etudions dans un premier temps le cas des cristaux. Nous avons testé, en configuration de la teinte plate, des cristaux Yb : YAG dopés 1, 5 et 10 at. %, d'indice de réfraction égal à 1,82 et d'épaisseur respectivement de 5,93 mm, 5,92 mm et 5,91 mm. Nous avons comparé nos valeurs expérimentales aux valeurs de la littérature proposées par Aggarwal *et al.* [Aggarwal 05]. Ces dernières sont issues de mesures interférométriques à une longueur d'onde de 1064 nm sur un cristal YAG non dopé. Les résultats sont regroupés dans la figure III-29 :

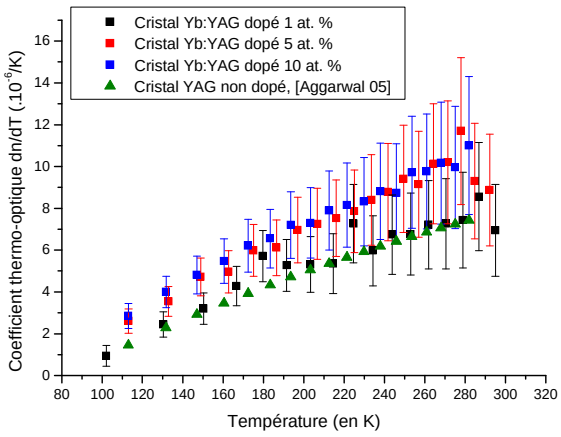


Figure III - 29 : Coefficients thermo-optiques de cristaux Yb : YAG dopés 1, 5 et 10 at. %, d'indice de réfraction de 1,82 à la longueur d'onde de 632,8 nm.

Concernant les valeurs du coefficient thermo-optique mesurées pour un cristal Yb : YAG dopé 5 at. %, aucune mesure de dilatométrie n'a été faite sur cet échantillon. Nous avons donc utilisé la régression polynômiale calculée pour un cristal Yb : YAG dopé 10 at. %.

Tout d'abord, nous pouvons noter que pour chaque matériau étudié, les valeurs des coefficients thermo-optiques diminuent avec la température. Notons aussi que les valeurs expérimentales obtenues pour des cristaux Yb : YAG dopés 5 et 10 at. % sont très semblables alors que celles obtenues pour un cristal Yb : YAG dopé 1 at. % sont légèrement inférieures. Toutefois, ces dernières sont très proches des valeurs mesurées par Aggarwal *et al.* [Aggarwal 05]. De la même manière que pour les céramiques Y_2O_3, le taux de dopage en ion ytterbium n'a pas d'influence notable sur les valeurs expérimentales.

Ainsi, à température ambiante, Aggarwal *et al.* mesurent un coefficient thermo-optique de $7{,}8 \times 10^{-6}$ K^{-1}, avec une erreur de mesure comprise entre ± 0,4 x 10^{-6} et ± 0,7 x 10^{-6}. Dans notre cas, pour un cristal Yb : YAG dopé 1 at. %, à température ambiante, nous trouvons un coefficient thermo-optique de (6,94 ± 2,19) x 10^{-6} K^{-1}. Pour des températures cryogéniques, de l'ordre de 100 K, Aggarwal *et al.* mesurent un coefficient *dn/dT* de $0{,}9 \times 10^{-6}$ K^{-1}. Comparée à notre valeur expérimentale de (0,94 ± 0,5) x10^{-6} K^{-1}, nous pouvons en conclure que nos valeurs expérimentales sont en accord avec celles trouvées par Aggarwal.

Wynne *et al.* et Fan *et al.* ont également mesuré le coefficient thermo-optique d'un cristal YAG non dopé par une méthode interférométrique (observation de franges de Fizeau) à la longueur d'onde de 633 nm [Wynne 99], [Fan 98]. Pour des températures voisines de 100 K, ils mesurent respectivement un coefficient thermo-optique de (1 ± 0,7) x 10^{-6} K^{-1} et (1,5 ± 0,2) x10^{-6} K^{-1}. Rappelons qu'à cette température, nous calculons un coefficient *dn/dT* de (0,94 ± 0,5) x 10^{-6} K^{-1}. Nos valeurs expérimentales sont en bon accord avec celles trouvées par Fan et Wynne.

Les coefficients obtenus par les régressions polynômiales faites sur nos valeurs expérimentales sont regroupés dans le tableau III-7 :

	dn/dT Yb:YAG 1 at. %	*dn/dT* Yb:YAG 5 at. %	*dn/dT* Yb:YAG 10 at. %	*dn/dT* YAG non dopé [Aggarwal 05]
a (en K^{-1})	$-7{,}57278\times10^{-6}$	$7{,}31313\times10^{-6}$	$-1{,}06416\times10^{-5}$	-3,946
b (en K^{-2})	$1{,}03729\times10^{-7}$	$-1{,}30049\times10^{-7}$	$1{,}79697\times10^{-7}$	0,05294
c (en K^{-3})	$-2{,}19909\times10^{-10}$	$1{,}00698\times10^{-9}$	$-6{,}51358\times10^{-10}$	$-4{,}5605\times10^{-5}$
d (en K^{-4})	$1{,}46861\times10^{-13}$	$-1{,}82047\times10^{-12}$	$1{,}00385\times10^{-12}$	

Tableau III - 7 : Coefficients des régressions polynômiales obtenues sur les valeurs expérimentales des coefficients thermo-optiques *dn/dT* de cristaux Yb :YAG dopés 1, 5 et 10 at.%.

Analysons dans un second temps, les mesures réalisées sur des céramiques YAG non dopée et dopées en ion ytterbium à 10 et 20 at.% et respectivement d'épaisseur 10,05 mm, 10,06 mm et 6,46 mm. Les indices de réfraction ont été mesurés à température ambiante par la méthode de l'ellipsométrie spectroscopique : pour une céramique non dopée, nous avons mesuré une valeur d'indice de 1,82 à 632,8 nm. La figure III-30 regroupe les différents résultats obtenus :

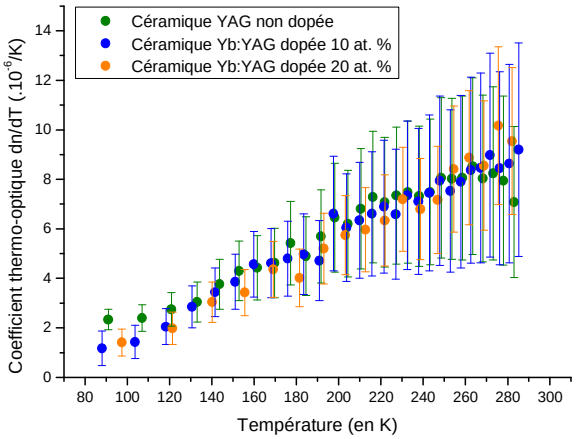


Figure III - 30 : Coefficients thermo-optiques de céramiques Yb :YAG non dopée et dopées 10 et 20 at. %, d'indice de réfraction de 1,82 à la longueur d'onde de 632,8 nm.

Outre le fait que pour chacun des matériaux, le coefficient thermo-optique diminue lorsque la température de l'échantillon diminue, les différents résultats expérimentaux montrent très clairement que le taux de dopage en ion ytterbium n'influe pas sur les valeurs des coefficients thermo-optiques. Les coefficients des régressions polynômiales calculées sur nos valeurs expérimentales sont regroupés dans le tableau III-8 :

	dn/dT YAG non dopé	*dn/dT* Yb:YAG 10 at. %	*dn/dT* Yb:YAG 20 at. %
a (en K^{-1})	$9{,}3481\times10^{-6}$	$-3{,}19001\times10^{-6}$	$-2{,}88078\times10^{-6}$
b (en K^{-2})	$-1{,}7046\times10^{-7}$	$4{,}63904\times10^{-8}$	$5{,}2336\times10^{-8}$
c (en K^{-3})	$1{,}24004\times10^{-9}$	$1{,}21835\times10^{-11}$	$-1{,}3128\times10^{-10}$
d (en K^{-4})	$-2{,}32495\times10^{-12}$	$-8{,}78365\times10^{-14}$	$3{,}76382\times10^{-13}$

Tableau III - 8 : Coefficients des régressions polynômiales obtenues sur les valeurs expérimentales des coefficients thermo-optiques *dn/dT* de cristaux Yb :YAG dopés 1, 5 et 10 at.%.

Comparons à présent, la nature même du matériau. Il est intéressant de voir si la nature du matériau, que ce soit une céramique ou un cristal, influe ou non sur les valeurs des coefficients *dn/dT*. La figure III-31 regroupe les valeurs obtenues avec des échantillons Yb :YAG dopés 10 at. %, sous forme cristalline (points rouges) et céramique (points noirs).

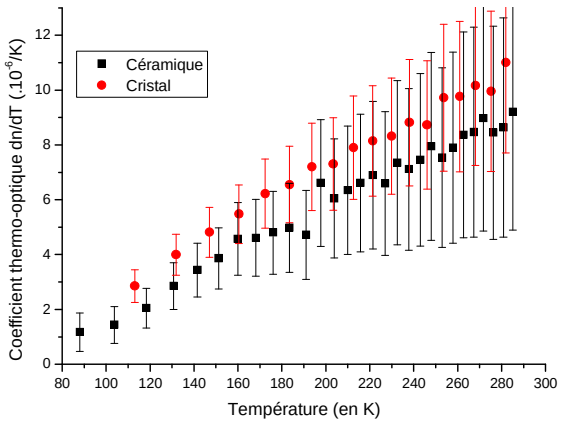


Figure III - 31 : Comparaison entre les coefficients thermo-optiques d'une céramique et d'un cristal Yb :YAG dopés 10 at. %, d'indice de réfraction de 1,82 à la longueur d'onde de 632,8 nm.

Pour des températures comprises entre 80 et 200 K, la céramique Yb :YAG a des coefficients thermo-optiques légèrement inférieurs à ceux d'un cristal. A partir de 200 K, cette distinction n'est plus à prendre en considération.

III.3.3.4. Résultats de nos mesures sur des cristaux CaF_2 non dopé et dopé

Des mesures sur des cristaux de fluorure de calcium CaF_2 non dopé et dopé en ion ytterbium à 3 at. % ont également été réalisées (Figure III-32). Nous avons également représenté les valeurs de coefficient thermo-optique de cristaux CaF_2 non dopé données par Corning, pour la longueur d'onde de 633 nm [Corning].

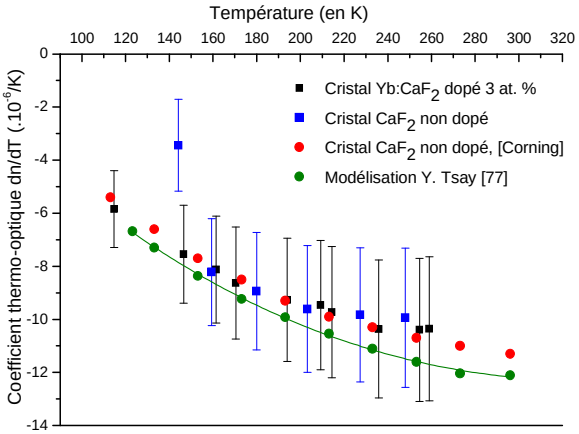


Figure III - 32 : Coefficients thermo-optiques de cristaux CaF_2 non dopé et dopé à 3 at. %, d'épaisseurs 6,1 mm et d'indice de réfraction de 1,43 à la longueur d'onde de 632,8 nm.

Comme pour la céramique Yb : Sc_2O_3 dopée 1 at. %, le coefficient thermo-optique de CaF_2 est négatif. De plus, le comportement de ce paramètre est identique à celui observé pour les autres matériaux : la valeur absolue du coefficient *dn/dT* diminue lorsque la température du matériau baisse.

Le tableau III-9 représente les coefficients polynomiaux que nous avons obtenus pour une régression à l'ordre 3 des valeurs expérimentales du coefficient thermo-optique de cristaux de CaF_2 non dopé et dopé ytterbium à 3 at. %

	dn/dT CaF_2 non dopé	*dn/dT* Yb:CaF_2 3 at. %
a (en K^{-1})	$8{,}68635\times10^{-6}$	$4{,}67445\times10^{-6}$
b (en K^{-2})	$-1{,}80504\times10^{-7}$	$-1{,}27368\times10^{-8}$
c (en K^{-3})	$5{,}43083\times10^{-9}$	$3{,}4523\times10^{-11}$
d (en K^{-4})	$-4{,}76076\times10^{-12}$	$-3{,}03841\times10^{-14}$

Tableau III - 9 : Coefficients des régressions polynômiales obtenues sur les valeurs expérimentales des coefficients thermo-optiques *dn/dT* de cristaux CaF_2 non dopé et dopé ytterbium 3 at.%.

Harris *et al.* utilisent l'interférométrie de Fizeau pour mesurer le coefficient *dn/dT* de monocristaux CaF_2 pour différentes longueurs d'onde [Harris 77]. Ainsi à 633 nm, et à température ambiante, ils donnent une valeur de $-13{,}1\times10^{-5}$ K^{-1}. En utilisant la même méthode de mesure que Harris et *al.*, pour un monocristal CaF_2 à température ambiante, Lallemand *et al.* mesurent un coefficient *dn/dT* de $(-10{,}2 \pm 0{,}5)\times10^{-6}$ K^{-1} à 633 nm [Lallemand 82]. Pour la même longueur d'onde, Corning donne des valeurs de $-10{,}7\times10^{-6}$ K^{-1} et de $-8{,}5\times10^{-6}$ K^{-1} respectivement à 253 K et 173 K [Corning]. Enfin, Levinton *et al.* ont mesuré, à l'aide du système CHARMS (Cf. § III.1.2.1), les valeurs du coefficient thermo-optique *dn/dT* du CaF_2 monocristallin à des températures cryogéniques et pour différentes longueurs d'onde. Pour une longueur d'onde de 0,6 µm, ils mesurent des valeurs de -10×10^{-6} K^{-1} et $-8{,}1\times10^{-6}$ K^{-1} respectivement à 250 K et 150 K [Levinton]. Ces valeurs expérimentales sont très proches de celles données par Corning.

Lors de nos mesures, pour un monocristal non dopé, nous trouvons les valeurs de $(-9{,}93 \pm 2{,}62)\times10^{-6}$ K^{-1} à 250 K et $(-8{,}94 \pm 2{,}21)\times10^{-6}$ K^{-1} à 180 K. En comparaison avec les valeurs données par Corning, nos valeurs expérimentales sont similaires à 7 % près. Nos valeurs expérimentales sont comparables avec celles mesurées par Levinton *et al.* avec un écart maximal d'environ 7 %.

Tsay *et al.* ont mesuré le coefficient thermo-optique *dn/dT* d'un monocristal de CaF_2 pour des températures comprises entre 95 et 360 K par une méthode interférométrique. Ils proposent un modèle permettant de calculer les coefficients *dn/dT* en fonction des valeurs du coefficient de dilatation *a* selon la relation [Tsay 77] :

$$\frac{dn}{dT} = -0{,}624\alpha(T) \qquad \text{Équation III-41}$$

Ainsi, Tsay *et al.* montrent que la valeur estimée du coefficient *dn/dT*, pour une température de 310 K est de $-12{,}7\times10^{-6}$ K^{-1} et est proche de leur valeur expérimentale, mesurée à cette même température de $-11{,}8\times10^{-6}$ K^{-1}.

Nous avons utilisé cette approche afin de voir si le modèle proposé par Tsay *et al.* est en concordance avec nos valeurs expérimentales. Nous avons utilisé les valeurs expérimentales du coefficient de dilatation mesurées par le LNE pour des températures allant de 123 K jusqu'à température ambiante. A chacune de ces valeurs, nous avons appliqué la formule de Tsay : les valeurs calculées sont représentées par les points verts de la figure III-32 : nos valeurs expérimentales sont légèrement supérieures, au maximum à 7 %, à celles du modèle de Tsay.

III.3.3.5. Résultats de mesures sur un échantillon de verre phosphate dopé néodyme

Considérons à présent le cas d'un verre phosphate dopé 4 at. % néodyme. Peu de données sont présentes dans la littérature, tout particulièrement à basse température. Ce verre est constitué à 63 % de P_2O_5, 14 % de BaO, de 12% de K_2O, 7 % de Al_2O_3 et de 4 % de Nd_2O_3/Nd_2O_5. Son indice de réfraction est de 1,52. La figure III-33 illustre les résultats expérimentaux obtenus en configuration de teinte plate.

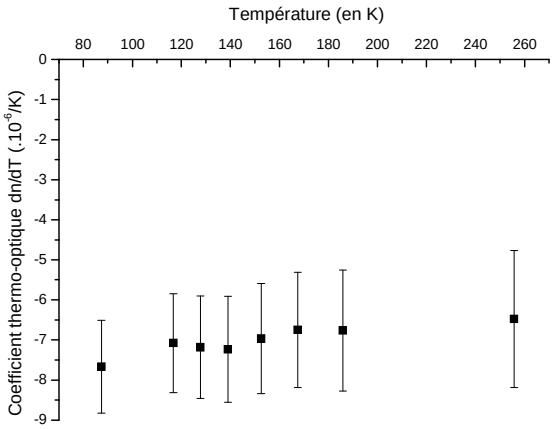


Figure III - 33 : Coefficient thermo-optique de verre phosphate dopé néodyme, d'épaisseur 10,06 mm et d'indice de réfraction de 1,52 à la longueur d'onde de 632,8 nm.

Le tableau III-10 représente les coefficients polynomiaux que nous avons obtenus pour une régression à l'ordre 3 des valeurs expérimentales du coefficient thermo-optique de verres phosphates dopés néodyme :

	dn/dT Verre phosphate dopé Nd^{3+}
a (en K^{-1})	$-9{,}61049\times10^{-6}$
b (en K^{-2})	$3{,}19814\times10^{-8}$
c (en K^{-3})	$-1{,}22121\times10^{-10}$
d (en K^{-4})	$1{,}76021\times10^{-13}$

Tableau III - 10 : Coefficients des régressions polynômiales obtenues sur les valeurs expérimentales des coefficients thermo-optiques *dn/dT* du verre phosphate dopé néodyme.

Comme pour le sesquioxyde de scandium et le fluorure de calcium, le coefficient thermo-optique du verre phosphate dopé néodyme est négatif. Cependant, l'évolution du coefficient *dn/dT* de ce matériau n'est pas significative : aucune diminution ou augmentation n'est clairement observée en fonction de la température.

L'unique valeur du coefficient *dn/dT* trouvée dans la littérature est donnée à $-5{,}3 \times 10^{-6}$ K^{-1}, à température ambiante [LLNL 81], [Campbell 11]. En la comparant à notre valeur expérimentale de $(-6{,}47 \pm 1{,}7) \times 10^{-6}$ K^{-1}, à une température de 255 K, nous pouvons considérer que nous sommes en accord avec la valeur de la littérature, malgré l'absence notable de barre d'erreur dans l'expression de cette dernière.

III.3.3.6. Conclusion des mesures du coefficient dn/dT

D'un point de vue général, le coefficient thermo-optique *dn/dT* de céramiques sesquioxydes d'yttrium, de lutétium, de YAG, et de monocristaux de YAG non dopés et dopés en ion ytterbium diminue lorsque la température du matériau diminue.

Nous avons également montré que le coefficient *dn/dT* est négatif pour une céramique de scandium, des monocristaux de CaF_2 et du verre phosphate dopé néodyme. Dans ce cas particulier, ce qui importe n'est pas la valeur réelle mais la valeur absolue de ces coefficients : ces valeurs diminuent avec la température. En effet, si nous reprenons par exemple l'expression du facteur de mérite R_f représentatif de la focale thermique créée dans un milieu amplificateur, le coefficient thermo-optique intervient au dénominateur. En considérant une valeur de *dn/dT* de signe négatif, l'expression de R_f n'aurait aucun sens.

Les données de la littérature étant quasiment inexistantes, l'utilisation d'échantillons de YAG et Y_2O_3 nous a permis de valider notre montage expérimental (nos valeurs expérimentales étant similaires à celles de la bibliographie).

III.3.4. Sources d'incertitude

Dans cette partie, nous nous proposons d'étudier les différentes sources d'incertitudes pouvant intervenir dans notre montage expérimental ou nos calculs. Nous illustrerons chaque cas en prenant pour exemple les résultats obtenus sur une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. %.

III.3.4.1. Approximation du premier ordre dans le calcul du coefficient dn/dT

Dans le calcul du coefficient thermo-optique *dn/dT*, le coefficient de dilatation est multiplié par un facteur dépendant de l'indice de réfraction du matériau. Lorsque la température diminue, nous ne connaissons pas les valeurs de cet indice.

Une première approche est d'exprimer l'indice de réfraction du matériau pour une variation de température :

$$n(T+\Delta T) = n(T) + \frac{dn}{dT}\Delta T \qquad \text{Équation III-42}$$

En considérant une plage de température comprise entre 293 K et 77 K, l'équation III-42 est équivalente à :

$$n(293K) = n(77K) + \frac{dn}{dT} \times 216 \qquad \text{Équation III-43}$$

D'après la littérature, nous nous attendons à obtenir un coefficient *dn/dT* proche de 10^{-6} K^{-1}. En reprenant le calcul précédent, nous obtenons :

$$n(293K) = n(77K) + 216 \times 10^{-6} \approx n(77K) + 2 \times 10^{-4} \approx n(77K) \qquad \text{Équation III-44}$$

A $2x10^{-4}$ près, nous pouvons considérer que l'indice de réfraction du matériau à température ambiante est le même qu'à la température de l'azote liquide.

III.3.4.2. Influence des fenêtres de la cellule

Rappelons que l'enceinte dans laquelle se trouve l'échantillon est un cryostat mis sous vide. Il y a peu d'échange thermique entre l'échantillon et les hublots : les seuls échanges ne pourraient avoir lieu que par rayonnement. Les fenêtres du cryostat sont en silice (diamètre 50,4 mm et épaisseur 2 mm) et sont traversées chacune une fois par le faisceau laser. Toute variation de leur température produit une variation de leur épaisseur optique et provoque ainsi une variation du chemin optique du bras échantillon. Il est donc indispensable de connaître les propriétés thermomécaniques du matériau qui les constituent mais aussi de connaître leur comportement lors de la mesure.

La silice fondue est un matériau généralement utilisé pour son isotropie et sa transparence. Ses propriétés sont résumées dans le tableau III-11 :

Propriétés thermomécaniques	***Valeurs***
Indice de réfraction	1,45 à 650 nm
Conductivité thermique (en W/m.K)	1,38
Chaleur spécifique (en J/g.K)	0,743
Coefficient de dilatation *a* (en K^{-1})	$5,5x10^{-7}$
Coefficient thermo-optique *dn/dT* (en K^{-1})	10^{-5}
Coefficient de variation du chemin optique (en m/K)	$10,5x10^{-6}$

Tableau III - 11 : Propriétés thermomécaniques de la silice fondue.

Pour estimer l'influence des fenêtres du cryostat lors d'une mesure, à l'aide de thermocouples de type T, les températures à l'intérieur et à l'extérieur des hublots, en faces avant et arrière du cryostat ont été mesurées (Figure III-34).

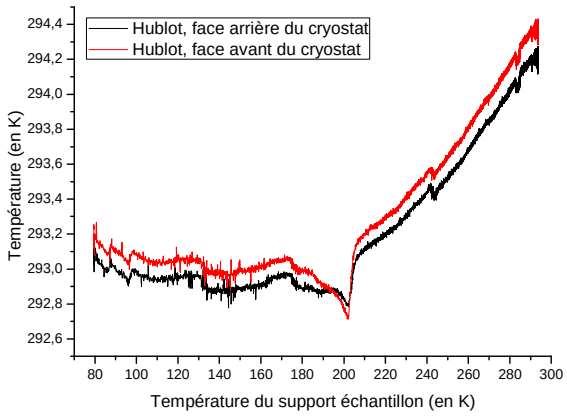


Figure III - 34 : Température à l'intérieur des hublots en fonction de la température du support échantillon, mesure en montée en température.

Remarque :

Nous pouvons noter que l'élévation de température du hublot face arrière est moins importante que celle en face avant. Cette différence s'explique par le fait que le support échantillon est plus proche du hublot en face avant (20 mm) que du hublot en face arrière (60 mm).

Pour des températures du support échantillon comprises entre 77 K et 296 K, les fenêtres en silice subissent au maximum une variation de température de 1,7 K. La variation de chemin optique introduite par l'échauffement des fenêtres durant une expérience est calculée suivant l'expression :

$$\frac{d\delta}{dT} = \frac{k\lambda}{\Delta T} \qquad \text{Équation III-45}$$

avec, *k* représentant le nombre de franges dû à l'échauffement des fenêtres, et $\frac{d\delta}{dT}$ représente la variation de chemin optique de la silice en fonction de la température.

Rappelons que le chemin optique s'écrit :

$$\delta = (n-1)L \qquad \text{Équation III-46}$$

d'où en dérivant par rapport à la température, nous obtenons :

$$\frac{d\delta}{dT} = \left[\frac{dn}{dT} + (n-1)\alpha\right]L \qquad \text{Équation III-47}$$

En introduisant l'expression de la variation de chemin optique en fonction de la température, nous obtenons :

$$dk = \frac{d\delta}{\lambda} = \left[\frac{dn}{dT} + (n-1)\alpha\right]\frac{LdT}{\lambda} \qquad \text{Équation III-48}$$

En reprenant les valeurs des propriétés thermomécaniques de la silice, l'équation III-48 est équivalente à :

$$dk = 0{,}11012 \qquad \text{Équation III-49}$$

Autrement dit, sur un déplacement d'une frange, nous faisons une erreur d'environ 0,1 frange. Puisque ce décalage s'opère sur N franges, entre la température initiale et la température finale, l'erreur est de $1/(0{,}1 \times N)$ frange.

III.3.4.3. Stabilité de l'interféromètre

L'interféromètre Mach-Zehnder a été placé sur une plaque en aluminium, elle-même placée sur une table optique en nid d'abeille. Le tout est placé dans une salle climatisée à 293 K. Pour s'affranchir au maximum des courants d'air, nous avons protégé le haut de la table optique par un film plastique.

Nous avons également mesuré les températures du bras de référence et du bras échantillon lors d'une mesure. Nous avons placé deux thermocouples type K, fixés sur la table à l'aide d'un adhésif. La différence de température entre les deux bras en fonction de la température du support échantillon est représentée sur la figure III-35 :

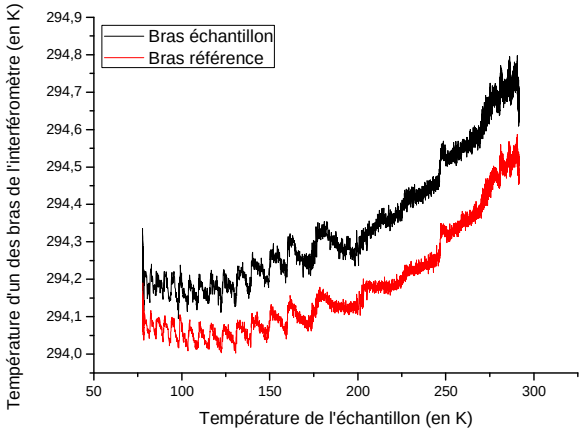


Figure III - 35 : Températures des deux bras de l'interféromètre en fonction de la température du support échantillon, mesure en montée en température.

Si nous considérons une variation de longueur dl du bras de référence, cette dernière s'exprime selon l'équation III-50 :

$$dl = \frac{1}{l}\frac{dl}{dT}\Delta Tl \qquad \text{Équation III-50}$$

ce qui équivaut à :

$$dl = \alpha \Delta T l \qquad \text{Équation III-51}$$

avec *a*, coefficient de dilatation de la table en aluminium (23×10^{-6} m/K), *l*, la longueur initiale du bras de référence à température ambiante (0,4 m) et ΔT correspond à la variation de la température entre les deux bras. Selon la figure III-35, cette variation est estimée à environ 0,1 K sur une rampe de température de 216 K.

Nous obtenons donc :

$$\frac{dl}{dT} = \frac{\alpha \Delta T l}{dT} = \frac{23\times10^{-6}\times0{,}1\times0{,}4}{216} = 4{,}26\times10^{-9} m/K \qquad \text{Équation III-52}$$

Considérons à présent la mesure de variation de chemin optique en fonction de la température d'une céramique $Yb:Y_2O_3$ dopée 10 at. %. L'interférogramme présente 22 franges d'interférence sur une gamme de température comprise entre 291 K et 89 K, soit une plage de température de 202 K. Le calcul de variation du chemin optique s'écrit alors :

$$\frac{d\delta}{dT} = \frac{21\times\lambda}{291-89} = \frac{21\times632{,}8\times10^{-9}}{202} = 65{,}79\times10^{-9} m/K \qquad \text{Équation III-53}$$

Si nous comparons la variation du chemin optique due à la présence de l'échantillon, avec la variation de longueur de la table optique due à une variation de température de 0,1 K, nous pouvons en conclure que cette différence de température sur une mesure est négligeable.

III.3.4.4. Stabilité du laser

Le laser utilisé est un laser stabilisé en fréquence fourni par Melles Griot. La donnée du constructeur assure la stabilité en fréquence à long terme à ± 1 MHz et une stabilité en intensité à ± 0,1 %. Estimons l'erreur faite sur la longueur d'onde du laser.

$$\frac{u_\lambda^2}{\lambda^2} = \lambda^2 \frac{u_\upsilon^2}{c^3} \qquad \text{Équation III-54}$$

En considérant que la longueur d'onde du laser est de 632,8 nm et que la célérité de la lumière est de $3\text{x}10^8$ m/s, on obtient une erreur relative de $1{,}2\text{x}10^{-16}$ m. Cette erreur est négligeable. Nous pouvons donc en conclure que le laser est stable en fréquence.

III.3.4.5. Mesure sans échantillon

Nous avons réalisé une mesure dans le cas où il n'y a pas d'échantillon dans le support. Nous avons réalisé les mesures en teinte plate. Le signal mesuré par la photodiode en fonction de la température du support est représenté sur la figure III-36 :

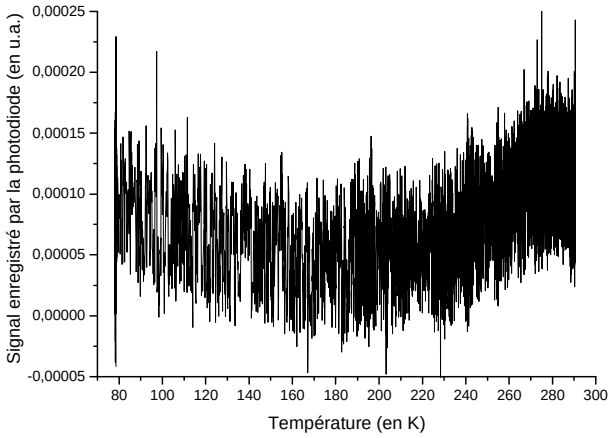


Figure III - 36 : Enregistrement du signal mesuré par la photodiode dans le cas où il n'y pas d'échantillon dans le support.

D'après cette figure, nous pouvons noter que le bruit d'une mesure sans échantillon est non nul. Lors d'une montée en température de l'échantillon de 80 K à la température ambiante, le signal varie d'un facteur 0,00017. Comparé au signal enregistré par la photodiode dans le cas où l'échantillon est présent dans le support et correspondant à la mesure de la variation de chemin optique, ce paramètre varie d'un facteur 0,4. Comparée à cette valeur, nous pouvons estimer que le bruit de la mesure sans échantillon est négligeable, il représente un décalage de frange d'environ $4{,}25 \times 10^{-5}$.

III.3.5. Validité des mesures

Cette dernière partie se propose d'évaluer la validité des mesures. Comme pour l'étude des sources d'incertitudes de notre montage expérimental, les figures représentées dans cette partie sont les résultats de mesures obtenues sur la céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. %.

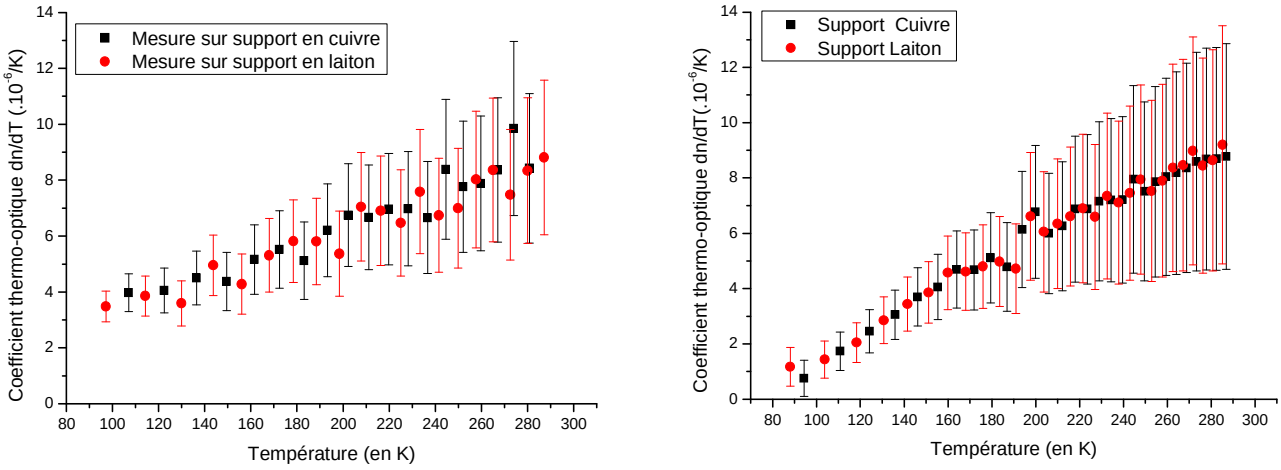
III.3.5.1. Supports laiton/cuivre

Deux types de supports ont été testés pour les expériences : un support en laiton et un en cuivre. Les propriétés thermo-optiques de ces deux matériaux sont représentées dans le tableau III-12 :

	Température	*Conductivité thermique (W/m.K)*	*Coefficient de dilatation (10^{-6}/K)*
Cuivre [Hahn 70]	300 K	400	16,6
	80 K	557	8,2
Laiton [Johnston 65]	300 K	120	19
	80 K	40	10,5

Tableau III - 12 : Valeurs de la conductivité thermique et du coefficient de dilatation du cuivre et du laiton à 80 et 300 K.

Afin de voir l'influence du type de matériau utilisé pour les supports échantillons, nous avons fait deux mesures distinctes avec dans un cas, un support en cuivre (points noirs) et dans l'autre, un support en laiton (points rouges). Les résultats sont représentés sur la figure III-37 *a*. Nous avons également réalisé les mêmes séries de mesures sur une céramique Yb : YAG non dopée (Figure III-37 *b*). Les mesures ont été faites en configuration de teinte plate.



a ***b***

Figure III - 37 : Coefficients thermo-optiques d'une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. % (*a*) et d'une céramique YAG non dopée (*b*) mesurés sur des supports en laiton et en cuivre.

Que ce soit dans le cas d'une céramique sesquioxyde d'yttrium ou d'une céramique YAG dopées ytterbium, la nature du matériau constituant le support échantillon n'influe pas sur les valeurs des coefficients thermo-optiques mesurées : la différence de valeurs expérimentales mesurées entre un support laiton et un support cuivre est estimée à moins de 5 %.

III.3.5.2. Mesure en coin d'air

Comme expliqué au début de ce chapitre, deux types de mesures sont possibles pour mesurer la variation du chemin optique : la méthode du coin d'air et la méthode de la teinte plate. Concernant la méthode du coin d'air, nous obtenons une figure d'interférence avec des franges. Le coefficient de variation du chemin optique est calculé en fonction de la température à partir du défilement d'une, de deux ou de trois franges. La figure III-38 compare les résultats de calcul du coefficient thermo-optique *dn/dT* dans ces trois cas.

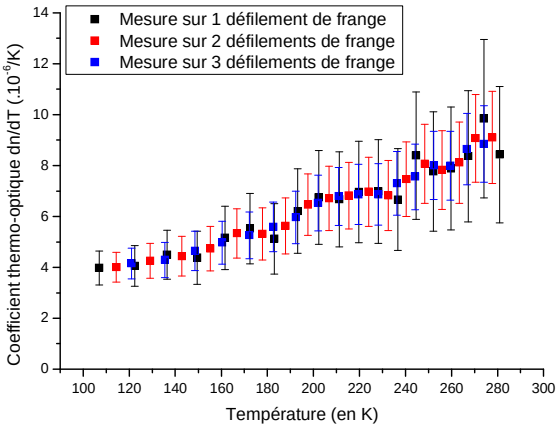


Figure III - 38 : Comparaison des calculs de coefficients thermo-optiques d'une céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. % considérant 1, 2 ou 3 défilements de franges.

Les résultats de calcul de variation de chemin optique et donc du coefficient thermo-optique *dn/dT* sur une, deux ou trois franges sont similaires, (à une même température, la différence est estimée à moins de 5 %).

III.3.5.3. Comparaison mesures coin d'air / teinte plate

Cette partie compare les mesures obtenues en coin d'air et en teinte plate sur un même matériau (Figure III-39).

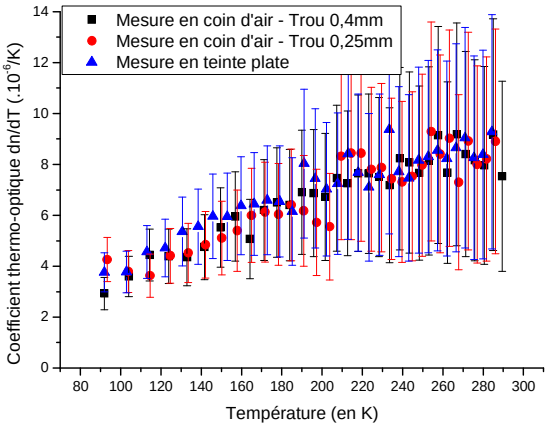


Figure III - 39 : Comparaison des calculs de coefficients thermo-optiques d'une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. % sur des mesures réalisées en configuration de teinte plate ou de coin d'air.

Aucune différence est notable (inférieure à 5 %) entre des expériences menées en teinte plate et en configuration de coin d'air. Ce que nous pensions, au départ, être un inconvénient pour les mesures en teinte plate, du faite de l'intégration du signal sur toute une surface, se révèle n'avoir aucun effet sur les mesures.

III.3.5.4. Mesure en coin d'air : influence du nombre de franges d'interférence

Lors des mesures en coin d'air, nous avons pris garde à ce que le nombre de franges d'interférence soit identique d'une expérience à une autre sur des échantillons différents. Nous nous sommes interrogés sur l'influence du nombre de franges sur les résultats de mesure. Des expériences ont été menées avec dans un cas, un nombre de franges d'interférence égal à 6 et dans une autre expérience, un nombre égal à 4. Les résultats sont représentés dans la figure III-40 :

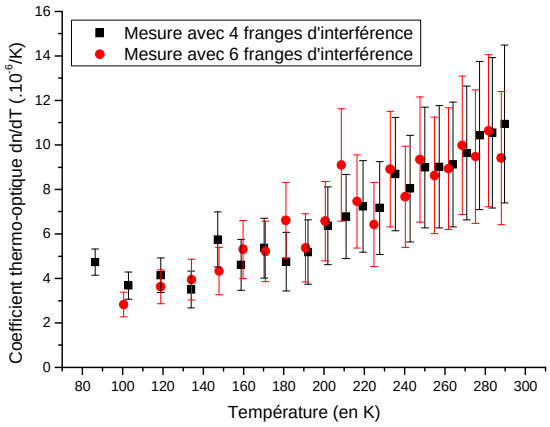


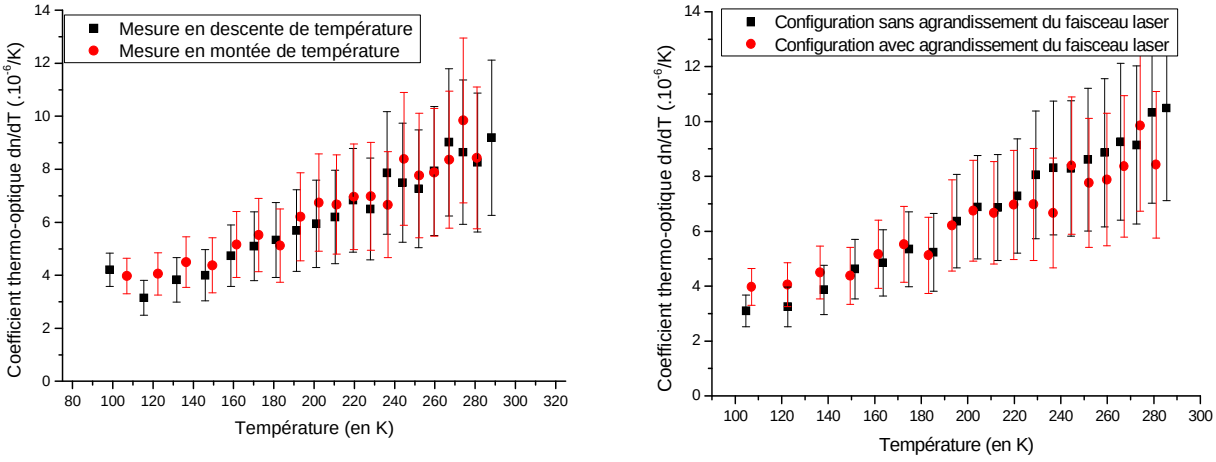
Figure III - 40 : Comparaison des calculs de coefficients thermo-optiques d'une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. % sur des mesures réalisées en configuration de coin d'air pour 4 ou 6 franges d'interférence.

Compte tenu des barres d'erreur, les valeurs expérimentales des coefficients thermo-optiques obtenues dans une configuration de six ou quatre franges d'interférence sont comparables (moins de 15 % de différence entre les valeurs mesurées). Dans le cas d'une mesure en coin d'air, le nombre de franges d'interférence n'influe pas sur les mesures.

III.3.5.5. Mesure en montée ou en descente en température / Mesure avec ou sans agrandissement du faisceau laser

Lors de toutes les expériences, au début des mesures, l'échantillon est à la température de l'azote liquide : la mesure se réalise lors d'une montée en température du matériau. Une mesure a été faite en réalisant un enregistrement en teinte plate lors d'une descente en température de l'échantillon : l'enregistrement du défilement des franges se fait en 1 655 points (contre 6 000 points lorsque l'enregistrement se fait de nuit). La comparaison entre les deux mesures est représentée sur la figure III-41 a.

Rappelons également qu'à la sortie du faisceau laser He-Ne, un système optique a été mis en place afin d'agrandir le diamètre du faisceau. Une mesure a été réalisée en ôtant ce dispositif (foyer du microscope et lentille) permettant ainsi de voir l'influence ou non du diamètre du faisceau laser sur l'échantillon. Notons également que sans ce dispositif d'agrandissement, le faisceau a un diamètre de 2 mm. La comparaison des deux mesures, avec et sans agrandissement du faisceau, est représentée en figure III-41 *b*.



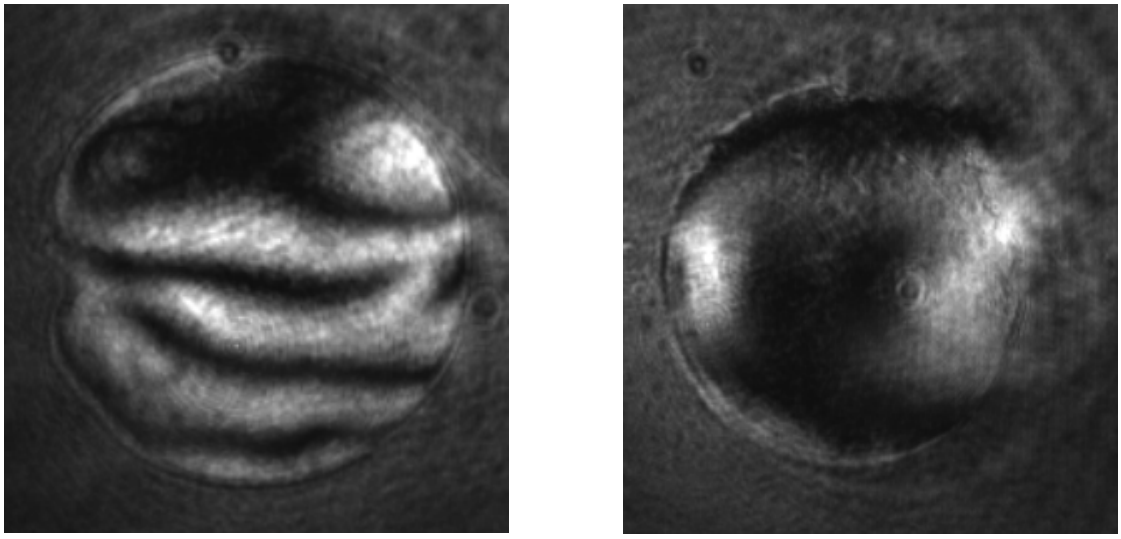
a *b*

Figure III - 41 : Comparaison des calculs de coefficients thermo-optiques d'une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. % entre une montée et une descente de température (*a*) et en considérant ou non un faisceau laser He-Ne agrandi (*b*).

Les deux figures ci-dessus permettent de voir que le fait d'illuminer l'échantillon entièrement ou partiellement n'a aucune influence sur les résultats. De même, les mesures en montée ou en descente en température n'influent pas sur les valeurs des coefficients thermo-optiques trouvés. Le seul avantage que nous pouvons attribuer à une mesure en montée en température est que le nombre de points enregistrés est environ quatre fois plus grand que lors d'une mesure en descente de température : la précision des mesures n'en est donc que meilleure.

III.3.5.6. Phénomènes indésirables

A température cryogénique, l'échantillon à étudier peut présenter des irrégularités visibles sur l'image de la caméra CCD : dans la configuration du coin d'air, les franges d'interférence ne sont plus rectilignes et pour la configuration de la teinte plate, celle-ci n'est plus uniforme. Les figures III-42 *a* et *b* illustrent les images obtenues sur des céramiques Yb :Y_2O_3 dopées 10 at. % dans les deux configurations, à la température de l'azote liquide.



a ***b***

Figure III - 42 : Déformations de la figure d'interférence obtenue en sortie de l'interféromètre Mach-Zehnder pour une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. %, à 77 K, en configurations du coin d'air (*a*) et de teinte plate (*b*).

Excepté pour le YAG monocristallin, ce phénomène a été visible sur tous nos échantillons pour des températures inférieures à 150 K.

Ce phénomène parasite pourrait induire des erreurs dans nos calculs du coefficient thermo-optique. En effet, rappelons que, dans le cas de la configuration de la teinte plate, la photodiode enregistre un signal moyenné sur la surface de l'échantillon. Dans le cas d'une teinte plate uniforme, celle-ci passe successivement d'une teinte sombre à une teinte brillante. Dans ce cas particulier, cette teinte n'est plus parfaite pour des températures inférieures à 150 K : le signal enregistré par la photodiode est modifié. Deux points sont à considérer :

- les déformations enregistrées ne sont que locales, autrement dit, cette présence d'effet parasite n'empêche pas de voir la transition générale entre une teinte sombre et une teinte brillante,
- les valeurs expérimentales des coefficients thermo-optiques mesurées pour des céramiques Yb :Y_2O_3 et des cristaux Yb :YAG sont similaires à celles de la littérature pour une gamme de température allant de la température ambiante à celle de l'azote liquide. Ces phénomènes parasites ayant été observés à basse température, et en raison de la similitude de nos résultats avec ceux de la littérature, ces phénomènes peuvent être jugés comme étant négligeables.

L'origine de ces déformations peut être multiple : elles peuvent être liées à la présence d'impuretés dans le matériau ou à des problèmes dus aux joints de grain. A ce jour, aucune explication précise n'a pu être donnée.

III.3.5.7. Le caractère reproductible des mesures

L'un des points les plus importants est le caractère reproductible des mesures. Nous avons réalisé quatorze mesures sur la céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. %, sous forme cylindrique. Nous avons identifié différents cas de figures : configurations de teinte plate / de coin d'air, nombre de franges d'interférence différent, mesures en montée / descente de température, remplacement de la photodiode par une autre, mesure simultanée des signaux aux deux bras du Mach-Zehnder,...

La figure III-43 regroupe tous les résultats de ces mesures :

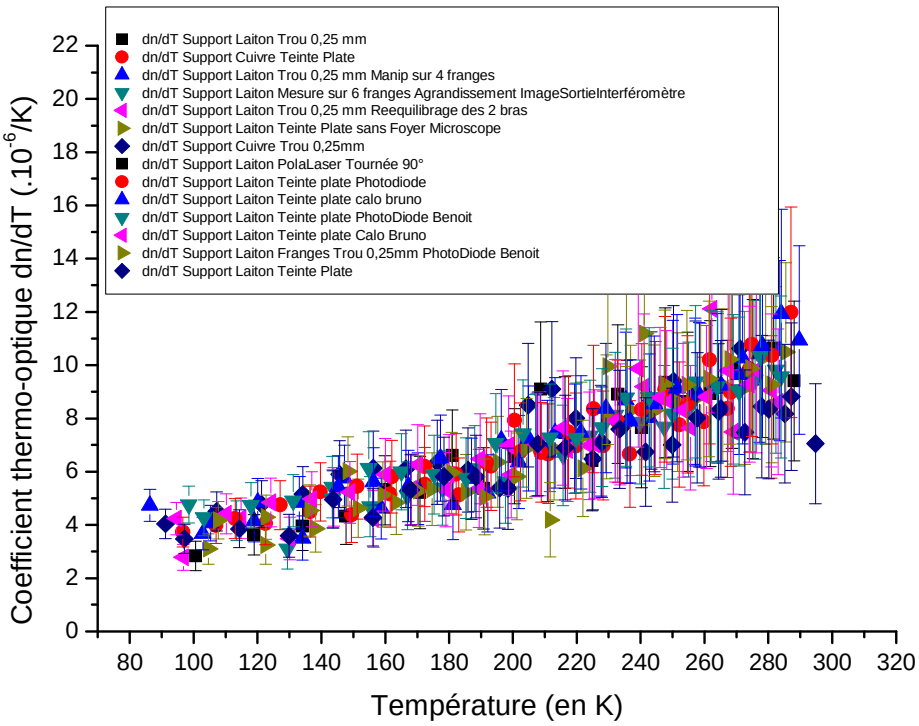


Figure III - 43 : 14 mesures différentes de coefficients thermo-optiques d'une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. %.

Sur les quatorze mesures réalisées, nous pouvons observer que les courbes sont très voisines. Le caractère reproductible de nos mesures ne faisant aucun doute, les barres d'erreur des mesures peuvent être diminuées : les barres d'erreur du coefficient de variation de chemin optique en fonction de la température peuvent être multipliées par un facteur égal à $\frac{1}{\sqrt{14}}$.

Cette diminution ne s'applique pas aux barres d'erreur des valeurs du coefficient thermo-optique *dn/dT*. Ce paramètre dépendant également des mesures du coefficient de dilatation, ces dernières n'ont pas été réalisées quatorze fois sur un de nos échantillons : la réduction des barres d'erreur ne s'applique donc pas au *dn/dT*.

III.4 Conclusion

Peu de méthodes existent pour mesurer directement le coefficient thermo-optique *dn/dT* de matériaux à basse température. En partant de l'expression de la variation de chemin optique en fonction de la température, nous avons pu voir qu'il suffit de mesurer ce paramètre ainsi que le coefficient de dilatation pour en déduire les valeurs du coefficient thermo-optique.

Nous avons ainsi dans un premier temps réalisé des mesures du coefficient d'élongation thermique au LNE. Ces mesures ont été réalisées en utilisant un dilatomètre commercial TMA7, Perkin Elmer, à des températures cryogéniques. Des céramiques de scandium, de lutétium, d'yttrium et de YAG ont été testées. Ajoutons à cette liste de matériaux des cristaux de YAG, de CaF_2 et des verres phosphates dopés néodyme. D'une manière générale, nous avons pu noter que lorsque la température du matériau diminue, le coefficient de dilatation diminue. Nous avons également noté que la nature de l'échantillon (céramique/cristal) ou le taux de dopage en ion ytterbium n'influe pas sur les valeurs du coefficient de dilatation.

De la même manière, le coefficient thermo-optique *dn/dT* diminue lorsque la température du matériau baisse. Les barres d'erreur estimées ne permettent pas de voir les influences du taux de dopage en ion ytterbium et de la nature du matériau sur les valeurs mesurées.

Suite aux mesures que nous avons menées, nous pouvons discerner deux perspectives :

- Rappelons que l'indice de réfraction d'un matériau dépend à la fois de sa température mais également de la longueur d'onde. Il serait alors intéressant de reprendre le montage type Mach-Zehnder que nous avons mis en place pour les mesures de la variation de chemin optique en fonction de la température en utilisant des sources lasers de longueur d'onde différentes. Ainsi, nous pourrions en déduire les coefficients de Sellmeier des matériaux étudiés,
- En métallisant une partie des deux faces de l'échantillon, nous aurions un système similaire à celui développé par Mangin *et al.* [Mangin 93] : il serait ainsi possible de mesurer à la fois les coefficients de dilatation et de variation de chemin optique en fonction de la température.

Pour les mesures du coefficient d'élongation thermique et du coefficient thermo-optique, les auteurs font généralement un ajustement polynômial d'ordre 3 des valeurs expérimentales. Pour rester dans la même logique, et ceci, pour chaque matériau étudié, nous avons réalisé le même type d'ajustement et ainsi donné les coefficients polynômiaux correspondants que ce soit pour les mesures du coefficient de dilatation ou pour le coefficient *dn/dT*. Cependant, dans le cas de la mesure du *dn/dT*, la courbe d'ajustement s'apparente davantage à une droite. A ce jour, nous n'avons pas réussi à développer un raisonnement suffisant pour confirmer de tels propos.

Nous avons toutefois étudié divers modèles proposés dans la littérature : l'inconvénient est qu'il nécessite de connaître des paramètres tels que la variation de l'indice en fonction de la température, ou bien encore, les valeurs des coefficients thermo-optiques spécifiques dépendant eux-mêmes de la densité du matériau à une température donnée.

Dans le cas d'un monocristal de CaF_2, Tsay *et al.* ont proposé un modèle permettant de calculer le coefficient *dn/dT* à partir des valeurs du coefficient de dilatation [Tsay 77] basé sur le modèle des oscillateurs [Tsay 73].

Pour des fréquences *w* plus faibles que les fréquences de transitions électroniques, Tsay *et al.* commencent leur développement par l'expression de l'indice de réfraction d'un cristal :

$$\varepsilon \approx n^2 = 1 + \frac{4\pi Ne^2/m}{(\hbar w_g)^2} \qquad \text{Équation III-55}$$

où *N* est le nombre d'électrons de valence, *e* et *m* sont respectivement la charge électronique et la masse, w_g représente la fréquence du gap entre la bande de valence et la bande de conduction.

En dérivant l'expression III-55 par rapport à la température, ils obtiennent :

$$(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T})_P = (\varepsilon - 1)(-3\alpha - \frac{6\alpha V}{\omega_g}(\frac{\partial \omega_g}{\partial V})_T - \frac{2}{\omega_g}(\frac{\partial \omega_g}{\partial T})_V \qquad \text{Équation III-56}$$

Ils expriment ensuite, la dérivée partielle de l'indice en fonction de la pression :

$$(\frac{\partial \varepsilon}{\partial P})_T = (\frac{\partial \varepsilon}{\partial V})(\frac{\partial V}{\partial P})_T = (\varepsilon - 1)(-3\alpha - \frac{6\alpha V}{\omega_g}(\frac{\partial \omega_g}{\partial V})_T)(-\frac{K}{3\alpha}) \qquad \text{Équation III-57}$$

avec *K* facteur de compressibilité.

En négligeant le terme de la dérivée partielle de la fréquence de gap par rapport à la température, ils en déduisent l'expression du coefficient thermo-optique *dn/dT* :

$$\frac{dn}{dT} = -3\alpha(\rho\frac{\partial n}{\partial \rho})_T \qquad \text{Équation III-58}$$

Schmidt et Vedam ont estimé $(\rho\frac{\partial n}{\partial \rho})_T = 0{,}208$ pour un cristal CaF_2 à la longueur d'onde de 589,3 nm [Schmidt 66].

Lallemand *et al.* [Lallemand 82] abordent l'interprétation du coefficient thermo-optique *dn/dT* selon différents points de vue. La première approche est thermodynamique : elle permet de déduire des paramètres comme le coefficient de température de la réfractivité du cristal à densité constante. L'analyse peut être également menée en termes d'évolution avec la température de la largeur de bande de transition électronique interdite à l'aide du modèle

proposé par Tsay *et al.* [Tsay 73]. Ce dernier modèle ayant déjà été abordé précédemment, nous allons étudier l'approche thermodynamique.

Selon le modèle de Lorentz, pour une température et une pression fixées, la variation du carré de l'indice de réfraction s'écrit :

$$\frac{n^2-1}{n^2+2}\frac{1}{\rho}R(\omega) \qquad \text{Équation III-59}$$

où ρ est le nombre de molécules par unité de volume, $R(\omega)$ représente la réfractivité moléculaire du solide à la fréquence ω.

En dérivant cette expression par rapport à la température, nous obtenons l'expression du coefficient thermo-optique :

$$\frac{dn}{dT}=\frac{(n^2-1)(n^2+2)}{6n}(-3\alpha+\frac{1}{R}\frac{dR}{dT}) \qquad \text{Équation III-60}$$

L'évolution du coefficient dn/dT résulte de la compétition entre deux effets : l'un lié à la variation de la longueur du cristal, et l'autre dû à l'influence de la température sur la réfractivité. L'équation III-60 montre que si le terme dépendant du coefficient de dilatation est plus important que celui dépendant de la réfractivité du matériau, le coefficient dn/dT sera négatif.

Le paramètre de la réfractivité se décompose en deux termes suivant la relation :

$$\frac{1}{R}\frac{dR}{dT}=(\frac{1}{R}\frac{\partial R}{\partial T})_T-3\alpha(\frac{\rho}{R}\frac{\partial R}{\partial \rho})_T \qquad \text{Équation III-61}$$

Si nous remplaçons l'expression de la variation de la réfractivité en fonction de la température dans l'équation III-60, nous obtenons :

$$\frac{dn}{dT}=\frac{(n^2-1)(n^2+2)}{6n}(-3\alpha+(\frac{1}{R}\frac{\partial R}{\partial T})_T-3\alpha(\frac{\rho}{R}\frac{\partial R}{\partial \rho})_T) \qquad \text{Équation III-62}$$

La dérivée de l'indice de réfraction par rapport à la densité du matériau s'écrit :

$$(\rho\frac{\partial n}{d\rho})_T=\frac{(n^2-1)(n^2+2)}{6n}(1+(\frac{\rho}{R}\frac{\partial R}{\partial \rho})_T) \qquad \text{Équation III-63}$$

A densité constante, Lallemand *et al.* ont montré que les valeurs de réfractivité de cristaux de CaF_2 sont négligeables. Il en résulte donc que le coefficient thermo-optique s'exprime par :

$$\frac{dn}{dT}=-3\alpha(\rho\frac{\partial n}{\partial \rho})_T \qquad \text{Équation III-64}$$

Des deux approches que nous venons de citer, nous pouvons constater que le coefficient thermo-optique dn/dT dépend fortement des valeurs du coefficient de dilatation. Cependant,

cette expression impose de connaître les valeurs de densité et de la variation de l'indice en fonction de la densité, pour différentes températures.

Lors des mesures sur des cristaux de CaF_2 non dopé et dopé en ion ytterbium, nous avons pu vérifier cette relation. Il serait alors intéressant de connaître les paramètres dépendant de la densité afin de vérifier si cette relation est valable pour tous les matériaux.

Enfin, dans le cas des verres, Izumitani *et al.* ont montré la dépendance du coefficient *dn/dT* en fonction de la polarisabilité du matériau selon l'équation III-65 [Izumitani 80] :

$$\frac{dn}{dT} = \frac{(n^2-1)(n^2+2)}{6n}\left(\frac{d\ln\alpha_e}{dT} - \frac{d\ln V}{dT}\right) \qquad \text{Équation III-65}$$

avec a_e est la polarisabilité électronique et V représente le volume molaire du verre.

Cette expression est obtenue en dérivant par rapport à la température le modèle de Lorentz-Lorenz. Au même titre que l'équation III-60, cette équation montre que si l'un des deux paramètres (polarisabilité ou volume molaire) est prédominant sur l'autre, le coefficient *dn/dT* est négatif. Deux points sont à noter. D'une part, au même titre que les deux approches préalablement cités, nous pouvons remarquer que le coefficient *dn/dT* dépend du coefficient de dilatation (présence de la dérivée du logarithme du volume par rapport à la température). D'autre part, le terme de polarisabilité ne dépendrait que de la contribution de la polarisabilité de chaque matériau constituant le verre. Ce modèle a été repris par le laboratoire de Livermore pour la caractérisation des propriétés thermo-optiques de certains verres [LLNL 81].

Précédemment, nous avons supposé l'hypothèse que l'ajustement polynômial d'ordre 3, proposé par les auteurs, ne serait pas totalement exacte et qu'au vue des courbes que nous avons obtenues, il serait envisageable de faire un ajustement selon l'équation d'une droite, dépendant de la température. Cette piste reste à exploiter. En effet, pour un cristal YAG, rappelons que Fan a proposé un ajustement des valeurs du coefficient d'élongation thermique en fonction de la température : le modèle est basé sur l'équation d'une droite [Fan 98]. En considérant désormais, le modèle proposé par Tsay *et al.* [Tsay 77], le coefficient thermo-optique est proportionnel aux mesures du coefficient de dilatation à un facteur dépendant de la densité du matériau. En combinant ces deux modèles, il apparaîtrait que le coefficient *dn/dT* ne dépendrait au final de la température qu'au premier ordre.

Nous venons de montrer que les modèles développés relient la variation d'indice avec la température au phénomène d'élongation thermique, mais également à la densité du matériau ou bien encore à la variation de la polarisabilité avec la température [LLNL 81]. Gaumé étudie ces développements et y apporte un regard très critique [Gaumé 02]. Il propose ainsi une démarche originale pour calculer le coefficient *dn/dT*. Pour cela, il considère que chaque type de liaison atomique possède un coefficient thermo-optique qui lui est spécifique. Il pose ainsi :

$$\frac{dn}{dT} = \rho \sum_i p_i g_i \qquad \text{Équation III-666}$$

avec ρ, la densité du matériau dont nous cherchons à calculer le coefficient thermo-optique. g_i désignent les coefficients thermo-optiques spécifiques des différents composés entrant dans la composition du matériau et p_i les fractions massiques. Il définit :

$$g_i = \frac{1}{\rho_i} \frac{dn_i}{dT} \qquad \text{Équation III-677}$$

Au même titre que les développements menés sur la variation de l'indice avec la température, cette dernière loi suppose de connaître des données spécifiques.

Avec ce modèle, Gaumé donne une valeur du coefficient thermo-optique *dn/dT* du YAG à $9{,}1 \times 10^{-6}$ K^{-1}, et du Y_2O_3 à 7×10^{-6} K^{-1}, à température ambiante. Cette prédiction est donnée avec une erreur de moins de 7 %. Rappelons que pour des céramiques YAG et Y_2O_3 non dopées, à température ambiante, nous obtenons des coefficients thermo-optiques respectivement de $(7{,}08 \pm 1{,}24) \times 10^{-6}$ K^{-1} et $(8{,}01 \pm 2{,}54) \times 10^{-6}$ K^{-1}. Compte tenu de l'erreur estimée par Gaumé et de nos barres d'erreur, cette loi pourrait très bien s'appliquer à nos mesures. Le principal problème reste de connaître les paramètres de chaque matériau, et notamment la densité, à basse température : or, à l'heure actuelle, très peu de données sur les matériaux à des températures cryogéniques sont disponibles dans la littérature.

Chapitre IV

Etude de faisabilité de mesure de la conductivité thermique à basse température

La caractérisation thermique ou thermophysique (capacité thermique massique, conductivité) des matériaux est bien maîtrisée depuis plusieurs années, pour des températures voisines de la température ambiante et jusqu'à haute température. La mesure de la conductivité thermique à très basse température est beaucoup plus délicate du fait, d'une part, du choix limité des méthodes d'estimation qui peuvent s'adapter à de telles conditions et d'autre part, de mettre en place un dispositif cryogénique spécifique. Rappelons également que les propriétés thermo-optiques telles que la conductivité thermique, le coefficient thermo-optique *dn/dT* ou bien encore le coefficient de dilatation de matériaux sont quasiment inexistantes dans la littérature, et plus particulièrement aux très basses températures.

Cette partie se propose de définir une démarche scientifique permettant de caractériser ce paramètre. L'essentiel de cette caractérisation consiste à mesurer la conductivité thermique apparente de céramiques sesquioxydes dopées ytterbium, tout d'abord, à température ambiante puis sur la plage de température comprise entre la température de l'azote liquide, 77 K et la température ambiante. Nous avons testé diverses méthodes expérimentales s'appuyant sur deux principes de mesure foncièrement différents. La première utilise une méthode photothermique impulsionnelle (méthode flash laser), et la seconde une méthode par sonde à chocs (méthode de la sonde annulaire).

Ce chapitre présente tout d'abord des généralités essentielles de ces mesures. Ce mémoire n'a pas la prétention de détailler en profondeur tous les aspects de cette métrologie thermique, cependant, il est nécessaire d'en rappeler les bases pour introduire les paramètres qui seront utilisés lors de cette étude.

Nous citerons ensuite différentes méthodes expérimentales mais aussi différentes techniques d'identification paramétrique permettant de caractériser le paramètre de conductivité thermique. N'ayant pratiquement aucune information dans la littérature sur nos matériaux pour ce type de mesure, nous avons décidé d'établir la stratégie suivante. Des premières mesures ont été menées à température ambiante par les méthodes flash laser [Parker 61] et du disque chaud [Hot Disk], [Gustavson 94]. Ces mesures nous ont permis d'obtenir des premières valeurs à température ambiante, puis de les comparer avec les valeurs de la littérature [Fan 07], [Aggarwal 05]. Le but a été de valider le type de métrologie utilisé pour pouvoir ainsi le mettre en place et l'adapter à notre système cryogénique. Cette première étape de mesure sera détaillée. Nous expliciterons ensuite la démarche suivie pour les mesures à basse température. Nous terminerons ce chapitre par une confrontation entre nos résultats et ceux obtenus par le modèle de Gaumé [Gaumé 02].

IV.1 Généralités

Les différentes méthodes expérimentales reposent toutes sur la même logique. Dans un premier temps, il s'agit d'exciter thermiquement le matériau à caractériser et de relever l'évolution de sa température en un ou plusieurs points en fonction du temps (thermogramme). En parallèle, un modèle de simulation, basé sur l'écriture de l'équation de la chaleur est développé. La seconde étape, appelée problème inverse, concerne l'identification des propriétés thermophysiques du matériau étudié. Il s'agit très souvent de minimiser l'écart entre les signaux expérimentaux et ceux calculés à l'aide du modèle de simulation où interviennent les paramètres à estimer.

IV.1.1. Loi de Fourier : équation de la chaleur

Considérons un élément d'épaisseur *dx*, dans la direction *x*, et de section d'aire *S*, normalement à la direction *Ox* (Figure IV-1).

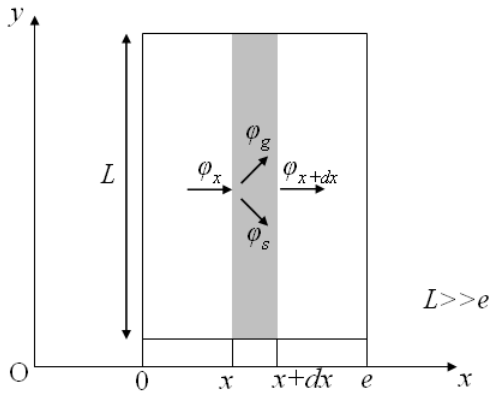


Figure IV - 1 : Bilan thermique d'un système.

Expérimentalement, si les variations de température ne sont pas trop importantes, on rend compte localement des phénomènes de conduction de la chaleur par la loi de Fourier, dans laquelle la conductivité thermique est suffisamment indépendante de la température. Pour un milieu isotrope, le vecteur densité de flux de chaleur j_Q est égal à :

$$\vec{j}_Q = -\kappa . gra\vec{d}T \qquad \text{Équation IV-1}$$

où κ est la conductivité thermique et T est la température.

Dans un cas monodimensionnel, la loi de Fourier s'écrit :

$$\varphi = -\kappa S \frac{\partial T}{\partial x} \qquad \text{Équation IV-2}$$

où φ représente le flux de chaleur.

Le signe moins traduit que le transfert thermique se produit des zones chaudes vers les zones froides.

Outre le phénomène de conduction, d'autres transferts thermiques sont à prendre en considération. Nous pouvons citer les phénomènes de convection, de rayonnement, de stockage d'énergie φ_s et enfin de génération d'énergie φ_g.

Le bilan énergétique du système décrit sur la figure IV-1 s'écrit :

$$\varphi_x + \varphi_g = \varphi_{x+dx} + \varphi_s \qquad \text{Équation IV-3}$$

Dans le cas où il n'y a pas de phénomène de convection et de rayonnement, nous pouvons écrire :

$$\varphi_x = \left[-\kappa S \frac{\partial T}{\partial x} \right]_x,\ \varphi_{x+dx} = \left[-\kappa S \frac{\partial T}{\partial x} \right]_{x+dx},\ \varphi_g = \dot{q} S dx \text{ et } \varphi_s = \rho C S dx \frac{\partial T}{\partial t} \qquad \text{Équation IV-4}$$

En reportant ces différents termes dans la loi de Fourier décrite par l'équation IV-2, nous obtenons, dans un cas tridimensionnel, l'équation de la chaleur décrite par l'équation IV-5 :

$$\frac{\partial}{\partial x}\left(\kappa_x \frac{\partial T}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y}\left(\kappa_y \frac{\partial T}{\partial y}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\kappa_z \frac{\partial T}{\partial z}\right) + \dot{q} = \rho C \frac{\partial T}{\partial t} \qquad \text{Équation IV-5}$$

Considérons trois cas :

- si le milieu est isotrope, la conductivité thermique est identique dans toutes les directions *Ox*, *Oy* et *Oz*,
- s'il n'y a pas de génération d'énergie à l'intérieur du système, nous pouvons écrire $\dot{q} = 0$,
- enfin, si le milieu est homogène, la conductivité thermique est uniquement fonction de la température.

Les trois conditions regroupées permettent d'écrire :

$$\kappa\left(\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2}\right) + \frac{\partial \kappa}{\partial T}\left(\left(\frac{\partial T}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial T}{\partial y}\right)^2 + \left(\frac{\partial T}{\partial z}\right)^2\right) = \rho C \frac{\partial T}{\partial t} \qquad \text{Équation IV-6}$$

Considérant une faible élévation de la température, et par conséquent une conductivité thermique constante, nous obtenons l'équation de Poisson :

$$\beta \nabla^2 T = \frac{\partial T}{\partial t} \qquad \text{Équation IV-7}$$

Le rapport $\beta = \dfrac{\kappa}{\rho C_p}$ est appelé diffusivité thermique (ρ étant la densité du matériau et C_p sa capacité thermique massique).

Enfin, en régime permanent, nous obtenons l'équation de Laplace :

$$\nabla^2 T = 0 \qquad \text{Équation IV-8}$$

Pour clôturer cette partie, nous allons détailler deux paramètres préalablement cités : la convection et le rayonnement.

La convection correspond au transfert de chaleur entre un solide et un fluide, l'énergie étant transmise par le déplacement du fluide. Ce mécanisme est régi par la loi de Newton :

$$\varphi = hS(T_p - T_\infty) \qquad \text{Équation IV-9}$$

avec φ le flux de chaleur transmis par convection, h le coefficient de transfert par convection, T_p la température de surface du solide, T_∞ la température du fluide loin de la surface du solide. S est l'aire de la surface de contact entre le solide et le fluide.

Le rayonnement correspond quant à lui au transfert d'énergie électromagnétique entre deux surfaces (même dans le vide). Dans les problèmes de conduction, le rayonnement entre un solide et son milieu environnant est pris en compte suivant l'équation :

$$\varphi = \sigma \varepsilon_p S(T_p^4 - T_\infty^4) \qquad \text{Équation IV-10}$$

avec σ la constante de Stefan (5,67x10^{-8} W/m^{2}K^4), et ε_p le facteur d'émission de la surface.

IV.1.2. Les trois familles de matériaux – notion de conductivité thermique apparente

Dans le domaine de la thermique, et dans le cas où il y a un couplage entre la conduction et le rayonnement, il existe trois types de milieux : opaque, semi-transparent, et transparent.

Selon le type du matériau, il est important de distinguer la conductivité thermique apparente de la conductivité thermique effective. En effet, dans le cas d'un milieu opaque, la mesure de la conductivité thermique correspond exactement à la conductivité thermique du matériau.

Concernant les milieux semi-transparents et transparents, la mesure de la conductivité thermique est représentative de la conductivité thermique apparente du matériau et non de la réelle conductivité thermique du matériau. En effet, cette mesure est perturbée par les phénomènes de conduction radiative : le résultat obtenu n'est donc plus uniquement lié à la conduction thermique de ce dernier mais est égal à la somme de la conductivité thermique effective du matériau et de la conductivité radiative [Goyheneche 97].

Dans le cas des milieux semi-transparents, le rayonnement dépend des propriétés optiques du matériau. Dans le cas des milieux transparents, la mesure du rayonnement dépend des propriétés optiques de surface du matériau.

Nous verrons dans la suite de ce chapitre que dans le cadre de notre étude, cette notion de conductivité apparente est négligeable : le rayonnement est négligeable et la mesure de la conductivité thermique apparente correspond à la véritable valeur de la conductivité thermique du matériau.

IV.2 Les régimes stationnaires, transitoires, variables et périodiques établis

A l'équilibre thermodynamique, les systèmes homogènes sont caractérisés par des variables d'état uniformes et constantes. Soumis à certaines conditions, un système peut être hors équilibre. La conduction de la chaleur est le cas particulier où la non-uniformité de la température entraîne un transfert d'énergie d'un point à un autre du système sans transport macroscopique de matière. Pour un système solide, opaque et dense, seul ce processus de transfert est possible. Le caractère hors équilibre peut être classé en quatre types de régimes :

- **les régimes stationnaires** également appelés régimes permanents, pour lesquels la température en tout point du milieu est indépendante du temps, le déséquilibre est entretenu par les sources de chaleur,
- **les régimes transitoires** qui correspondent à l'évolution d'un système d'un état initial (permanent ou en équilibre) vers un état final (permanent ou en équilibre) provoquée par un changement à l'instant initial des sources ; le champ de température dépend du champ de température initial mais l'influence de celui-ci s'estompe avec le temps,
- **les régimes variables** pour lesquels l'intensité des sources évolue constamment. Le champ de température à un instant donné dépend théoriquement des valeurs instantanées des sources, mais également de toutes leurs évolutions antérieures,
- **les régimes sinusoïdaux (ou périodiques établis**) pour lesquels la température, en tout point du milieu, effectue des oscillations périodiques, indépendantes de la condition initiale et dont l'amplitude et la phase ne dépendent que des coordonnées d'espace. Ces régimes sont obtenus après une phase transitoire.

IV.2.1. Les méthodes stationnaires

Ces méthodes reposent sur l'application d'un flux stationnaire ϕ et sur la maîtrise des conditions aux limites du système étudié. L'avantage de ces méthodes est que par la mesure de la température, stabilisée, à divers points de l'échantillon et la connaissance du flux injecté dans le système permettent de déterminer directement les grandeurs thermiques du matériau et plus particulièrement sa conductivité thermique. Ainsi, la résistance thermique R de l'échantillon est déterminée par l'équation IV-11 :

$$\Delta T = R\phi \qquad \text{Équation IV-11}$$

où ΔT représente la variation de température entre deux points, généralement entre les deux extrémités de l'échantillon à étudier.

La conductivité thermique κ du matériau se calcule à partir de l'équation IV-12 :

$$\kappa = \frac{e}{RS}$$ Équation IV-12

où e et S représentent respectivement l'épaisseur et la surface de l'échantillon.

Deux grandes classes de méthodes existent selon la conductivité thermique du matériau : pour les isolants, la méthode utilisée sera la méthode de la plaque chaude gardée ; pour les matériaux conducteurs, il s'agira de la méthode de la barre.

IV.2.1.1. Méthode de la plaque chaude gardée [Deponte 74]

Ce dispositif est appliqué à des matériaux isolants dont les dimensions caractéristiques sont celles d'une plaque où l'épaisseur est faible devant les deux autres dimensions. Son schéma de principe est représenté sur la figure IV-2 :

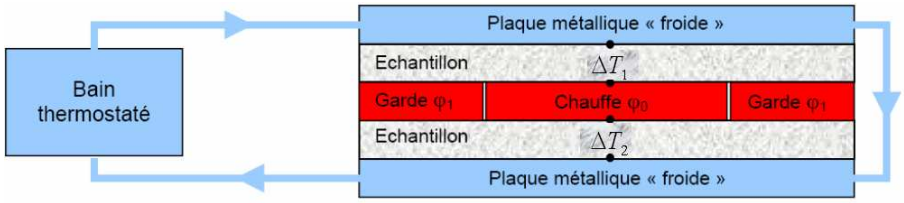


Figure IV - 2 : Schéma de la méthode de la plaque chaude gardée.

Il existe de nombreuses variantes à ce dispositif (gardes latérales, mise en place d'un échantillon de référence, ...).

D'une manière générale, les plaques extérieures, en matériau très conducteur (cuivre, aluminium), sont maintenues à température constante par circulation d'un fluide issu d'un bain thermostaté.

Une plaque chauffante délivre une puissance de chauffe φ_0 uniforme et constante qui est transmise aux plaques extérieures à travers l'échantillon placé de part et d'autre de la plaque chauffante, dont on veut mesurer la conductivité thermique. On s'assure du transfert unidirectionnel dans la zone centrale de mesure en entourant la zone chauffée par un anneau de garde auquel on fournit un flux φ_1 tel que la température de l'anneau soit égale à la température de la plaque chauffante. On s'assure ainsi également que tout le flux φ_0 passe à travers l'échantillon. Le flux φ_1 est supérieur au flux φ_0 pour compenser les pertes latérales convectives. L'anneau de garde et la plaque chauffante sont séparés par une mince couche d'air.

Des thermocouples sont placés sur les deux faces de chaque échantillon pour en mesurer les écarts de température ΔT_1 et ΔT_2.

La conductivité thermique s'exprime par l'équation IV-13 :

$$\kappa = \frac{e\varphi_0}{S(\Delta T_1 + \Delta T_2)}$$ Équation IV-13

Il est à noter que cette méthode n'est pas simple à mettre en place. En effet, le temps d'établissement du régime stationnaire est particulièrement long ; il est nécessaire d'attendre plusieurs heures pour atteindre un tel régime. D'autre part, dans le cas où la surface de l'échantillon est insuffisante par rapport à son épaisseur, les pertes latérales peuvent être non négligeables, et le résultat en est ainsi biaisé.

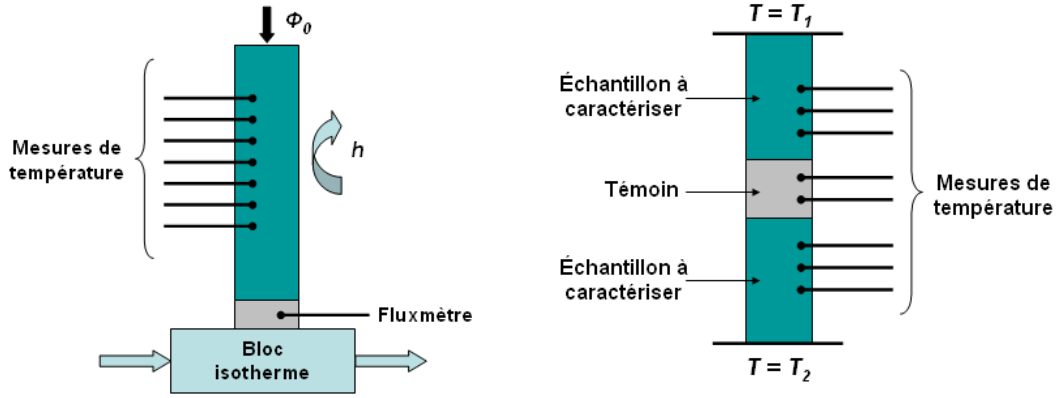
IV.2.1.2. Méthode de la barre [Laubitz 84]

Pour les bons conducteurs, une méthode ancienne consiste à choisir un échantillon d'épaisseur grande devant les dimensions transverses. Dans ce cas, les pertes latérales ne peuvent plus être négligées. La géométrie des matériaux s'apparente à celle d'une barre (Figure IV-3 *a*). Ainsi, le modèle décrivant le transfert thermique au sein de ce type de milieu se ramène au cas de l'ailette, modèle standard en thermique, en régime permanent, soit l'équation IV-14 :

$$\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} - \frac{hm}{\kappa S}(T - T_e) = 0 \qquad \text{Équation IV-14}$$

avec m le périmètre de l'ailette, S sa section, κ la conductivité thermique, h le coefficient de convection et T_e la température extérieure.

h et T_e sont le plus souvent inconnus et plusieurs mesures de température sont nécessaires. La connaissance du flux sur une section de la barre, étant un paramètre difficile à mesurer, on procède en général par comparaison en associant deux échantillons dont l'un est connu (Figure IV-3 *b*), ce dernier sert alors de fluxmètre (appareil de mesure délivrant une tension entre ses deux bornes pendant un transfert thermique).



a) avec fluxmètre *b) avec échantillon de référence*

Figure IV - 3 : Schéma de principe de la méthode de la barre par une mesure de fluxmètre (*a*) et par une mesure d'un échantillon de référence (*b*).

IV.2.2. Les méthodes transitoires

Ces méthodes reposent sur le dépouillement d'un ou plusieurs thermogrammes obtenus par excitation du système. Cette excitation peut être de type flash (correspondant à une impulsion de type Dirac), de type périodique de fréquences prédéfinies ou enfin de type échelon (flux constant). Ces techniques reposent sur l'élaboration d'un modèle le plus souvent analytique appelé modèle direct, qui décrit le transfert au sein du matériau étudié en tenant compte des perturbations extérieures liées au dispositif expérimental. Grâce à ce modèle, on effectue des études de sensibilité afin d'optimiser l'expérience (temps caractéristique de mesure, problème de corrélation entre paramètres, …).

Les principaux avantages de ces méthodes sont d'une part de réduire considérablement la durée des expérimentations (généralement jusqu'à quelques minutes) et, d'autre part, d'accéder à l'estimation de nouveaux paramètres thermiques tels que la capacité thermique massique ou bien encore la diffusivité thermique.

IV.2.2.1. La méthode « flash laser »

Il existe plusieurs méthodes permettant de mesurer la diffusivité thermique. La méthode impulsionnelle, couramment appelée méthode flash [Parker 61], est depuis plusieurs années la plus généralement utilisée (plus de 70 % des mesures actuellement effectuées).

Elle a fait l'objet de nombreux développements liés aux méthodes de calcul et d'estimation de paramètres, aux capteurs, aux dispositifs d'acquisition et de traitement des données. Cette méthode de laboratoire, qui peut être mise en œuvre simplement et sans contact, est de plus en plus utilisée comme outil de contrôle industriel. Son domaine d'application concerne aussi bien les matériaux isolants que les conducteurs dans une large gamme de température (80 K à 2280 K).

La diffusivité thermique caractérise l'aptitude d'un matériau à diffuser la chaleur [Balageas 96], [TI 2950]. C'est une propriété intervenant dans tous les processus de transfert de chaleur en régime non stationnaire, c'est-à-dire pour lesquels la température varie avec le temps. La connaissance de ce paramètre est essentielle pour résoudre de nombreux problèmes de transfert thermique. Elle permet ainsi d'accéder indirectement à la conductivité thermique lorsque la capacité thermique massique C_p et la masse volumique ρ sont connues :

$$\kappa = \beta \rho C_p \qquad \text{Équation IV-15}$$

La méthode flash est certes la technique la plus fréquemment utilisée pour déterminer la diffusivité thermique de matériaux. Cependant, il est important de souligner qu'il s'agit d'une méthode indirecte de mesure de la conductivité thermique : la capacité thermique massique du matériau ainsi que sa densité doivent être parfaitement connues à la température considérée.

Dans son principe, cette méthode consiste à soumettre la face avant d'un échantillon plan à une impulsion de flux de chaleur de courte durée. En face arrière, la réponse en température est enregistrée par l'intermédiaire d'un capteur qui peut être soit un thermocouple (mesure par contact), soit un détecteur infrarouge ou une caméra infrarouge (mesure sans contact). L'échantillon est placé dans un cryostat, une étuve ou un four afin de pouvoir déterminer sa diffusivité thermique à différentes températures.

Dans le cas de matériaux transparents, deux couches en or (ou en laque d'argent) peuvent être déposées sur chacune des faces du matériau. L'objectif est de pouvoir distinguer la conduction thermique du rayonnement issu du laser et du propre rayonnement du matériau. Une couche de graphite ou de peinture noire est déposée sur la face avant de l'échantillon, sur la couche en or : le but est de pouvoir absorber le rayonnement incident.

La figure IV-4 illustre le principe de cette méthode :

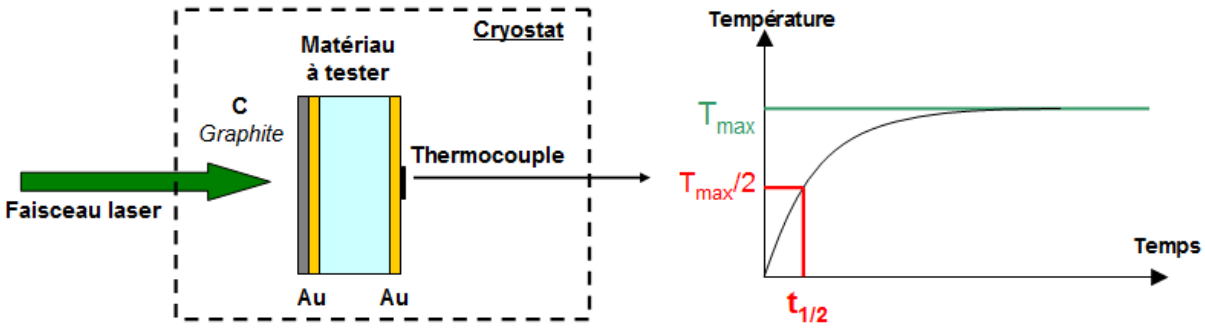


Figure IV - 4 : Représentation de la méthode flash laser et d'un thermogramme obtenu.

L'analyse du thermogramme expérimental enregistré sur la face arrière de l'échantillon et non irradiée permet de déterminer, en utilisant des techniques de dépouillement plus ou moins sophistiquées, la diffusivité thermique de l'échantillon.

La méthode la plus couramment utilisée est celle de Parker. Cette méthode ne s'applique que dans le cas où les pertes thermiques sur les différentes faces de l'échantillon sont négligeables. La diffusivité thermique est calculée à partir du temps $t_{1/2}$ nécessaire pour que la température de la face arrière soit égale à la moitié de la température maximale atteinte :

$$\beta = \frac{1{,}38L^2}{t_{1/2}\pi^2} \qquad \text{Équation IV-16}$$

avec L l'épaisseur de l'échantillon.

Dans le cas idéal où la durée de l'impulsion est négligeable, la distribution du flux homogène et les pertes thermiques négligeables, la température en face arrière (dans une échelle où le zéro est la température initiale), est fonction du seul nombre de Fourier F_0 dont l'expression est la suivante :

$$F_0 = \beta t / L^2 \qquad \text{Équation IV-17}$$

t représente le temps, *L* l'épaisseur de l'échantillon et β est la diffusivité thermique supposée constante pendant la mesure.

Nous avons ainsi la relation :

$$\frac{T(L,t)}{T_{\max}} = F(F_0) = 1 + 2\sum_{n=1}^{\infty}(-1)^n \exp(-n^2\pi^2 F_0) \qquad \text{Équation IV-18}$$

où T_{max} est la température finale atteinte par l'échantillon.

Posons la fonction θ représentative de la courbe d'évolution de la température, et normalisons-la par rapport à la valeur de la température maximale T_{max} atteinte par l'échantillon :

$$\bar{\theta}(t) = \frac{\theta(t)}{T_{\max}} \qquad \text{Équation IV-19}$$

La diffusivité thermique s'exprime suivant l'équation IV-20 :

$$\beta = \frac{L^2}{t} F^{-1}(\bar{\theta}(t)) \qquad \text{Équation IV-20}$$

Avec F^{-1} la fonction inverse de la fonction *F* définie par la série de l'équation IV-18. Cette fonction n'a pas d'expression analytique.

En particulier, lorsque $\bar{\theta} = 0{,}5$, nous obtenons :

$$\beta = \frac{L^2}{t} F^{-1}(0{,}5) \approx 0{,}139 \frac{L^2}{t_{1/2}} \qquad \text{Équation IV-21}$$

Cette expression est représentative de la méthode de Parker [Parker 61] qui consiste à analyser le thermogramme par le seul temps de demi-montée en température.

Concrètement, la méthode n'est pas aussi simple que nous pourrions le penser. En effet, il est toujours difficile d'obtenir expérimentalement les conditions d'essais nécessaires (obtention d'une impulsion de type Dirac, uniformité spatiale du dépôt d'énergie sur la face avant de l'échantillon, notion de pertes thermiques à prendre en considération…). D'autre part, la méthode de Parker ne tient compte que d'un seul point de mesure du thermogramme. Plusieurs études ont été menées afin de trouver des solutions concrètes tenant compte de ces effets parasites. Avant d'analyser les différentes techniques d'identification du thermogramme qui ont été proposées, revenons tout d'abord, sur la notion de pertes thermiques.

IV.2.2.2. Les pertes thermiques

L'existence de pertes thermiques d'origine conductive, radiative ou convective sur les faces de l'échantillon est le phénomène perturbateur le plus gênant. Il est par conséquent primordial de le prendre en considération.

Ces pertes sont représentées par le nombre de Biot B_i. Il représente le rapport entre la résistance thermique interne du système et la résistance thermique externe. La présence ou non de ce phénomène est visible respectivement sur les thermogrammes vert et rouge représentés en figure IV-5. Dans le cas de la présence de pertes thermiques, nous pouvons noter qu'après avoir atteint son maximum, la température ne se stabilise pas et décroît aussitôt.

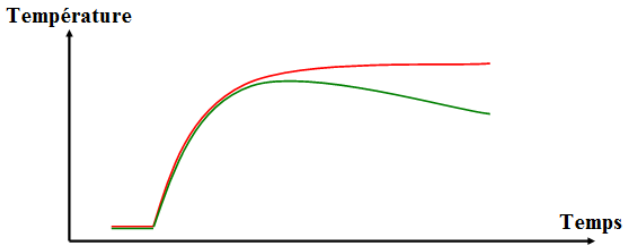


Figure IV - 5 : Influence des pertes thermiques sur l'allure du thermogramme.

IV.2.2.3. Dépouillement des thermogrammes

Degiovanni propose de calculer la diffusivité thermique à partir de trois points particuliers du thermogramme [Degiovanni 77]. Cette méthode est appelée la méthode des temps partiels et est représenté sur la figure IV-6 :

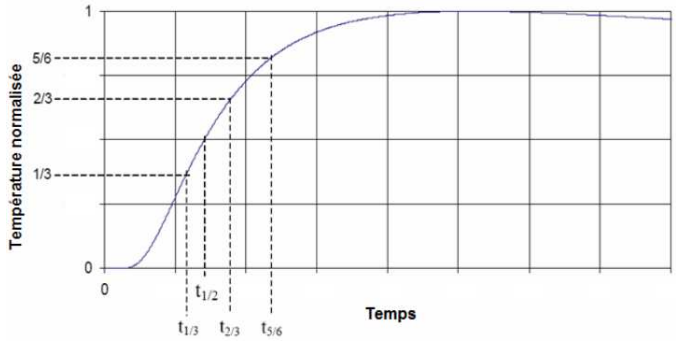


Figure IV - 6 : Thermogramme obtenu par la méthode flash (Méthode des temps partiels).

La diffusivité thermique peut être obtenue par les formules IV-22, IV-23 et IV-24 [Degiovanni 84] :

$$\beta_{2/3} = \frac{L^2}{t_{5/6}}\left(7{,}1793\left(\frac{t_{2/3}}{t_{5/6}}\right)^2 - 11{,}9554\frac{t_{2/3}}{t_{5/6}} + 5{,}1365\right) \qquad \text{Équation IV-22}$$

$$\beta_{1/2} = \frac{L^2}{t_{5/6}}\left(0{,}6148\left(\frac{t_{1/2}}{t_{5/6}}\right)^2 - 1{,}6382\frac{t_{1/2}}{t_{5/6}} + 0{,}968\right) \qquad \text{Équation IV-23}$$

$$\beta_{1/3} = \frac{L^2}{t_{5/6}}\left(1{,}0315\left(\frac{t_{1/3}}{t_{5/6}}\right)^2 - 1{,}8451\frac{t_{1/3}}{t_{5/6}} + 0{,}8498\right) \qquad \text{Équation IV-24}$$

t_i est le temps écoulé depuis l'excitation pour que la température de la face arrière s'élève de i fois son élévation maximale au cours de l'expérience (Figure IV-6).

On retient en général la moyenne des trois valeurs. Cette méthode est plus précise que la méthode de Parker, car elle prend en considération les pertes convectives, mais présente l'inconvénient de n'utiliser qu'un nombre très réduit de points du thermogramme.

Une autre méthode, appelée méthode des moments temporels, a également été proposée par Degiovanni [Degiovanni 86]. L'identification de la diffusivité thermique se fait à partir des moments d'ordre 0 et -1 de la température calculés entre les temps $t_{0,1}$ et $t_{0,8}$ correspondant respectivement à T/T_{max}= 0,1 et 0,8 :

$$M_0 = \int_{t_{0,1}}^{t_{0,8}} \frac{T(t)}{T_{\max}} dt \qquad \text{Équation IV-25}$$

$$M_{-1} = \int_{t_{0,1}}^{t_{0,8}} \frac{T(t)}{T_{\max}} \frac{1}{t} dt \qquad \text{Équation IV-26}$$

La diffusivité thermique s'exprime par la relation :

$$\beta = L^2 \frac{F(M_{-1})}{M_0} \qquad \text{Équation IV-27}$$

avec $F(M_{-1}) = 0{,}08548 - 0{,}314(0{,}5486 - M_{-1}) + 0{,}5(0{,}5486 - M_{-1})^{2{,}63}$ pour $M_{-1} > 0{,}27$,

et $F(M_{-1}) = -0{,}0819 + 0{,}305 M_{-1}$ pour $M_{-1} > 0{,}44$.

IV.2.2.4. . Modélisation 1D du transfert de chaleur : modèle des quadripôles

Il existe un modèle de modélisation des transferts de chaleur dans un matériau, appelé modèle des quadripôles [Maillet 00].

Avant de s'intéresser à la modélisation de la méthode flash laser, considérons tout d'abord la modélisation monodimensionnelle du transfert de chaleur dans un mur d'épaisseur L et de dimensions latérales suffisamment grandes pour que l'on puisse considérer que le transfert de chaleur φ est unidirectionnel (Figure IV-7). Supposons également que le flux radiatif absorbé sur toute la surface de l'échantillon est uniforme et que le coefficient d'échange convectif est identique sur toutes les faces.

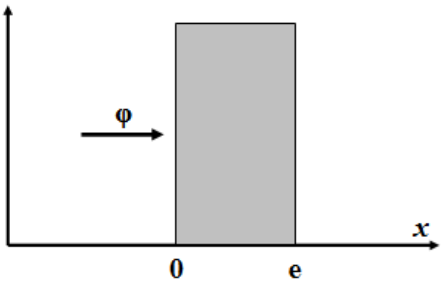


Figure IV - 7 : Représentation d'un écoulement unidirectionnel dans un mur plan.

L'équation de la chaleur s'écrit :

$$\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = \frac{1}{\beta}\frac{\partial T}{\partial t} \qquad \text{Équation IV-28}$$

Notons, tout d'abord, $\theta(x,p)$ la transformée de Laplace de la température $T(x,t)$ et $\Phi(x,p)$ la transformée de Laplace du flux de chaleur $\varphi(x,t)$. En appliquant la transformée de Laplace à l'équation IV-28, et en supposant que $T(x,0) = 0$, nous obtenons :

$$\frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2} = \frac{p}{\beta}\theta \qquad \text{Équation IV-29}$$

L'équation IV-29 admet une solution unique de la forme :

$$\theta(x,p) = k_1(p)ch(qx) + k_2(p)sh(qx) \qquad \text{Équation IV-30}$$

$$\text{avec } q^2 = \frac{p}{\beta} \qquad \text{Équation IV-31}$$

La transformée de Laplace du flux en un point quelconque de l'échantillon s'écrit :

$$\Phi(x,p) = L[-\kappa S\frac{\partial T}{\partial x}(x,t)] = -\kappa S L[\frac{\partial T}{\partial x}(x,t)] = -\kappa S\frac{d\theta}{dx}(x,p) \qquad \text{Équation IV-32}$$

Cette relation permet d'exprimer $\Phi(x,p)$ en fonction des trois variables $k_1(p)$, $k_2(p)$ et x :

$$\Phi(x,p) = -\kappa S k_1 q sh(qx) - \kappa S k_2 q ch(qx) \qquad \text{Équation IV-33}$$

Pour $x = 0$ et $x = e$, les équations IV-30 et IV-33 s'écrivent :

$$\theta(0,p) = k_1$$

$$\theta(e,p) = k_1 ch(qe) + k_2 sh(qe)$$

$$\Phi(0,p) = -\kappa S k_2$$

$$\Phi(e,p) = -\kappa S k_1 q sh(qe) - \kappa S k_2 q ch(qe)$$

En éliminant les deux constantes k_1 et k_2, il est possible d'exprimer chacun des paramètres des équations précédentes par une matrice appelée matrice quadripolaire :

$$\begin{bmatrix} \theta(0,p) \\ \Phi(0,p) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} ch(qe) & \frac{1}{\kappa q S} sh(qe) \\ \kappa q S sh(qe) & ch(qe) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta(e,p) \\ \Phi(e,p) \end{bmatrix} \qquad \text{Équation IV-34}$$

La propriété d'avoir le déterminant de cette matrice égal à 1 permet d'établir la relation réciproque, à savoir :

$$\begin{bmatrix} \theta(e,p) \\ \Phi(e,p) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} ch(qe) & -\frac{1}{\kappa q S} sh(qe) \\ -\kappa q S sh(qe) & ch(qe) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta(e,p) \\ \Phi(e,p) \end{bmatrix} \qquad \text{Équation IV-35}$$

Dans le cas de la méthode flash laser, des pertes thermiques peuvent être présentes : les notions de convection et de rayonnement sont à prendre en considération. Cette méthode est représentée sur la figure IV-8 :

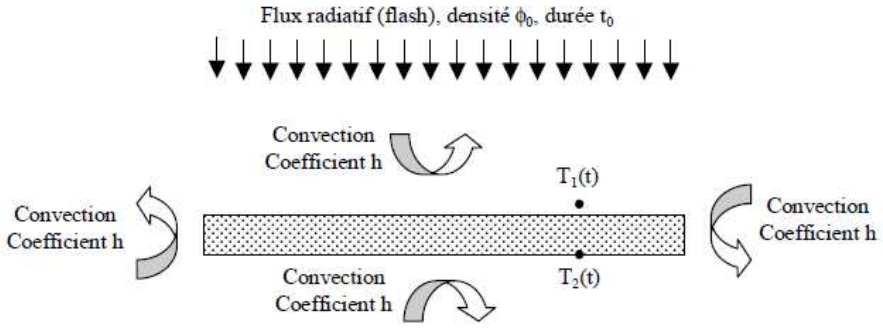


Figure IV - 8 : Schématisation du flux de chaleur dans la méthode flash.

Mise à part la présence du phénomène de convection, le schéma de principe est similaire à celui décrit pour le cas d'un mur plan. En appliquant la méthode des quadripôles, nous obtenons une relation de la température en face arrière de l'échantillon, dans l'espace de Laplace [Jannot 08] :

$$\theta_2(p) = \frac{\varphi_0}{p} \frac{1-\exp(-pt_0)}{\kappa qS\sinh(qe) + 2\cosh(qe)h + (\frac{1}{\beta qS}\sinh(qe))h^2} \qquad \text{Équation IV-36}$$

En prenant le cas simplifié d'un thermogramme normalisé, et en appliquant la méthode des moments temporels [Degiovanni 86], l'expression précédente peut être simplifiée : la température en face arrière de l'échantillon, face à une excitation sous forme de flash s'exprime selon l'équation IV-37 [Jannot 08] :

$$\theta(p) = \frac{1}{q\sinh(qe) + 2\frac{B_i}{e}\cosh(qe) + \frac{B_i^2}{qe^2}\sinh(qe)} \qquad \text{Équation IV-37}$$

avec B_i le nombre de Biot. Rappelons que $B_i = \frac{he}{\kappa}$.

La méthode des quadripôles sert essentiellement à modéliser le thermogramme expérimental obtenu. Cependant, elle requiert une étude paramétrique pour déterminer les paramètres du nombre de Biot B_i et la diffusivité thermique β (présent dans le paramètre q).

IV.2.3. Les méthodes en régime quasi-établi

Cette métrologie de type sonde à chocs correspond à une excitation (résistance chauffante) et une mesure (thermocouple) pratiquées au même endroit. De nombreuses méthodes en régime quasi-établi ont été développées : la méthode de la plaque chaude, la méthode du

ruban chaud, la méthode de la pastille,… [Jannot 08]. Nous avons choisi de ne présenter dans cette partie que les méthodes du plan chaud, du fil chaud et du disque chaud. L'avantage de ces méthodes, comparées à la méthode flash laser, est que la mesure de la conductivité thermique est directe : la connaissance des paramètres de capacité thermique massique et de densité n'est pas indispensable à la détermination de ce paramètre.

IV.2.3.1. La méthode du fil chaud

De part sa simplicité de mise en œuvre, cette méthode est la plus couramment utilisée dans le cadre des mesures en régime quasi-établi. Elle permet de mesurer la conductivité thermique de tout type de milieu.

Le dispositif expérimental se compose d'un fil métallique, plongé dans le liquide ou placé simplement entre deux blocs du matériau étudié. A l'aide d'un générateur électrique, on impose aux bornes du fil résistif une tension constante. Le fil s'échauffe par effet Joule et l'évolution de la température est mesurée au cours du temps, soit au centre du fil à l'aide d'un thermocouple, soit par la variation de la résistance du fil.

Pendant le temps où la perturbation n'a pas atteint les autres faces des échantillons (l'hypothèse du milieu semi-infini est valide), le transfert de chaleur au centre de l'échantillon, autour du fil, est considéré comme étant radial.

Un milieu semi-infini est défini comme étant une paroi d'épaisseur suffisamment grande pour que la perturbation appliquée sur une face ne soit pas ressentie par l'autre face. La modélisation de ce transfert de chaleur permet de calculer l'évolution de la température au centre de l'échantillon.

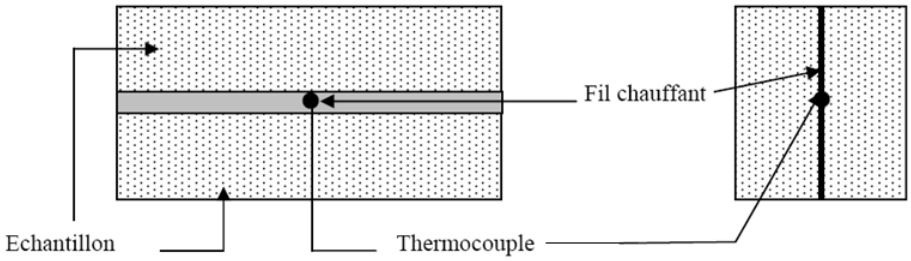


Figure IV - 9 : Schéma du montage de la méthode du fil chaud.

Rappelons que cette méthode de mesure de conductivité thermique peut être appliquée aussi bien pour des solides que pour des liquides. Dans le cas des solides indéformables, le fil chauffant est inséré entre deux feuilles polyimides très minces. Un thermocouple plat est inséré au centre du fil chauffant.

La mise en œuvre de la méthode nécessite une alimentation stabilisée et un dispositif d'enregistrement de la tension mesurée aux bornes du thermocouple. Un enregistrement d'une durée de 120 secondes après le début du chauffage est en général suffisant pour déterminer la conductivité thermique avec une bonne précision.

IV.2.3.2. La méthode du disque chaud [Hot Disk]

C'est une méthode en régime transitoire utilisant une sonde de forme cylindrique constituée d'une résistance de nickel sous forme d'un ruban enroulé en spirale sur un support souple polyimide (Figure IV-10).

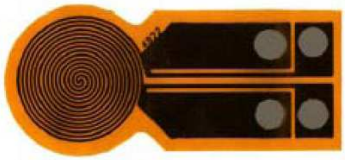


Figure IV - 10 : Vue d'une sonde « hot disk ».

La sonde est insérée entre deux échantillons identiques du matériau à caractériser. La résistance de nickel est utilisée à la fois pour produire un flux de chaleur et pour mesurer la température moyenne du disque. Comme pour la méthode du fil chaud, une tension constante est appliquée à la sonde. La résistance s'échauffe et l'évolution de la température est mesurée au cours du temps. Les dimensions du matériau doivent être suffisantes pour pouvoir faire l'hypothèse du milieu semi-infini.

D'une manière générale, le mode de fonctionnement de la méthode du fil chaud et de la méthode dite du « hot disk » est le même. La différence réside dans le fait que la mesure en température est locale pour le fil chaud (thermocouple placé au centre du fil) et qu'elle est moyennée sur toute la surface du disque « hot disk » (par mesure de variation de résistance ohmique de la piste).

IV.2.3.3. La méthode du plan chaud semi-infini [Jannot 08]

Cette méthode peut être mise en œuvre de manière extrêmement simple en utilisant une résistance chauffante plate (rectangulaire ou circulaire) de surface suffisante (au moins 25 cm^2). Au centre de cette résistance, un thermocouple réalisé en fils fins (diamètre inférieur à 0,2 mm) est fixé : les deux fils séparés du thermocouple sont posés sur la résistance à une distance d'environ 5 mm puis recouvert d'un film adhésif en aluminium qui assurera à la fois un bon contact entre le thermocouple et la résistance, le contact électrique entre les deux fils du thermocouple (dit dans ce cas à contacts séparés) et une homogénéisation de la température au voisinage du thermocouple.

Un échelon de flux de chaleur constant est appliqué à la résistance chauffante et l'évolution de la température est relevée au centre de cette même résistance dans ou sur laquelle a été placé le thermocouple. Pendant le temps où la perturbation n'a pas atteint les autres faces, c'est-à-dire dans l'hypothèse du milieu semi-infini, le transfert au centre de l'échantillon est considéré comme étant unidirectionnel. La modélisation de ce transfert de chaleur permet de calculer l'évolution de la température au centre de l'échantillon. Une méthode d'estimation de paramètres est utilisée pour calculer les valeurs de l'effusivité thermique (l'effusivité thermique étant la racine carrée du produit de la conductivité thermique, de la densité et de

la masse volumique du matériau), de la capacitance thermique de l'ensemble sonde et résistance chauffante, et de la résistance de contact à l'interface sonde/échantillon qui minimisent l'écart entre les courbes théoriques et expérimentales

La mise en œuvre de la méthode nécessite en outre une alimentation stabilisée et un dispositif d'enregistrement de la tension mesurée aux bornes du thermocouple. Un enregistrement d'une durée de 60 secondes après le début du chauffage permet d'obtenir une bonne précision sur l'effusivité thermique.

IV.3 Dépendance de la conductivité thermique suivant divers paramètres

IV.3.1. Influence de la température sur la mesure de la conductivité thermique

De nombreuses publications montrent la dépendance de la conductivité thermique avec la température [Slack 71], [Numazawa 01], [Fan 07].

Des mesures de ce paramètre thermique ont été effectuées sur différents matériaux comme le YAG ou bien encore le sesquioxyde d'yttrium, et confirment cette relation entre conductivité thermique et température pour des températures allant de 100 à 300 K [Klein 67], [Fan 07]. Pour une céramique sesquioxyde d'yttrium Y_2O_3 non dopée, Fan *et al.* mesurent des valeurs de conductivité thermique de 52 W/m.K à 90 K et de 13 W/m.K à 298 K. Nous pouvons alors constater que la conductivité thermique est quatre fois plus importante à 90 K qu'à température ambiante.

En utilisant une méthode de mesure stationnaire, Slack *et al.* ont également effectué des mesures de conductivité thermique de différents grenats et ont montré que cette dernière atteint un maximum situé aux alentours de 30 K, puis chute drastiquement pour tendre vers zéro lorsque la température se rapproche du zéro absolu [Slack 71]. La figure IV-11 montre l'évolution de la conductivité thermique de quatre échantillons de YAG monocristallins en fonction de la température :

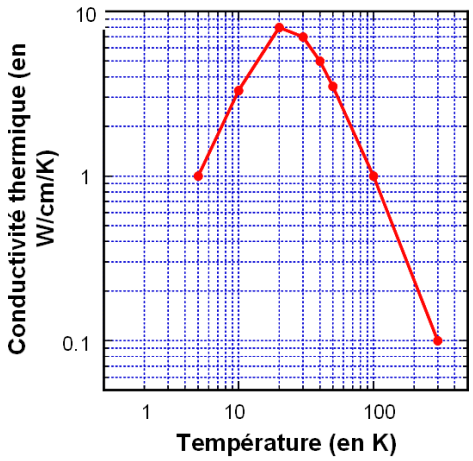


Figure IV - 11 : Conductivité thermique du YAG en fonction de la température [Slack 71].

IV.3.2. Dépendance de la conductivité avec le taux de dopage et de la taille du grain

Nous allons tout d'abord donner un aperçu théorique des mécanismes physiques à l'origine de la propagation de la chaleur dans les milieux non métalliques. Il s'agit de dégager les principaux paramètres physico-chimiques déterminant les propriétés de conduction thermique afin d'établir une corrélation simple entre la structure du matériau et sa conductivité thermique.

Dans les solides denses, le transfert de chaleur fait intervenir la conduction et le rayonnement. L'échange par conduction peut se diviser en deux contributions. Les électrons qui participent aux transferts de charge dans le solide contribuent au transport d'énergie thermique. A ce mouvement électronique, il faut ajouter le transfert thermique lié aux vibrations des atomes. Ces mouvements vibratoires peuvent être décrits par des ondes élastiques auxquelles on associe des quasi-particules : les phonons. Le rayonnement, qui ne nécessite aucun support matériel, est quant à lui associé à des quasi-particules appelées photons qui quantifient l'énergie électromagnétique. Le transport d'énergie thermique dans les solides est donc assuré par les électrons, les phonons et les photons.

Dans le cas des matériaux céramiques à température ambiante, le transfert thermique est essentiellement assuré par les phonons.

IV.3.2.1. Les vibrations du réseau

Dans la matière cristallisée, les atomes vibrent autour de leur position d'équilibre. Les atomes étant liés entre eux, leurs vibrations sont couplées à celles de leurs voisins. Les vibrations du réseau peuvent être exprimées en résolvant les équations du mouvement pour des ondes élastiques. Les modes normaux sont caractérisés par leur pulsation ω et le vecteur d'onde, qui indique la direction de propagation de l'onde, $\vec{k} = 2\pi / \lambda$ où λ est la longueur d'onde. La relation liant ω et k s'appelle la relation de dispersion.

Dans la région des grandes longueurs d'onde ($a << \lambda$, avec a représentant la distance interatomique), le milieu est considéré comme un continuum. Les oscillations du réseau étant assimilées à des ondes acoustiques, par définition, une relation linéaire lie ω à k :

$$\omega = v_{son} k \qquad \text{Équation IV-38}$$

où v_{son} est la vitesse du son dans le cristal.

La relation de dispersion n'a de signification physique que dans la zone où les vecteurs d'onde sont compris entre $-\pi/a$ et $+\pi/a$, zone également appelée zone de Brillouin. Cette approximation n'est plus valable lorsque la longueur d'onde diminue.

Par analogie aux photons quantifiant l'énergie d'une onde électromagnétique, les phonons quantifient l'énergie des vibrations élastiques du réseau cristallin. Les valeurs d'énergie permises sont données par l'équation suivante :

$$E = \hbar\omega(n + \frac{1}{2}) \qquad \text{Équation IV-39}$$

avec $\hbar = \frac{h}{2\pi}$, h constante de Planck. n est un nombre entier positif.

Avant d'étudier le cas de la conductivité thermique, nous allons voir que la théorie de vibration du réseau cristallin trouve son application dans le calcul de la capacité thermique massique.

IV.3.2.2. Contribution des phonons à la capacité thermique massique

La capacité thermique à volume constant est donnée par la relation :

$$C = \left[\frac{\partial U}{\partial T}\right]_V \qquad \text{Équation IV-40}$$

où U est l'énergie interne du réseau cristallin, T est la température du matériau.

Dans un solide, l'énergie interne est exprimée essentiellement sous deux formes : l'énergie thermique du réseau cristallin qui est due aux vibrations des atomes autour de leur position d'équilibre et l'énergie cinétique des électrons. Dans le cas des matériaux céramiques, nous ne considérons que la contribution des phonons. L'énergie interne du cristal est alors donnée par l'équation IV-41 :

$$U = \int d\omega D(\omega) N(\omega) \hbar\omega \qquad \text{Équation IV-41}$$

où $D(\omega)$ représente la densité d'états vibrationnels à la pulsation ω et $N(\omega)$ la population de phonons qui occupe le mode ω.

Les phonons obéissent à la statistique de Bose-Einstein et leur population, à l'équilibre thermique, est donnée par la formule de Planck :

$$N(\omega) = \frac{1}{\exp(\frac{\hbar\omega}{k_B T}) - 1} \qquad \text{Équation IV-42}$$

où k_B est la constante de Boltzmann.

Dans l'approximation de Debye, le cristal est un milieu continu, la vitesse des ondes élastiques dans le cristal est indépendante de la fréquence ω. La densité des états vibrationnels peut alors être calculée. Dans le cas d'un cristal monoatomique, cubique, de dimension L avec certaines conditions aux limites, l'énergie interne devient [Kittel 83] :

$$U = 3\int_0^{\omega_D} \frac{\hbar\omega}{\exp(\frac{\hbar\omega}{k_B T}) - 1} \frac{1}{2\pi^2} \frac{\omega^2 L^3}{v_{son}} d\omega \qquad \text{Équation IV-43}$$

où ω_D est la pulsation limite de Debye, au-delà de laquelle les modes de vibration ne sont pas occupés.

Finalement la capacité thermique massique *C* s'écrit:

$$C = 9Nk_B(\frac{T}{\theta_D})^3 \int_0^{x_D} \frac{x^4 \exp(x)}{(\exp(x)-1)^2} dx \qquad \text{Équation IV-44}$$

en posant, $x = \frac{\hbar\omega}{k_B T}$ et θ_D la température de Debye, telle que :

$$\theta_D = \frac{\hbar\omega_D}{k_B} = \frac{\hbar v_{son}}{k_B}(\frac{6\pi^2 N}{L^3})^{1/3} \qquad \text{Équation IV-45}$$

avec *N* le nombre de mailles dans le cristal.

Il est intéressant de noter que la capacité thermique massique ne dépend que d'un seul paramètre du cristal, à savoir la température de Debye. Aux très basses températures, nous pouvons simplifier l'équation IV-44 en faisant tendre la borne supérieure de l'intégrale vers l'infini. Ainsi, lorsque la température est très inférieure à la température de Debye, l'expression de la capacité thermique du réseau devient :

$$C \approx \frac{12\pi^4}{5} Nk_B(\frac{T}{\theta_D})^3 \qquad \text{Équation IV-46}$$

Ceci met en évidence l'approximation en T^3 de Debye aux basses températures.

IV.3.2.3. Expression théorique de la conductivité thermique

Dans un matériau non métallique, le flux de chaleur dans la direction *x* est la somme des énergies transportées par chaque mode de vibration.

$$q = \sum_{k,j} N_j(k)\hbar\omega_j(k)(v_j(k)) \qquad \text{Équation IV-47}$$

où *q* est la densité de flux de chaleur, $N_j(k)$ est la population de phonons à l'état *j* et $v_j(k)$ est la vitesse de groupe.

La conductivité thermique s'exprime par l'équation IV-48 :

$$\kappa = \frac{1}{3}\sum_{k,j} \tau_j(k) v_j^2(k) C_j(k) \qquad \text{Équation IV-48}$$

où τ_j est le temps de relaxation traduisant le retour de $N(k)$ à sa position d'équilibre selon une loi exponentielle. $C_j(k)$ correspond à la contribution à la chaleur spécifique volumique du mode ω_j. En considérant que la vitesse de groupe et le temps de relaxation sont indépendants de ω, l'équation précédente se simplifie et s'écrit :

$$\kappa = \frac{1}{3}\tau v^2 C \qquad \text{Équation IV-49}$$

avec $C = \sum_{k,j} C_j(k)$.

Notons *l* le libre parcours moyen des phonons, c'est-à-dire la distance moyenne parcourue par un phonon entre deux collisions successives. En posant $l(x) = v\tau(x)$, nous avons la relation [Kittel 83] :

$$\kappa = \frac{1}{3} lvC \qquad \text{Équation IV-50}$$

Une équation plus générale de la conductivité thermique s'exprime par l'équation IV-51 :

$$\kappa = \frac{1}{3} \int_0^{\omega_D} l(\omega) v(\omega) c(\omega) d\omega \qquad \text{Équation IV-51}$$

$c(\omega)d\omega$ représente la contribution à la capacité thermique des modes de vibration dont la fréquence est comprise entre ω et $\omega+d\omega$, $v(\omega)$ est la vitesse du son, l(ω) est le libre parcours moyen des phonons et ω_D est la fréquence de Debye.

En remplaçant le terme de la capacité thermique par l'équation IV-44, nous obtenons l'expression de la conductivité thermique suivante :

$$\kappa = \frac{k_B L^3}{\pi^2 v_{son}} \left(\frac{k_B T}{\hbar}\right)^3 \int_0^{\theta_D / T} \frac{x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} \tau(x) dx \qquad \text{Équation IV-52}$$

Cette équation est représentative du modèle de Klemens-Callaway [Numazawa 01].

IV.3.2.4. La diffusion des phonons dans les matériaux

Le cristal peut être modélisé comme étant un ensemble d'oscillateur harmonique qui vibre en phase. En ne considérant que ce modèle, le phénomène de conductivité thermique ne peut pas s'expliquer. Si les forces interatomiques étaient purement harmoniques, il n'y aurait pas de mécanisme de collision entre phonons et le libre parcours moyen ne serait limité que par les collisions des phonons avec les défauts cristallins ou les limites du cristal. Dans certains cas, ces effets sont prépondérants. Dans les interactions anharmoniques, le couplage entre les différents phonons limite la valeur du libre parcours moyen. Ce terme d'anharmonicité due aux interactions entre phonons va permettre de décrire le phénomène de conductivité thermique.

Pour que la conductivité thermique soit possible, il faut qu'il y ait dans le cristal des mécanismes par lesquels la distribution des phonons peut être localement mise en équilibre thermique. Sans ces mécanismes, nous ne pourrions pas dire qu'à une extrémité du cristal les phonons sont en équilibre thermique à une température T_2, et à une température T_1 à l'autre extrémité.

Lorsque deux phonons se rencontrent, ils peuvent être soumis à deux types de processus : les processus dit « normaux » et les processus appelés « Umklapp ».

Considérons la figure IV-12 représentant les processus normaux pour un processus de collision à trois phonons :

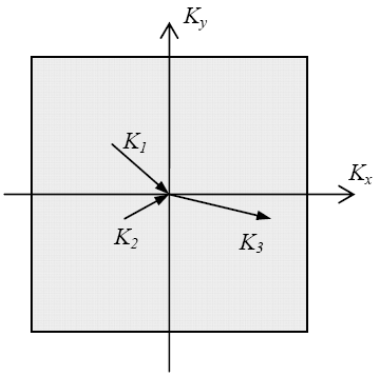


Figure IV - 12 : Mécanisme de collision, de types normaux, entre phonons dans un réseau carré, en deux dimensions. Le carré grisé représente la première zone de Brillouin ; cette zone contient toutes les valeurs indépendantes possibles du vecteur d'onde des phonons.

Ce processus traduit la conservation de l'énergie et de l'impulsion par les équations :

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 \qquad \text{Équation IV-53}$$

$$\text{et } \vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3 \qquad \text{Équation IV-54}$$

Les indices 1 et 2 sont attribués aux phonons incidents et l'indice 3 au phonon résultant de la collision.

Les processus dits « Umklapp » ou phonons rétrodiffusés sont schématisés sur la figure IV-13, pour un processus de collision à trois phonons :

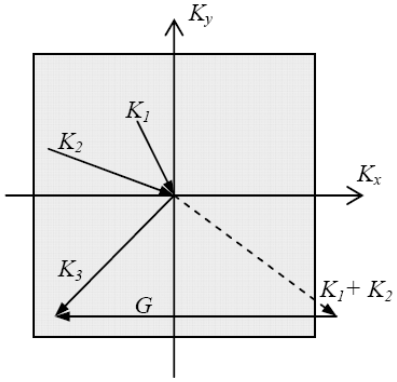


Figure IV - 13 : Mécanisme de collision, de types Umklapp, entre phonons dans un réseau carré, en deux dimensions. Le carré grisé représente la première zone de Brillouin ; cette zone contient toutes les valeurs indépendantes possibles du vecteur d'onde des phonons.

Ce processus est caractérisé par les deux équations :

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 \qquad \text{Équation IV-55}$$

$$\text{et } \vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3 + \vec{G} \qquad \text{Équation IV-56}$$

avec $\left|\vec{G}\right| = \pm\frac{2\pi}{a}$, appelé vecteur de réciprocité.

Des processus pour lesquels la variation du vecteur d'onde total n'est pas nulle mais égale à un vecteur du réseau réciproque sont toujours possibles dans un réseau périodique. L'argument est particulièrement important pour les phonons : les seuls vecteurs d'onde de phonons significatifs *k* se situent à l'intérieur de la première zone de Brillouin et tout autre vecteur *k* de plus grande amplitude, produit lors d'une collision doit être ramené à l'intérieur de cette zone par addition d'un vecteur *G*.

Les processus ou les collisions pour lesquelles $G \neq 0$ sont appelés processus Umklapp. Ce terme correspond au fait qu'une collision entre deux phonons tous deux de vecteurs d'onde *k* positifs peut, par processus Umklapp, donner après collision un phonon de vecteur d'onde *k* négatif. Les processus Umklapp sont aussi appelés mécanismes *U*. Les collisions pour lesquelles $G = 0$, sont appelées mécanismes normaux ou mécanismes *N*.

Aux basses températures, les vibrations du réseau sont faibles et les processus Umklapp ont peu de chances de se produire. Le libre parcours moyen des phonons est limité par les dimensions du cristal. La conductivité thermique varie comme la chaleur spécifique en T^3. Aux hautes températures, nous considérons que seuls les processus Umklapp contribuent à la résistance thermique. La capacité thermique est constante, par conséquent, la conductivité thermique varie comme le libre parcours moyen en *1/T*.

Enfin, il existe d'autres mécanismes de diffusion de phonons susceptibles d'affecter la conduction de la chaleur. Nous pouvons en particulier évoquer la diffusion sur les défauts cristallins qui peuvent être de différentes natures (défauts ponctuels, dislocations, …). Les limites géométriques du matériau peuvent également limiter la longueur de diffusion des phonons, et par ce biais, contribuer à la diminution du libre parcours moyen.

La plupart des céramiques sont des matériaux polycristallins. Il faut donc tenir compte de la complexité du matériau pour discuter de sa conductivité thermique. En effet les impuretés, les joints de grains et la porosité font diminuer la conductivité thermique globale des matériaux. Dans le cadre de notre étude, nous ne détaillerons que les deux premiers points de ces effets parasites.

IV.3.2.5. Fonction du taux de dopage

La conductivité thermique est différente dans une même matrice cristalline selon le taux de dopage : elle décroît lorsque le taux de dopage augmente. Ce phénomène est dû au désordre créé dans la matrice par l'ajout d'ions étrangers.

Gaumé a proposé un modèle qui, à partir du modèle de Klemens-Callaway, permet d'expliquer théoriquement ce comportement [Gaumé 02], [Gaumé 03]. La conductivité thermique du matériau est déterminée suivant la relation :

$$\kappa = \frac{1}{\pi a}\sqrt{\frac{2k_B \upsilon_{son}\kappa_0}{\delta}}\,Arc\tan\left(\pi a\sqrt{\frac{\kappa_0\delta}{2k_B\upsilon_{son}}}\right) \qquad \text{Équation IV-57}$$

avec :

$$\delta = \sum_i c_i (\frac{M_i - M}{M})^2 \ , \ M = \sum_i c_i M_i \ \text{ et } \ a = 2\left[\frac{3V_m}{4\pi ZN}\right]^{1/3} \qquad \text{Équation IV-58}$$

a est la distance entre proches voisins, V_m est le volume de la maille, Z le nombre d'unités formulaires par maille, et N le nombre d'atome par unité formulaire.

δ représente la variance de masse des ions M_i et de probabilité d'occupation du site de substitution c_i. Gaumé suppose que les propriétés des constituants élémentaires du matériau sont pondérées par les coefficients c_i.

Le calcul de la conductivité thermique, suivant ce modèle, nécessite la parfaite connaissance de la conductivité thermique du matériau non dopé et la vitesse du son à une température donnée.

D'autre part, pour de faibles taux de substitution, et de faibles différences de masses entre l'ion substitué et l'ion ytterbium, le terme de l'arc tangente est petit : l'influence de la substitution sur le calcul de la conductivité thermique est alors négligeable.

En utilisant le modèle de Gaumé, pour un échantillon de Yb : Y_2O_3, et en supposant une valeur de conductivité thermique du sesquioxyde d'yttrium non dopé à 13 W/m.K, nous obtenons la courbe de conductivité thermique en fonction du taux de dopage en ion ytterbium (Figure IV-14) :

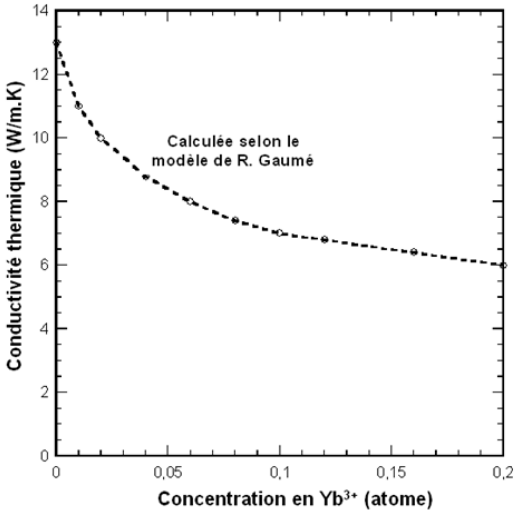


Figure IV - 14 : Conductivité thermique du sesquioxyde Y_2O_3 en fonction du taux de dopage.

Lors de nos mesures expérimentales, nous ferons une comparaison entre les valeurs de conductivités thermiques mesurées et celles estimées par ce modèle.

IV.3.2.6. Fonction de la taille et des joints de grains

Les effets géométriques peuvent également intervenir notablement pour limiter le libre parcours moyen et donc la conductivité thermique du réseau cristallin. Nous devons considérer la diffusion des phonons par les faces et interfaces des cristaux, la présence des

impuretés, … A basse température, quand le libre parcours moyen *l* devient comparable à la largeur de l'échantillon, la valeur de *l* est limitée par cette largeur et la conductivité thermique devient fonction des dimensions de l'échantillon.

Comme nous l'avons détaillé dans la partie précédente, la décroissance brutale de la conductivité thermique des cristaux purs à faible température est essentiellement due à l'effet de taille : à basse température, les processus Umklapp ne limitent plus la conductivité thermique et l'effet de taille devient prépondérant.

En reprenant le raisonnement précédemment décrit, nous pouvons décrire le comportement de la conductivité thermique selon trois façons suivant les intervalles de températures considérés :

- Pour les hautes températures, lorsque la température est supérieure à la température de Debye, d'une part la capacité thermique massique devient quasiment indépendante de la température et d'autre part, le libre parcours moyen des phonons de haute énergie (c'est-à-dire pouvant produire des collisions Umklapp) est inversement proportionnel à la température. La conductivité thermique est alors équivalente à un comportement inversement proportionnel à la température.
- Pour des températures plus basses, le nombre de phonons de haute énergie se comporte, d'après la loi de Boltzmann, comme $exp(-\theta_D/2T)$ et la conductivité thermique suit la même évolution.
- Enfin, aux très basses températures, pour des températures inférieures à la température de Debye, le libre parcours moyen des phonons est limité par l'effet de taille et devient indépendant de la température alors que la capacité thermique massique du réseau cristallin varie en T^3. Ce dernier phénomène explique la chute brutale de la conductivité thermique à basse température que nous pouvons constater sur la figure IV-9.

Numazawa utilise le modèle de Callaway pour exprimer la dépendance de la conductivité thermique en fonction de la température mais aussi en fonction de la taille des grains que ce soit pour un monocristal ou une céramique [Numazawa 01].

Yagi *et al.* ont mesuré la conductivité thermique du YAG en fonction de la température. En particulier, ils ont comparé la conductivité thermique de trois céramiques transparentes YAG selon trois tailles de grains différents (3, 4 et 7,5 µm) et un monocristal YAG [Yagi 07]. Les résultats sont représentés sur la figure IV-15 :

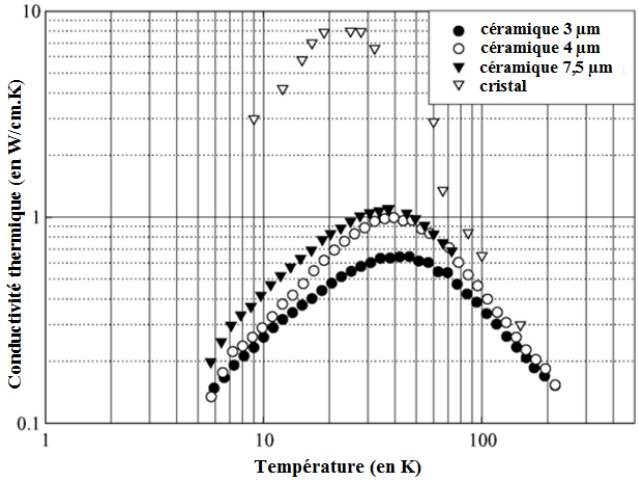


Figure IV - 15 : Conductivité thermique du YAG sous forme de céramique transparente et de monocristal en fonction de la taille des grains et de la température [Yagi 07].

La figure IV-15 montre que pour des températures supérieures à 100 K, les conductivités thermiques mesurées sur les échantillons sont semblables. Pour des températures inférieures à 100 K, des différences commencent à apparaître. A 25 K, la conductivité thermique du YAG monocristallin est sept fois plus grande que la conductivité thermique de la céramique YAG ayant une taille de grain de 7,5 µm.

A basse température, la conductivité thermique d'un monocristal est donc plus grande que celle d'une céramique. Deux raisons expliquent ce phénomène. La première est que comparé à la structure ordonnée d'un monocristal, des impuretés peuvent exister dans la céramique : le phénomène de diffusion des phonons à la surface des grains apparaît. La deuxième raison s'explique par le libre parcours moyen des phonons à l'intérieur même du monocristal ou de la céramique. A basse température, le libre parcours moyen des phonons dans la céramique devient plus long que le grain monocristallin : la probabilité pour qu'un phonon « sorte » du grain, dans le cas d'une céramique est donc plus faible, la chaleur se déplace moins vite dans le matériau, et par conséquent la conductivité thermique est moins importante pour une céramique que pour un monocristal.

Les valeurs maximales de conductivité thermique pour les céramiques YAG pour des tailles de grain de 3, 4 et 7,5 µm sont respectivement de 0,64, 0,99, et 1,1 W/cm.K, pour des températures respectives de 46, 39 et 37 K. Ainsi, la conductivité thermique augmente avec la taille du grain.

IV.4 Mesure de la conductivité thermique à température ambiante

Les mesures de conductivité thermique sont difficiles à mettre en œuvre pour nos échantillons du fait de leurs transparences et de leurs petites dimensions. Par ailleurs, les valeurs de conductivité thermique de ces matériaux sont quasiment inexistantes dans la littérature, et plus particulièrement à basse température.

La méthodologie adaptée dans le cadre de ces mesures est de réaliser dans un premier temps, des mesures de conductivité thermique à température ambiante sur des matériaux connus de type YAG ou Y_2O_3 : le but étant de valider les résultats trouvés en les comparants avec ceux de la littérature. Dans un second temps, nous nous approprierons la métrologie pour l'adapter à notre système cryogénique et ainsi faire des mesures à basse température.

Cette partie est divisée en trois points. Dans un premier temps, nous introduirons les notions de transparence et de conductivité thermique apparente. Nous présenterons ensuite les mesures indirectes de la conductivité thermique par la méthode flash laser. Enfin, nous montrerons les résultats expérimentaux obtenus par la méthode de la sonde annulaire sur des échantillons de verre phosphate dopé néodyme à basse température. Nous nous proposons de montrer, pour chacune de ces méthodes, leurs avantages mais également leurs limites.

IV.4.1.Les échantillons : notion de transparence et de conductivité thermique apparente

Les matériaux testés sont de même nature que ceux utilisés pour les mesures du coefficient de dilatation et du coefficient thermo-optique *dn/dT*. Il s'agit :

- de céramiques sesquioxydes d'yttrium, de lutétium et de scandium dopées ytterbium fournies par Konoshima Chemical Company, Japon
- de céramiques YAG non dopée et dopée 20 at. % ytterbium, provenant également de Konoshima Chemical Company,
- de cristaux YAG dopés ytterbium, fournis par Laserayan [Laserayan],
- de cristaux de CaF_2 non dopé et dopé ytterbium (taux de dopage 3 at. %, fabriqués par Hellma Company, [Hellma]),
- et enfin, de verres phosphates dopés néodyme (verre HOYA, LHG-8).

Pour les mesures par la méthode flash laser, les échantillons étudiés sont des disques transparents de diamètre 10 mm et d'épaisseur 2 mm. Concernant les mesures directes de la conductivité thermique à température ambiante et aux basses températures, nous verrons que la taille de l'échantillon a une influence significative sur les valeurs mesurées.

Dans l'introduction de ce chapitre, nous avons évoqué la notion de conductivité apparente et de conductivité effective. En effet, suivant la nature de l'échantillon, la conductivité thermique mesurée peut ne pas être représentative de sa véritable valeur : il s'agit de la conductivité thermique apparente.

Dans le cas des milieux opaques, le problème ne se pose pas : la conductivité thermique mesurée est la conductivité thermique effective du matériau.

Pour les matériaux transparents et semi-transparents, la mesure de la conductivité thermique ne s'identifie qu'à la conductivité thermique apparente, et est égale à la somme de la

conductivité thermique effective du matériau et du paramètre de rayonnement induit soit par les propriétés optiques des surfaces (dans le cas des milieux transparents), soit par les propriétés optiques du matériau et de ses surfaces (dans le cas des milieux semi-transparents).

Pour déterminer dans quelle catégorie nos matériaux se trouvent, utilisons dans un premier temps, la loi de Wien (approximation de la loi de Planck) pour déterminer la longueur d'onde maximale λ_m. Celle-ci est définie par la relation :

$$\lambda_m T \approx 2895 \mu m.K \qquad \text{Équation IV-59}$$

Rappelons que nous effectuons nos mesures de la température ambiante à la température de l'azote liquide. Les longueurs d'onde limites sont donc de 37,5 µm et de 9,65 µm respectivement pour des températures de 77 K et 300 K.

La loi de Planck définit la distribution de la luminance du rayonnement thermique du corps noir en fonction de la température. Un matériau est dit transparent pour une gamme de longueur d'onde comprise entre 0,5xλ_m et 5xλ_m.

A 77 K, cet intervalle correspond respectivement à des longueurs d'onde de 18,8 µm et 188 µm. De même, à température ambiante, nous calculons un intervalle compris entre 4,83 µm et 48,3 µm.

Nos matériaux ne sont pas transparents dans l'infrarouge. Nous pouvons également ajouter que l'énergie radiative échangée est faible du fait de la métallisation des échantillons.

IV.4.2. Mesure indirecte de la conductivité thermique par la méthode flash

Nous rappelons que la méthode flash laser est une méthode de mesure indirecte de la conductivité thermique κ. Sa détermination nécessite de mesurer la diffusivité thermique β, mais également la densité ρ du matériau et la capacité thermique massique C_p :

$$\kappa = \beta \rho C_p \qquad \text{Équation IV-60}$$

Pour chaque matériau cité précédemment, nous avons mesuré à température ambiante, les paramètres préalablement mentionnés.

IV.4.2.1. Mesure de la densité des matériaux à température ambiante

La masse volumique ρ, également appelée densité du matériau, est déterminée à 296 K, en utilisant la méthode par immersion (balance hydrostatique). Elle est donnée par la relation :

$$\rho = \frac{m_1 \rho_1}{(m_1 - m_2)} \qquad \text{Équation IV-61}$$

où m_1 est la masse de l'éprouvette dans l'air, m_2 est la masse de l'éprouvette dans un liquide d'immersion (eau distillée à 296 K ± 0,1 K), et ρ_1 est la masse volumique du liquide d'immersion à 296 K.

Cette mesure a été effectuée au Laboratoire Nationale d'Essais et de Métrologie, LNE. Les échantillons ont une forme cylindrique de diamètre 4 mm et d'épaisseur 6 mm.

Les résultats de mesure, à température ambiante, sont donnés avec une incertitude de ± 1 % et sont représentés dans le tableau IV-1.

Matériau	*Densité mesurée (en g/cm³)*
Céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. %	5,4
Céramique Yb :Sc_2O_3 dopée 1 at. %	3,9
Céramique Yb :Lu_2O_3 dopée 1 at. %	9,4
Céramique Yb : YAG dopée 20 at. %	4,9
Cristal Yb : YAG dopé 1 at. %	4,6
Cristal Yb : YAG dopé 10 at. %	4,7
Cristal CaF_2 non dopé	3,2
Cristal Yb : CaF_2 dopé 3 at. %	3,3

Tableau IV - 1 : Densités de céramiques Yb : Y_2O_3, Yb : Lu_2O_3, Yb : Sc_2O_3, Yb : YAG, de cristaux Yb : YAG et de cristaux CaF_2 non dopé et dopé en ion ytterbium mesurées à température ambiante.

Les valeurs mesurées par le LNE ont été vérifiées en mesurant à la fois les masses des échantillons ainsi que leurs dimensions. Ainsi, pour le cristal Yb : YAG dopé 1 at. %, nous avons mesuré une masse de 0,34 g. L'échantillon étant un cylindre de diamètre 4 mm et de longueur 5,90 mm, la densité de ce matériau a été calculée à 4,59 g/cm³ : cette valeur est semblable à celle mesurée par le LNE de 4,6 g/cm³.

En comparant les valeurs de densités obtenues sur les matériaux de YAG, nous pouvons remarquer que le taux de dopage influe sur les valeurs de la densité. Ainsi, une diminution du taux de dopage en ion ytterbium entraîne une diminution de la valeur de la densité. Cette tendance est confirmée par Xu *et al.* [Xu 04], au détail près qu'ils ont prouvé que cet effet est linéaire. De plus, à température ambiante, pour un cristal Yb :YAG dopé à 10 at. %, Xu *et al.* ont mesuré une densité d'environ 4,75 g/cm³ La valeur expérimentale que nous avons mesurée pour ce même taux de dopage est identique.

Aggarwal *et al.* donnent également des valeurs de la densité de cristaux YAG non dopé, et dopés à 2 et 4 at. % [Aggarwal 05]. A température ambiante, ces densités sont respectivement de 4,5, 4,6 et 4,62 kg/m³. Comparées à nos mesures expérimentales, ces valeurs confirment qu'une diminution du taux de dopage en ion ytterbium a pour conséquence une diminution de la densité du matériau : la valeur que nous avons mesurée pour un cristal dopé 10 at. % est supérieure à celle obtenue par Aggarwal pour un cristal dopé 4 at. %. De la même manière, la valeur mesurée pour un cristal dopé 1 at. % est comprise entre les valeurs de la densité d'un cristal non dopé et d'un cristal dopé 2 at. %.

Concernant les cristaux de fluorure de calcium, comme pour les mesures des coefficients thermo-optiques, nous nous référons aux données de Corning [Corning]. A température

ambiante, et pour un cristal CaF_2 non dopé, la densité est de 3,2 g/cm³. La valeur mesurée par le LNE pour un cristal CaF_2 non dopé est de 3,2 g/cm³ : cette valeur est semblable à celle de Corning.

IV.4.2.2. Détermination de la capacité thermique massique à température ambiante

Le LNE a mesuré la capacité thermique massique de nos échantillons à température ambiante. Elle est déterminée avec un calorimètre différentiel, suivant la méthode de mesure appelée « programme étagée ». L'essai consiste à mesurer, au cours d'une montée en température, les quantités de chaleur échangées entre les cellules et le bloc calorimétrique.

Le calorimètre étant stabilisé à la température T_1, un incrément de température programmé ΔT est réalisé, suivi d'un palier de température constante. L'intégrale A du thermogramme résultant est proportionnelle à la différence d'énergie échangée dans les deux cellules. Cette énergie est proportionnelle à la différence des capacités thermiques des deux cellules, pour une variation de température identique de celles-ci.

Le domaine de température à étudier est parcouru par incrément de 5 K.

La détermination de la capacité thermique d'un matériau est réalisée en trois étapes :

- Le porte échantillon est vide. La valeur A_0 de l'aire du thermogramme est représentative de l'appareillage,
- Un échantillon de saphir de masse M_S et de capacité thermique massique C_{PS} connues est placé dans le porte échantillon. L'aire du thermogramme est A_S,
- L'échantillon dont on veut déterminer la capacité thermique massique, de masse M_e, est placé dans le porte échantillon. L'aire du thermogramme est A_e.

La capacité thermique, à la température $T_m = T_1 + \Delta T / 2$ est déterminée par l'équation IV-62 :

$$C_p(T_m) = \frac{(A_e - A_0)}{(A_S - A_0)} \frac{M_s}{M_e} C_{PS}(T_m) \qquad \text{Équation IV-62}$$

La sensibilité S du calorimètre est calculée en effectuant un étalonnage des thermopiles par effet Joule permettant d'établir la variation de la sensibilité en fonction de la température.

Les échantillons étudiés sont les mêmes que pour les mesures de la masse volumique. Les résultats, donnés avec une incertitude de ± 4 %, sont représentés dans le tableau IV-2 :

Matériau	*Capacité thermique massique mesurée (en J/kg.K)*
Céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. %	424
Céramique Yb : Sc_2O_3 dopée 1 at. %	659
Céramique Yb : Lu_2O_3 dopée 1 at. %	257
Céramique Yb : YAG dopée 20 at. %	546
Cristal Yb : YAG dopé 1 at. %	583
Cristal Yb : YAG dopé 10 at. %	564
Cristal CaF_2 non dopé	862
Cristal Yb : CaF_2 dopé 3 at. %	835

Tableau IV - 2 : Capacités thermiques massiques de céramiques Yb : Y_2O_3, Yb : Lu_2O_3, Yb : Sc_2O_3, Yb : YAG, de cristaux Yb :YAG et de cristaux CaF_2 non dopé et dopé en ion ytterbium mesurés à température ambiante.

Des mesures de capacité thermiques menées sur des cristaux Yb : YAG montrent que ce paramètre augmente lorsque le taux de dopage en ion ytterbium diminue. Toutefois, aucune donnée ne nous permet de comparer les capacités thermiques de céramiques et de cristaux. Il aurait alors été intéressant de faire une mesure comparative en utilisant par exemple, une céramique Yb :YAG dopée 10 at. %.

Leitner *et al.* ont mesuré des capacités thermiques massiques, à température ambiante, d'oxyde d'yttrium, de lutétium et de scandium et en ont donné, respectivement, les valeurs de 453,54 J/kg.K, 255,28 J/kg.K et 680,72 J/kg.K [Leitner 03]. Nos valeurs expérimentales sont inférieures, au maximum à 30 % de ces valeurs.

Xu *et al.* ont mesuré la capacité thermique massique de cristaux YAG dopés à 5, 10 et 25 at. % en ion ytterbium pour une gamme de température comprise entre 323 et 773 K [Xu 04]. Ils ont ainsi pu montrer que lorsque le taux de dopage augmente, la capacité thermique massique diminue jusqu'à une température de 573 K où cette tendance s'inverse. Pour un cristal Yb : YAG dopé 10 at. %, et à 323 K, ils mesurent une capacité thermique d'environ 630 J/kg.K. Là encore, la valeur expérimentale que nous avons mesurée est inférieure à la donnée de la littérature d'environ 12 %. Cependant, si nous prenons en compte les valeurs de la capacité thermique massique de cristaux YAG non dopé et dopé ytterbium à 2 at. % données par Aggarwal *et al.* à température ambiante, celles-ci sont respectivement égales à 598 J/kg.K et 574 J/kg.K [Aggarwal 05] : la valeur expérimental que nous avons mesurée pour un cristal Yb : YAG dopé 1 at. % est comprise entre ces deux valeurs, ce qui montre que la capacité thermique diminue lorsque le taux de dopage augmente.

En se référant aux données de Corning, à température ambiante, et pour un cristal CaF_2 non dopé, la valeur de la capacité thermique est de 853 J/kg.K [Corning]. La valeur expérimentale que nous obtenons pour un cristal CaF_2 non dopé à température ambiante (862 J/kg.K) est semblable à 2 % près.

IV.4.2.3. Traitement des échantillons

Rappelons que les échantillons étudiés sont transparents. Lors d'un flash laser, afin de distinguer les phénomènes de conduction thermique du rayonnement, la métallisation des matériaux est une étape indispensable. La petite taille des matériaux et leurs surfaces polies ont posé des difficultés aux entreprises spécialisées dans la métallisation. Ce traitement a été réalisé par la société ACM, à Villiers Saint Frédéric, France [ACM]. Le principe consiste à déposer une sous-couche en titane d'une épaisseur de 30 nm, puis une couche d'or d'épaisseur 1,5 µm par pulvérisation cathodique.

Notons d'autre part qu'une couche de peinture noire spécifique aux basses températures a été appliquée sur la face avant de chacun des échantillons. Cette peinture est une peinture noire polyuréthanne à faible dégazage, type PU1 délivrée par la société MAP [MAP]. La principale caractéristique de cette peinture est sa forte émissivité, de l'ordre de 0,88. Dans le cadre des mesures de diffusivité thermique, elle est utilisée pour absorber le flux incident issu du flash laser. Une précaution est cependant à prendre en considération : si l'épaisseur de la couche de peinture est trop importante, elle peut perturber nos mesures. Nous nous sommes affranchis de ce problème en procédant par la technique de pulvérisation.

IV.4.2.4. Mesure de diffusivité thermique par détection infrarouge (méthode du LNE)

Le Laboratoire Nationale d'Essais et de Métrologie a réalisé des mesures de diffusivité thermique à température ambiante sur nos échantillons par la méthode flash laser. L'impulsion de flux thermique est générée par un laser impulsionnel YAG, de longueur d'onde 1064 nm. Le thermogramme de la face arrière de l'échantillon est mesuré par un détecteur infrarouge HgCdTe, de réponse spectrale comprise entre 2 et 12 µm.

La diffusivité thermique est déterminée en minimisant l'écart quadratique entre le thermogramme expérimental et le thermogramme du modèle théorique obtenu en résolvant l'équation de la chaleur dans le cas d'un échantillon homogène et isotrope. L'identification est effectuée suivant la méthode des moments temporels d'ordre 0 et -1. Rappelons que dans ce cas, la diffusivité thermique β est donnée par :

$$\beta = \frac{L^2 \times F(M_{-1})}{M_0} \qquad \text{Équation IV-63}$$

où L est l'épaisseur de l'échantillon, M_0 et M_{-1} sont des moments temporels et F la fonction d'identification déterminée à l'aide du modèle théorique (Cf. Equation IV-30).

Un point important à signaler est que le LNE a mené ces mesures en « aveugle » : le laboratoire ne connaissait pas la nature des échantillons mesurés et ne pouvait donc pas être influencé par des valeurs de la littérature.

L'ensemble des résultats de mesure de diffusivité thermique sur nos échantillons est regroupé dans le tableau IV-3. Avec les valeurs de densité et de capacité thermique massique mesurées également à température ambiante, par le LNE, nous avons calculé les valeurs de conductivités thermiques correspondantes.

Matériau	*Diffusivité thermique mesurée (en m²/s)*	*Conductivité thermique calculée (en W/m.K)*
Céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. %	2,49	5,74
Céramique Yb : Sc_2O_3 dopée 1 at. %	2,91	7,56
Céramique Yb : Lu_2O_3 dopée 1 at. %	4,77	11,51
Céramique Yb : YAG dopée 20 at. %	2,11	5,7
Cristal Yb : YAG dopé 1 at. %	3,12	8,33
Cristal Yb : YAG dopé 10 at. %	2,46	6,60
Céramique CaF_2 non dopé	3,52	9,69
Céramique Yb : CaF_2 dopé 3 at. %	1,73	4,79

Tableau IV - 3 : Diffusivités thermiques de céramiques Yb : Y_2O_3, Yb :Lu_2O_3, Yb :Sc_2O_3, Yb :YAG, de cristaux Yb :YAG et de cristaux CaF_2 non dopé et dopé en ion ytterbium mesurés à température ambiante et calculs des conductivités thermiques correspondantes.

Les incertitudes relatives à la mesure de la diffusivité thermique sont déterminées par le LNE à ± 5 %.

IV.4.2.5. Mesure de diffusivité thermique par contact (méthode du LEMTA)

Le Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée, LEMTA à Nancy, a réalisé des mesures de diffusivité thermique de céramiques sesquioxydes Y_2O_3, Sc_2O_3 et Lu_2O_3 dopées 10 at. % ytterbium à température ambiante [LEMTA]. Les échantillons testés sont des disques de diamètre 20 mm et d'épaisseur 3 mm. Une métallisation avec de la laque d'argent a été déposée sur les deux faces de l'échantillon, une fine couche supplémentaire de peinture noire mate a été mise sur la face avant.

La méthode utilisée est la méthode flash laser par contact : des semi-conducteurs de tellure de bismuth Bi_2Te_3 ont été placés en face arrière de l'échantillon. Dans le cadre de ces mesures, le LEMTA utilise la méthode par contacts séparés : les extrémités des deux fils du thermocouple ne se touchent pas ; ils sont maintenus en contact par pression avec la face arrière en deux points proches du centre de l'échantillon et distants de quelques millimètres. Le contact électrique entre les deux fils du thermocouple est assuré par la face arrière de l'échantillon métallisée.

La face avant est illuminée par un flash laser (4 J/cm² pour une durée d'impulsion de 6 ms). L'acquisition des données a été permise grâce à un amplificateur relié à un filtre, le tout branché à un oscilloscope.

Les mesures ont été menées en « aveugle », le laboratoire ne connaissant pas la nature des échantillons mesurés.

Le thermogramme obtenu pour une céramique Y_2O_3 dopée 10 at. % en ion ytterbium est représenté sur la figure IV-16 :

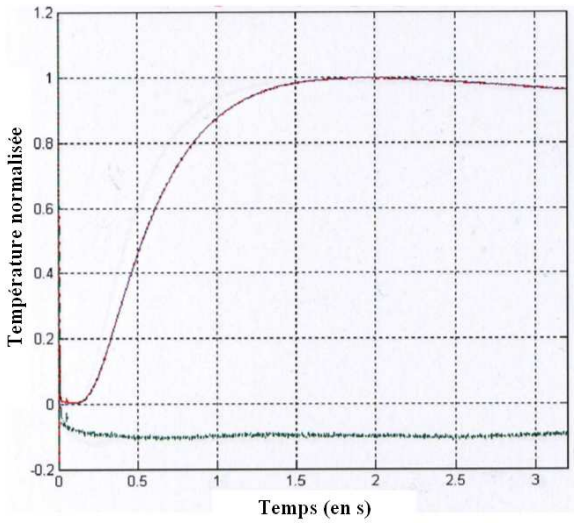


Figure IV - 16 : Thermogramme mesuré sur une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. % à température ambiante.

Le LEMTA a mesuré la diffusivité thermique suivant la méthode de Parker (Equation IV-16) et suivant la méthode des temps partiels (Equations IV-26, IV-27 et IV-28). Afin de déterminer la conductivité thermique de nos matériaux (Equation IV-15), leur capacité thermique ainsi que leur densité doivent être connues. Ces valeurs sont données dans la littérature à température ambiante [Leitner 03], [Laversenne 02]. Les résultats sont résumés dans le tableau IV-4 :

	Diffusivité thermique par la méthode de Parker (m^2/s)	Diffusivité thermique par la méthode des temps partiels (m^2/s)	Capacité thermique massique (J/kg.K)	Densité (kg/m^3)	Conductivité thermique, méthode de Parker (W/m.K)	Conductivité thermique, méthode des temps partiels (W/m.K)
Yb : Y_2O_3 dopé 10 at. %	$2,74x10^{-6}$	$2,56x10^{-6}$	453,5	5035	**6,3**	**5,8**
Yb : Sc_2O_3 dopé 10 at. %	$1,58x10^{-6}$	$1,57x10^{-6}$	680,7	3840	**4,13**	**4,1**
Yb : Lu_2O_3 dopé 10 at. %	$4,38x10^{-6}$	$4,16x10^{-6}$	255,3	9426	**10,5**	**10**

Tableau IV - 4 : Résultats des mesures de diffusivité thermique de céramiques Yb :Y_2O_3, Yb : Lu_2O_3, et Yb : Sc_2O_3 dopées 10 at. % par la méthode flash à température ambiante.

Nous pouvons noter que suivant les méthodes d'identification employées, les valeurs de conductivité thermique calculées diffèrent au maximum de 10 %.

Si nous comparons les diffusivités thermiques mesurées à température ambiante pour une céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. %, nous pouvons noter que les valeurs obtenues par le LEMTA et le LNE sont semblables à moins de 3 %.

Le LNE ayant réalisé des mesures sur une céramique Yb :Sc_2O_3 dopée 1 at. %, nous pouvons remarquer la valeur de diffusivité thermique mesurée est supérieure à celle mesurée par le

LEMTA sur le même matériau avec un taux de dopage de 10 at. %. En se référant au modèle de Gaumé, cette tendance est correcte puisque la conductivité thermique des matériaux diminue lorsque le taux de dopage en ion actif augmente.

De même, pour les céramiques Yb : Lu_2O_3 dopées 10 et 1 at. %, les valeurs de conductivités thermiques ne sont pratiquement pas influencées par le taux de dopage en ion ytterbium. Ceci est dû au fait que la masse atomique de l'atome de lutétium (174,97 $g.mol^{-1}$) est semblable à celui de l'ion ytterbium (173,04 $g.mol^{-1}$).

IV.4.2.6. Mesure directe de la conductivité thermique à température ambiante

Une étude a été confiée à la société NeoTIM, à Albi [Neotim]. L'objectif est de faire des premières mesures de conductivité thermique de matériaux à température ambiante puis, à terme, de pouvoir déployer ce type d'instrumentation à basse température. Les méthodes employées par la société NeoTIM sont toutes des mesures directes de la conductivité thermique. Ce type de méthode peut se révéler important puisque dans ce cas, l'échantillon n'a pas besoin d'être métallisé, et il n'est pas nécessaire de connaître sa densité et sa capacité thermique massique. Toutes les mesures ont également été effectuées en « aveugle ».

a. Méthode du disque chaud

La première méthode testée est la méthode du disque chaud, couramment appelée méthode du « hot disk ». La sonde employée pour les essais a un diamètre de 3,2 mm. La mesure « hot disk » nécessitant deux éprouvettes identiques (dimensions identiques) du matériau à étudier, nous avons testé deux céramiques Yb : Y_2O_3 dopées 10 at. %, de diamètre 20 mm et d'épaisseur 3 et 4 mm. NeoTIM a considéré que ces deux éprouvettes sont suffisamment identiques d'un point de vue thermique pour permettre le montage symétrique.

La mesure a été réalisée cinq fois afin de s'assurer de la reproductibilité des valeurs obtenues. Les résultats de mesure de conductivité thermique à température ambiante sont décrits dans le tableau IV-5. NeoTIM a également fait une estimation des valeurs de diffusivité thermique β, du produit de la capacité thermique C_p avec la densité ρ, et de la profondeur de pénétration du flux de chaleur dans le matériau P.

	Essai 1	***Essai 2***	***Essai 3***	***Essai 4***	***Essai 5***	***Moyenne***
κ (W/m.K)	5,34	5,25	5,22	5,31	5,24	5,27
β (m^2/s)	$1,12x10^{-6}$	$1,09x10^{-6}$	$1,074x10^{-6}$	$1,10x10^{-6}$	$1,09x10^{-6}$	$1,12x10^{-6}$
ρC_p ($*10^6$ $J/m^3.K$)	4,747	4,811	4,866	4,823	4,790	4,701
P (mm)	3,15	3,20	3,08	3,01	3,11	3,11

Tableau IV - 5 : Résultats des mesures de conductivité thermique d'une céramique Yb : Y_2O_3 par la méthode « hot disk » à température ambiante.

Concernant les valeurs de conductivité thermique κ, nous pouvons constater une bonne reproductibilité des mesures. Il est également à souligner que la profondeur de pénétration P est très proche de l'épaisseur d'un des deux échantillons utilisés pour cette expérience. Cela explique ainsi l'écart obtenu entre les valeurs mesurées par la méthode « hot disk » et les valeurs de la méthode flash laser.

Exigeant un montage symétrique (une sonde entre deux éprouvettes du matériau à étudier), la méthode du « hot disk » nécessiterait, dans notre cas, des échantillons plus épais. Etant donné le coût élevé de l'achat d'échantillons plus grands, nous avons envisagé d'utiliser une autre méthode pour faire ces mesures. D'autre part, le « hot disk » est un appareil commercial fabriqué et vendu par la société suédoise du même nom, son utilisation à basse température n'a pas encore été développée car la demande est probablement trop marginale.

b. Méthode du fil chaud

NeoTIM a réalisé des mesures de conductivité thermique en utilisant la méthode du fil chaud. Les mesures ont été menées en montage symétrique, la sonde étant placée en sandwich, entre deux éprouvettes identiques de l'échantillon à étudier.

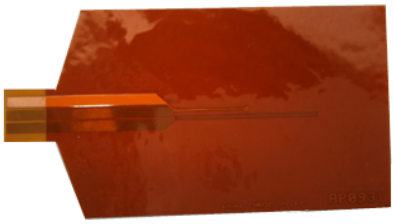


Figure IV - 17 : Photo d'une sonde fil chaud.

Les mesures ont été menées sur une céramique Y_2O_3 dopée 10 at. % ytterbium avec les dimensions suivantes : 50 mm de longueur, 30 mm de largeur et 2 mm d'épaisseur. Les résultats sont présentés dans le tableau IV-6.

	Essai 1	*Essai 2*	*Essai 3*	*Essai 4*	*Essai 5*	*Moyenne*
κ (W/m.K)	2,73	2,59	2,54	2,59	2,59	2,61

Tableau IV - 6 : Résultats des mesures de conductivité thermique de l'échantillon Yb:Y_2O_3 par la méthode du fil chaud à température ambiante.

Les résultats obtenus par cette méthode sont inattendus car les valeurs de conductivité thermique mesurées sont très inférieures à celles trouvées par la méthode « hot disk » ou bien encore par la méthode flash laser. Nous avons un rapport d'environ 2,5 entre les valeurs mesurées et les valeurs supposées (autour de 5,7 W/m.K). Cet écart peut être expliqué par la faible épaisseur de l'échantillon étudié.

En termes de valeur absolue, l'idée est de voir la possibilité ou non de réaliser un étalonnage de cette méthode à l'aide de matériaux dits de référence dont la conductivité thermique est

connue. Ainsi, nous avons testé des échantillons de verre phosphate dopés néodyme (faible conductivité thermique) ainsi que des échantillons de saphir (très bon conducteur donc de grande conductivité thermique).

L'objectif de ces mesures est de pouvoir comparer les valeurs obtenues avec celles de la littérature, et de pouvoir ainsi réaliser un étalonnage de cette méthode. Celle-ci apparaît donc comme une alternative intéressante car elle peut être déployée et optimisée sur des systèmes relativement contraignants tels que notre cryostat (basse température et faible encombrement).

De la même manière que pour l'échantillon Yb :Y_2O_3, les mesures ont été réalisées cinq fois. Les valeurs de conductivité thermique obtenues par la méthode du fil chaud à température ambiante sur des échantillons de verres phosphates dopés néodyme (disque de diamètre 30 mm et d'épaisseur 5 mm) et sur des échantillons de saphir (disque de diamètre 30 mm et d'épaisseur 2 mm) sont représentés dans le tableau IV-7. Les valeurs sont données en W/m.K :

	Essai 1	***Essai 2***	***Essai 3***	***Essai 4***	***Essai 5***	***Moyenne***
Verre phosphate dopé néodyme	0,95	0,98	0,94	1	0,93	0,96
Saphir	11,69	11,05	11,65	11,74	11,38	11,50

Tableau IV - 7 : Résultats des mesures de conductivité thermique de verre phosphate dopé néodyme et de saphir par la méthode du fil chaud à température ambiante.

Malgré que les valeurs obtenues soient reproductibles, les mesures de conductivités thermiques ne sont pas conformes aux valeurs théoriques : le fabricant du verre phosphate dopé néodyme, HOYA, en donne une valeur de 0,58 W/m.K [LLNL 81]. Pour le saphir, les valeurs de conductivité thermique de la littérature sont comprises entre 30 et 50 W/m.K : le rapport entre les valeurs mesurées et la valeur attendue oscille entre 3 et 4,3.

En appliquant ces termes de correction (de 1,7 pour le verre phosphate, et comprise entre 3 et 4,3 pour les mesures sur le saphir) aux valeurs de conductivités thermiques obtenues sur la céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. %, nous n'obtenons pas la valeur escomptée : nous calculons respectivement des valeurs de conductivité thermique de 4,32 W/m.K, et de 7,83 et 11,22 W/m.K.

Suite à ces résultats, une étude de sensibilité numérique de la méthode fil chaud a été menée par NeoTIM. Cette étude consiste à montrer numériquement les avantages et les limites de la méthode proposée. Cette étude a été menée pour des matériaux dont la conductivité thermique est comprise entre 1 et 50 W/m.K et des épaisseurs d'échantillon comprises entre 1 et 10 mm. La démarche est de faire varier un paramètre dans le modèle mathématique servant à l'estimation paramétrique de la conductivité thermique. Cette mesure a montré qu'une épaisseur minimale de 7 mm pour les échantillons est nécessaire pour atteindre les bonnes valeurs de conductivité thermique.

Ne pouvant pas nous procurer des échantillons plus épais, nous avons décidé d'analyser la faisabilité d'une nouvelle méthode de mesure directe de conductivité thermique : la méthode de la sonde annulaire.

c. Méthode de la sonde annulaire

Très peu connue et utilisée, la méthode de la sonde annulaire est une méthode de type sonde à chocs, dont le principe est équivalent à celui du fil chaud ou de la méthode du disque chaud. Un fil en forme de cercle (diamètre 15 mm) est disposé sur un support en kapton, et un thermocouple type T est disposé au centre de l'anneau. De la même manière que pour les méthodes décrites précédemment, la sonde est placée entre deux éprouvettes de l'échantillon à étudier. Le thermocouple est plus sensible au transfert thermique dans le plan longitudinal que celui de l'épaisseur de l'échantillon. En d'autres termes, cette méthode permettrait d'être moins tributaire de l'épaisseur de l'échantillon.

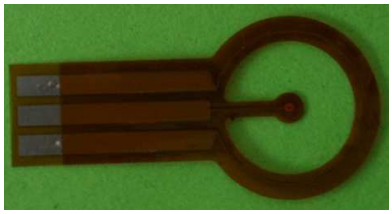


Figure IV - 18 : Photo de la sonde annulaire.

La méthode de l'anneau chaud consiste à réaliser deux essais consécutifs, permettant chacun d'estimer d'une part la diffusivité thermique et d'autre part, la conductivité thermique.

Le premier test consiste à appliquer un créneau de flux de chaleur connu et maîtrisé permettant ainsi d'estimer la diffusivité thermique. Le second test correspond à l'application d'un échelon de flux de chaleur connu et maîtrisé permettant la mesure de la conductivité thermique.

De la même manière que pour la méthode du fil chaud, une simulation numérique a été réalisée pour étudier le comportement des échantillons face aux sollicitations thermiques de cette méthode. Ces simulations montrent que plus la diffusivité thermique est grande, donc plus la conductivité thermique est importante, plus le déphasage entre la sollicitation du flux de chaleur et la réponse donnée par le capteur est faible.

Les mesures ont été réalisées par NeoTIM à température ambiante sur les échantillons précédemment utilisés pour les méthodes du fil chaud et du disque chaud. Les mesures ont été réalisées cinq fois. La méthode consistant à mesurer la diffusivité thermique dans un premier temps, et la conductivité thermique dans un second, le tableau rassemble les résultats obtenus pour chacune de ces mesures. Les valeurs de diffusivité thermique sont données en 10^{-6} m^2/s et les mesures de conductivité thermique en W/m.K.

		Essai 1	*Essai 2*	*Essai 3*	*Essai 4*	*Essai 5*
Céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. %	Diffusivité thermique	1,42	1,42	1,42	1,42	1,42
	Conductivité thermique	1,14	1,15	1,14	1,14	1,14
Verre phosphate dopé néodyme	Diffusivité thermique	0,24	0,24	0,2	0,2	0,22
	Conductivité thermique	0,5	0,42	0,35	0,35	0,41
Saphir	Diffusivité thermique	4,36	4,08	4,36	4,36	4,29
	Conductivité thermique	4,99	4,74	5,15	5,24	5,03

Tableau IV - 8 : Résultats des mesures de conductivité thermique d'une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. %, d'un verre phosphate dopé néodyme et d'un saphir par la méthode de la sonde annulaire à température ambiante.

Que ce soit pour les mesures de la diffusivité thermique et de la conductivité thermique, les valeurs obtenues pour les échantillons de saphir et Yb : Y_2O_3 dopée 10 at.% ne sont pas en accord avec les valeurs de la littérature. Seules celles obtenues pour le cas du verre phosphate dopé néodyme sont conformes aux valeurs théoriques (rappelons que cette valeur est égale à 0,58 W/m.K [LLNL 81]).

Utilisons le même raisonnement que celui précédemment décrit pour la méthode du fil chaud : le rapport de proportionnalité entre les valeurs mesurées et les valeurs théoriques pour le saphir est compris entre 11,7 et 10. En appliquant ce rapport aux valeurs mesurées par cette méthode sur la céramique Y_2O_3 dopée 10 at. % ytterbium, nous trouvons des valeurs de conductivités thermiques qui ne sont pas celles escomptées.

Pour des échantillons de grande conductivité thermique, cette méthode nécessite d'avoir des échantillons de grandes dimensions. Cependant, contrairement à la méthode du fil chaud, pour des matériaux faiblement conducteurs tels que le verre phosphate dopé néodyme, cette méthode est appropriée.

Suite à ces résultats, NeoTIM a développé à nouveau la méthode en simplifiant le protocole à un seul et même test permettant d'obtenir à la fois la diffusivité et la conductivité thermique. D'autres essais ont été menés et ont démontré la nécessité de travailler sur des échantillons de plus grandes dimensions.

Deux types de méthodes viennent d'être étudiés permettant de faire des mesures directes de conductivité thermique à température ambiante :

- la méthode de mesure indirecte, représentée par la méthode flash laser, a été testée sur des échantillons d'épaisseur 2 mm et de diamètre 10 mm. Ces matériaux ont été préalablement métallisés d'une fine couche d'or sur les deux faces. Une couche de peinture noire mate a été déposée sur la face avant. Cette méthode permet de mesurer la

diffusivité thermique : elle nécessite donc la connaissance exacte des paramètres de capacité thermique massique et de densité à la température de la mesure. Ces paramètres ont été mesurés par le LNE et les résultats sont comparables aux valeurs de la littérature. Que ce soit pour la mesure de la diffusivité thermique ou pour le calcul de la conductivité thermique, nos valeurs expérimentales sont en accord avec les valeurs théoriques.

- les méthodes de mesures directes, représentées par les méthodes du disque chaud, du fil chaud et de la sonde annulaire ont été testées. Mis à part pour la méthode du disque chaud, les deux autres méthodes nécessitent d'avoir des échantillons de grandes dimensions pour avoir une mesure correcte du paramètre étudié.

Pour les mesures à basse température, deux points sont à noter :

- d'une part, nous avons mis en place un premier dispositif expérimental permettant de réaliser des mesures de diffusivité thermique par la méthode flash laser. Afin de quantifier si la métrologie développée est correcte, les diffusivités thermiques d'un cristal de Yb : YAG dopé 1 at. % et d'une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. % ont été mesurées à basse température : l'objectif est de pouvoir comparer les valeurs expérimentales avec les valeurs de la littérature, puis de valider ou non le dispositif ainsi développé

- d'autre part, nous avons utilisé la méthode de la sonde annulaire. Cette méthode nécessite d'avoir des échantillons de grandes dimensions. Nous avons réalisé des premières mesures sur des échantillons de verre phosphate dopé néodyme en configuration de montage symétrique.

IV.5 Mesure de la conductivité thermique à basse température

IV.5.1. Evolution de la capacité thermique massique et de la densité des matériaux à basse température

Dans le cadre des mesures de conductivité thermique par la méthode indirecte, la méthode flash laser permet uniquement de mesurer la diffusivité thermique des matériaux à une température donnée. La conductivité thermique se calcule à partir de la valeur de la diffusivité thermique mesurée mais également des valeurs de capacité thermique massique et de densité (Cf. Equation IV-15). Ces deux derniers paramètres peuvent évoluer en fonction de la température du matériau.

Concernant l'évolution de la densité en fonction de la température, peu de données sont présentes dans la littérature pour les matériaux étudiés. Klein *et al.* ont mesuré les densités de cristaux Y_2O_3 non dopé et dopé 1 at. % en ion néodyme [Klein 67]. Ils montrent que lorsque la température diminue, la densité des cristaux augmente : pour un cristal non dopé, la densité passe de 5,04 g/cm^3 à température ambiante, à environ 5,06 g/cm^3 à 100 K. Klein *et al.* montrent également que la densité d'un matériau non dopé est plus faible que la densité

d'un matériau dopé : ce phénomène a été observé lors des mesures de densités de nos matériaux à différents taux de dopage à température ambiante.

En se référant à la définition de la masse volumique, son évolution en fonction de la température peut être appréhendée. En effet, elle correspond au rapport entre la masse et le volume. Lors des mesures du coefficient de dilatation (Cf. Chapitre 3), ce paramètre diminue lorsque la température du matériau chute. En supposant une masse constante et considérant, par les mesures du coefficient de dilatation, que le volume diminue, la tendance observée par Klein *et al.* de l'augmentation de la densité lorsque la température diminue pourrait être confirmée pour nos matériaux.

Des mesures de capacités thermiques massiques ont été réalisées à basse température sur des poudres de céramiques Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. % (Figure IV-19 *a*), Yb : Sc_2O_3 dopée 1 at. % (Figure IV-19 *b*) et Yb : Lu_2O_3 dopée 1 at. % (Figure IV-19 *c*). Les mesures ont été menées à l'Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux [ICMCB] à l'aide d'un calorimètre DSC, modèle 8000 fournit par Perkin Elmer. L'incertitude de mesure a été estimée à $\pm 3x10^{-3}$ J/g/K

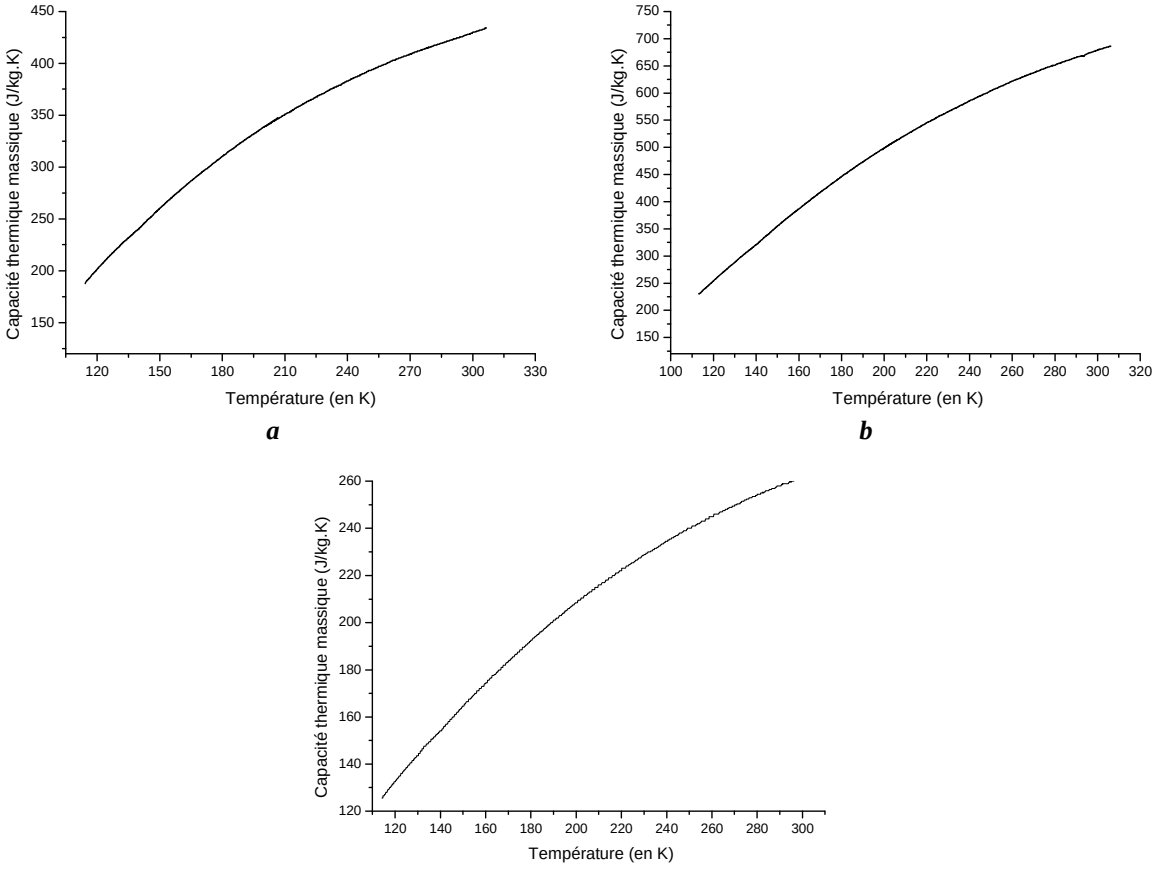


Figure IV - 19 : Capacités thermiques massiques de céramiques Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. % (*a*), Yb :Sc_2O_3 dopée 1 at. % (*b*) et Yb :Lu_2O_3 dopée 1 at. % (*c*) à basse température.

A température ambiante, si nous comparons les valeurs de capacité thermique massique mesurées par le LNE, les valeurs obtenues avec le calorimètre DSC sont, au maximum à 5 % près, similaires.

Comme attendu dans l'expression de la capacité thermique massique donnée par l'équation IV-44 (Cf. § IV.3.2.1), la capacité thermique massique mesurée diminue lorsque la température du matériau baisse.

Excepté pour Y_2O_3, aucune donnée de la capacité thermique massique à basse température n'est disponible dans la littérature pour Sc_2O_3 et Lu_2O_3. Pour une céramique Y_2O_3 non dopée, et pour des températures de 90, 200 et 300 K, Fan *et al.* ont mesuré des valeurs de capacités thermiques massiques respectivement de 140 J/kg.K, 350 J/kg.K et 450 J/kg.K [Fan 07]. Les valeurs expérimentales obtenues sur la céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. % sont inférieures comparées aux valeurs de Fan. Cependant, lors des mesures de ce paramètre à température ambiante, nous avons remarqué que les valeurs dépendent du taux de dopage en ion actif : plus le taux de dopage augmente, et plus la capacité thermique massique diminue. Les résultats obtenus à basse température concordent avec ce constat.

IV.5.2. Méthode flash laser

IV.5.2.1. Description du dispositif expérimental

L'échantillon, de diamètre 10 mm et d'épaisseur 2 mm, est placé sur un support échantillon en cuivre, du même type que celui décrit lors des mesures de performances lasers (Cf. Chapitre 2). La sonde de température est placée entre le support et la face arrière de l'échantillon.

Le support est percé d'un trou de 7,5 mm de diamètre : nous y avons placé un disque d'isolant, de même diamètre que celui du trou. Une bague en acier est vissée à l'arrière de ce support assurant une pression constante entre l'isolant, la sonde de température et l'échantillon. Une graisse à vide, spécifique aux températures cryogéniques, a été déposée sur la sonde. L'ensemble "échantillon-sonde" est serré par une bague en cuivre. Des rondelles Belleville ont également été utilisées. Lors de la descente en température, le support en cuivre se déforme n'assurant plus ainsi le contact entre l'échantillon et la sonde de température. Toutes les dispositions que nous venons de décrire ont pour objectif de permettre un contact permanent entre la sonde et l'échantillon.

Deux types de sondes ont été employés. Des premières mesures ont été effectuées avec une sonde Cernox CX-1070-BC, fournie par la société Cryoforum [Cryoforum]. Des mesures supplémentaires ont été menées avec un thermocouple type K (Cf. Annexe C). La figure IV-20 représente un schéma détaillé du support échantillon, de l'échantillon et de la sonde.

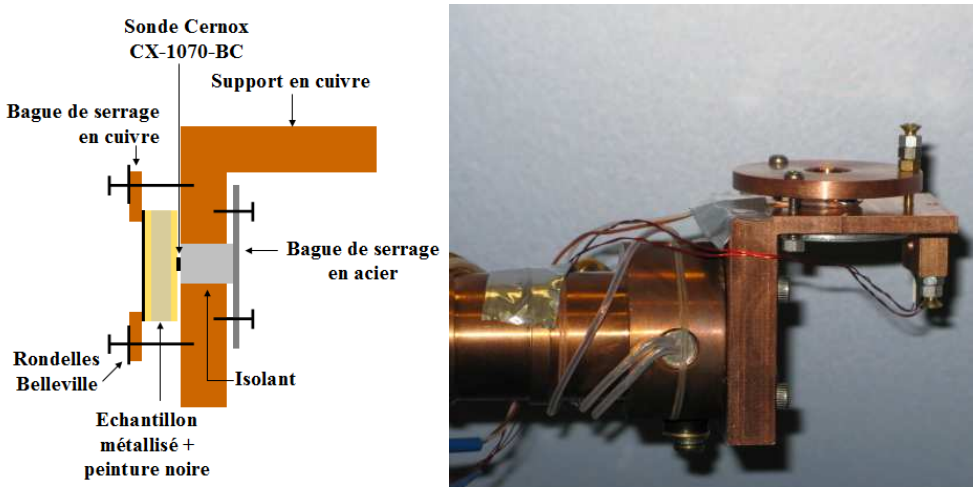


Figure IV - 20 : Schématisation du dispositif mis en place pour maintenir l'échantillon.

Concernant l'illumination sous forme de flash laser, nous avons utilisé les diodes lasers précédemment décrites au chapitre 2. Grâce au boîtier de commande des diodes, il est possible que les diodes lasers n'effectuent qu'un seul tir. La durée de l'impulsion est variable de 0,1 à 3 ms. La durée d'impulsion du flash est fixé à 1 et 3 ms, l'intensité délivrée par le courant d'alimentation des diodes est de 50 A et la température du système de refroidissement est de 20°C : ceci correspond à une énergie d'environ 1 J pour une durée d'impulsion de 1 ms et d'environ 3 J pour une durée d'impulsion de 3 ms.

IV.5.2.2. Caractère spécifique lié aux sondes de température

Deux types de sonde ont été utilisés. La première est une sonde Cernox, de type CX-1070-BC. Elle correspond à une mesure en quatre fils de résistance. La description de cette sonde ainsi que le dispositif lié au traitement de ces données est décrit en annexe C. La figure IV-21 représente une photo de cette sonde placée à côté d'un cristal de Yb :YAG dopé 1 at. % métallisé et dont une fine couche de peinture noire a été déposée sur la face avant.

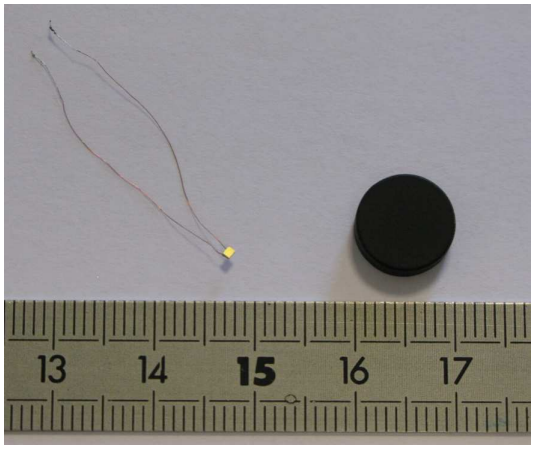


Figure IV - 21 : Photo de la sonde Cernox Cx-1070-BC et d'un cristal Yb :YAG, dopé 1 at. %, de diamètre 10 mm et d'épaisseur 2 mm, dont la face avant métallisée est pulvérisée d'une peinture noire mate.

Comparé au thermocouple, cette sonde présente l'avantage d'avoir une sensibilité qui augmente lorsque la température diminue (Cf. Annexe C). Cependant, elle nécessite d'être alimenté en courant. Des premières mesures ont été réalisées en reliant directement la sonde sur une centrale d'acquisition HP. La centrale délivre un courant d'alimentation constant de 1 mA. Les premières mesures ont été réalisées sur un cristal Yb : YAG dopé 1 at. % : à basse température, l'élévation de la température mesurée en face arrière de l'échantillon s'est avérée être lente. Des effets indésirables d'auto-échauffement se sont produits faussant ainsi les mesures (Cf. Annexe C). Rappelons que ces effets perturbent les mesures expérimentales dans le sens où un flux de chaleur supplémentaire, dû à l'effet Joule, est créé en face arrière de l'échantillon : en plus de la montée en température induite par le flash laser en face avant, la sonde mesure son propre échauffement.

En câblant la sonde sur le contrôleur de température, ces effets peuvent être atténués. En effet, le contrôleur de température envoie un courant d'intensité variable suivant la gamme de résistance de la sonde : ces intensités peuvent varier de 1 mA à 10 µA. Lors des mesures, nous avons imposé un courant constant de 100 µA. A 10 µA, les mesures n'ont pas pu être réalisées du fait d'un rapport signal sur bruit non négligeable. En termes de mesures de température, la précision de la sonde Cernox est de ± 16 mK à 77 K et de ± 40 mK à 300 K.

Suite à des problèmes rencontrés lors des premières mesures réalisées avec la sonde Cernox, un thermocouple type K a été utilisé. Nous en décrirons le dispositif expérimental dans la partie suivante.

IV.5.2.3. Mesure de conductivité thermique à basse température

Nous avons fait des premières mesures à température ambiante ainsi qu'à basse température sur un cristal YAG dopé 1 at. % ytterbium. Rappelons que l'idée est de pouvoir comparer nos valeurs expérimentales avec celles trouvées par Aggarwal *et al.* [Aggarwal 05].

Le thermogramme suivant représente l'élévation de la température de la face arrière de l'échantillon, à température ambiante, pour une impulsion laser de 1 ms et de 3 ms.

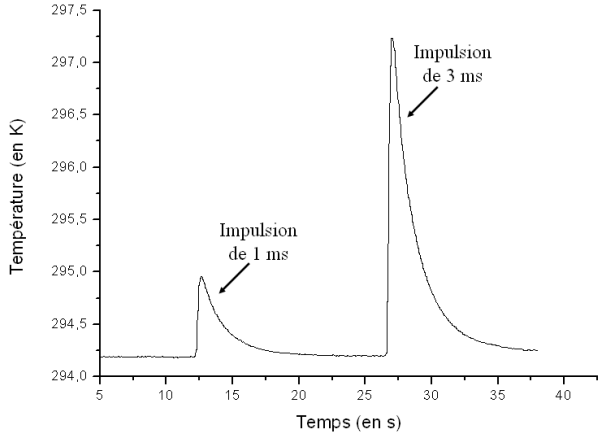


Figure IV - 22 : Thermogramme obtenue pour un cristal Yb :YAG dopé 1 at. % à température ambiante pour deux excitations lasers, avec des durées d'impulsions de 1 et 3 ms.

En agrandissant la partie correspondante à l'élévation de température obtenue pour une durée d'impulsion de 1 ms, nous obtenons le thermogramme normalisé représenté en figure IV-23 :

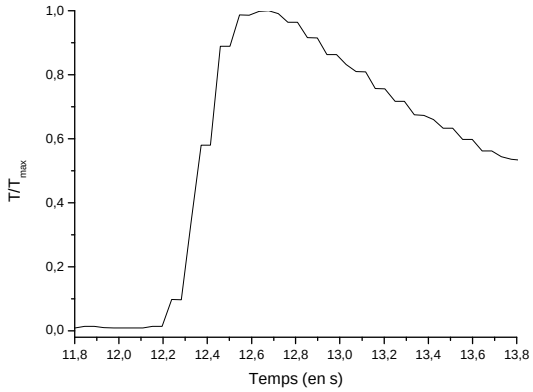


Figure IV - 23 : Thermogramme normalisé obtenu pour un cristal Yb : YAG dopé 1 at. % à 293 K.

L'allure du thermogramme obtenu nous suggère que des pertes thermiques sont présentes. Ces pertes peuvent s'expliquer par des échanges thermiques potentiels entre les bords de l'échantillon et le support échantillon en cuivre, dont la caractéristique première est d'être très conducteur.

L'élévation en température correspond à une acquisition de dix points. En 482 ms, la température passe de 294,19 K à 294,95 K. Autrement dit en 482 ms, la température s'élève de seulement 0,76 K.

Appliquons désormais les méthodes de Parker et des temps partiels pour définir la diffusivité thermique. Le tableau suivant rassemble les valeurs obtenues pour chacune de ces méthodes. D'après les mesures de la capacité thermique massique et de la densité obtenues à température ambiante (Cf. Tableaux IV-1 et IV-2), la conductivité thermique correspondante est calculée.

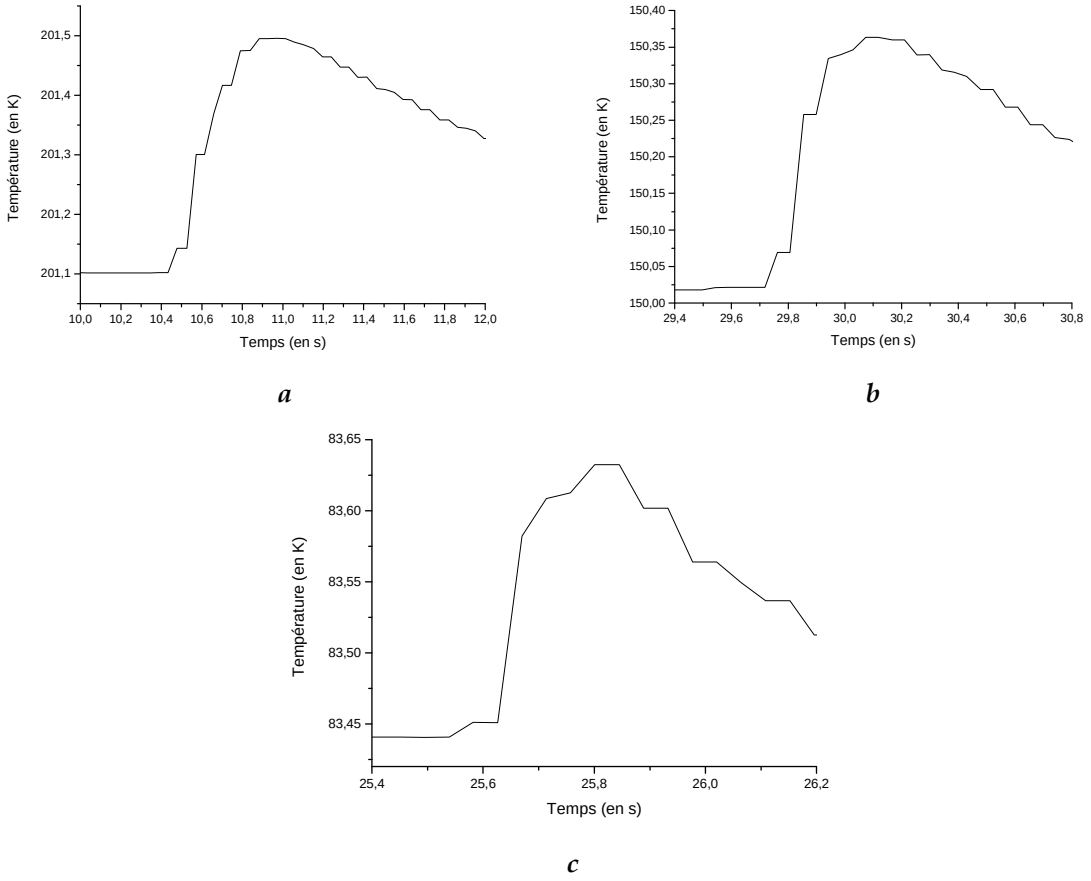
	Diffusivité thermique (en 10^{-6} m^2/s)	Densité (en kg/m^3)	Capacité thermique (en J/kg.K)	Conductivité thermique (en W/m.K)
Méthode de Parker	3,107	4583	583	8,3
Méthode des temps partiels	2,6	4583	583	7

Tableau IV - 9 : Diffusivité thermique mesurée et conductivité thermique calculée pour un cristal Yb : YAG dopé 1 at. % à température ambiante.

Pour le même échantillon, le LNE a mesuré une conductivité thermique de 8,33 W/m.K : la valeur calculée à partir de la méthode de Parker est similaire à la valeur obtenue par le LNE, contrairement à la valeur calculée par la méthode des temps partiels qui est inférieure à 15 % de la valeur du LNE. Cette différence peut s'expliquer par le faible nombre de points

enregistré par la centrale d'acquisition pour une montée en température, rendant ainsi difficile la détermination des temps partiels.

Les figures IV-24 *a*, IV-24 *b* et IV-24 *c* représentent les thermogrammes obtenus respectivement à 200 K, 150 K et 83 K. Pour chaque température, avant de soumettre la face avant de l'échantillon à une impulsion laser, nous avons laissé le système se thermaliser afin de s'assurer que la température de ce dernier soit uniforme.



a ***b***

c

Figure IV - 24 : Thermogrammes obtenus pour un cristal Yb : YAG dopé 1 at. % à 200 K (*a*), 150 K (*b*) et 83 K (*c*).

Les thermogrammes obtenus sont « hachés » : le nombre de points d'acquisition représentatifs de la montée en température diminue avec la température. La méthode des temps partiels ne pouvant plus être utilisée, seule la méthode de Parker est envisageable : pour la température de 83 K, le temps de demi-montée a été estimé. Le tableau IV-10 présente les valeurs des diffusivités thermiques estimées dans le cadre de ces mesures. Les valeurs de la capacité thermique massique correspondent aux valeurs mesurées par Aggarwal *et al.* pour un cristal YAG non dopé [Aggarwal 05].

	Diffusivité thermique (en 10^{-6} m²/s)	Densité (en kg/m³)	Chaleur spécifique (en J/kg.K)	Conductivité thermique (en W/m.K)
200 K	12,2	4583	420	23,5
150 K	46,6	4583	300	64,1
83 K	139,8	4583	100	65

Tableau IV - 10 : Diffusivités thermiques mesurées et conductivités thermiques calculées pour un cristal Yb : YAG dopé 1 at. % à basse température.

Pour des températures de 200 K, 150 K et 100 K, le tableau suivant rassemble les valeurs de diffusivités thermiques mesurées par Aggarwal *et al.* pour des cristaux YAG non dopé et dopé 2 at. % ytterbium [Aggarwal 05]. En toute logique, nos valeurs expérimentales devraient être comprises entre ces valeurs. Les valeurs de diffusivités thermiques sont données en x10^{-6} m²/s.

	Cristal YAG non dopé	Cristal Yb :YAG dopé 2 at. %
200 K	9,1	6,8
150 K	18,7	13,3
100 K	63,8	44,9

Tableau IV - 11 : Diffusivités thermiques mesurées pour des cristaux YAG non dopé et dopé 2 at. % à 200, 150 et 100 K [Aggarwal 05].

A basse température, les valeurs que nous avons mesurées pour un cristal YAG dopé 1 at. % ytterbium sont inférieures à celles mesurées par Aggarwal *et al.* : le problème réside dans la détermination précise des temps de demi-montée (ou des temps partiels dans le cas de l'utilisation de la méthode des temps partiels).

Le problème rencontré lors de ces mesures a pour origine le temps de réponse du contrôleur de température. En effet, ce dernier effectue une mesure environ toutes les 40 ms.

Trois points de vue sont alors à envisager :

- la modélisation des quadripôles nous permettrait de tracer une courbe se rapprochant au mieux de la courbe expérimentale. Cette démarche impose de faire une étude paramétrique de notre système et d'estimer ainsi les paramètres du nombre de Biot et de la diffusivité thermique. Cette méthode permettrait de déterminer directement la valeur de la diffusivité thermique. Le seul problème est qu'il peut exister plusieurs combinaisons possibles de valeurs du nombre de Biot et de la diffusivité thermique permettant d'approximer la courbe expérimentale.
- le régime périodique serait à envisager pour résoudre les problèmes préalablement cités. Le principe consiste à illuminer la face avant de l'échantillon non pas par une impulsion laser mais par plusieurs impulsions lasers ayant une cadence donnée. En enregistrant à la fois, le signal mesuré par la sonde de température mais également le

signal émis par les diodes lasers (signal enregistré par une photodiode), il est possible de déterminer le déphasage entre ces deux signaux. En réalisant cette mesure à deux fréquences différentes, il est possible d'en déterminé à la fois le nombre de Biot et la diffusivité thermique. Une fois ces paramètres déterminés, par l'intermédiaire de la méthode des quadripôles, la modélisation permettrait de comparer la courbe théorique avec la courbe expérimentale et ainsi de vérifier l'exactitude des valeurs calculées [Goyheneche 97].

Les deux premiers points sont en corrélation, et ne sont à envisager que si un nouveau dispositif expérimental pouvant réaliser des mesures avec une meilleure fréquence d'échantillonnage est mis en place.

- l'utilisation d'un thermocouple relié à une centrale d'acquisition serait un autre moyen expérimental pour mesurer la diffusivité thermique. L'inconvénient de cette sonde de température est que sa sensibilité diminue avec la température.

Un thermocouple type K, de diamètre 0,25 mm, fournie par Thermocoax [Thermocoax], a été placé entre l'échantillon et son support. L'incertitude de mesure correspondante à cette sonde de température est de ± 0,4 K. De la même manière que pour la sonde Cernox, de la graisse à vide a été déposée sur le thermocouple. Ce dernier est relié à un amplificateur de tension, lui-même relié à une centrale d'acquisition de type Nicolet pouvant aller jusqu'à des fréquences d'échantillonnage de 10 000 points par seconde. Le cristal Yb :YAG dopé 1 at. % a été à nouveau testé. La figure IV-25 représente le thermogramme obtenu à 80 K : comparé à celui obtenu avec la sonde Cernox, ce dernier est moins « tronqué », permettant ainsi une meilleure analyse du thermogramme pour déterminer la diffusivité thermique.

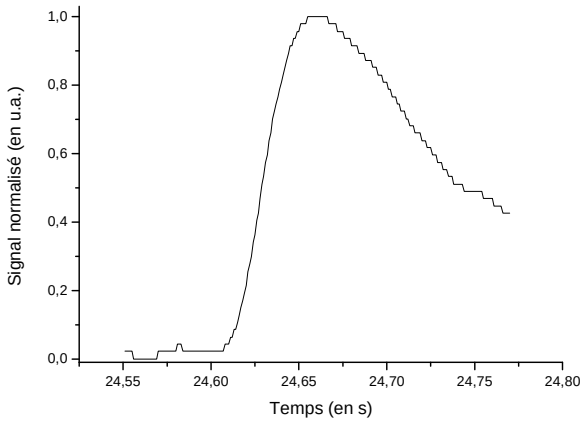


Figure IV - 25 : Thermogramme obtenu à l'aide d'un thermocouple pour un cristal Yb : YAG dopé 1 at. % à 80 K .

La figure IV-26 présente les diffusivités thermiques mesurées à basse température sur le cristal Yb :YAG dopé 1 at. %. Une comparaison avec les valeurs mesurées par Aggarwal *et al.* pour des cristaux YAG non dopé et dopé 2 at. % est donnée.

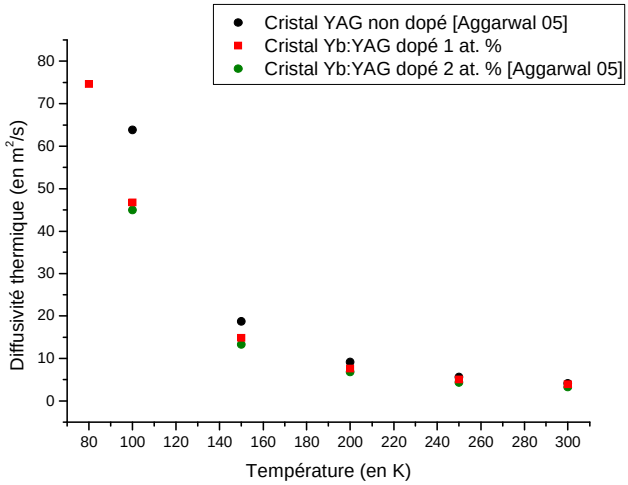


Figure IV - 26 : Diffusivités thermiques obtenues pour un cristal Yb : YAG à basse température. Comparaison avec les diffusivités thermiques mesurées sur des cristaux YAG non dopé et dopé 2 at. % ytterbium [Aggarwal 05].

Nous pouvons tout d'abord remarquer que lorsque la température diminue, la diffusivité thermique augmente : de la température à celle de l'azote liquide, la diffusivité thermique est multipliée par un facteur 40. De plus, les diffusivités thermiques mesurées sur notre échantillon sont comprises entre les valeurs d'Aggarwal obtenues pour des cristaux YAG non dopé et dopé 2 at. % : ceci rejoint donc le modèle de Gaumé pour lequel la conductivité thermique diminue en fonction du taux de dopage.

A ce jour, nous n'avons pas mesuré la capacité thermique massique de notre matériau à basse température. Afin de calculer les conductivités thermiques correspondantes, nous avons repris les valeurs de ce paramètre mesuré par Aggarwal *et al.* à basse température sur des cristaux YAG [Aggarwal 05]. La figure IV-27 montre ainsi les conductivités thermiques obtenues pour un cristal YAG dopé 1 at. % ytterbium à basse température :

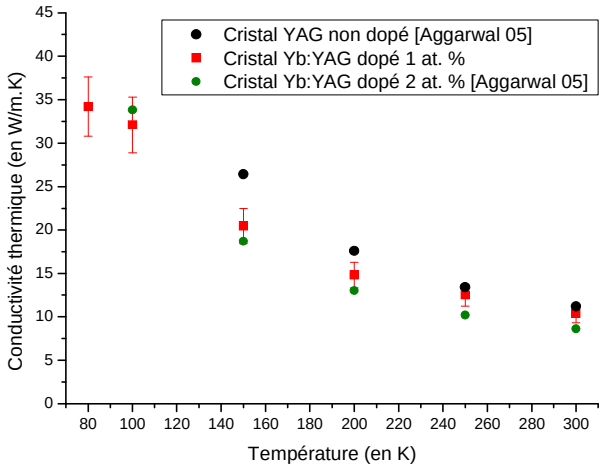
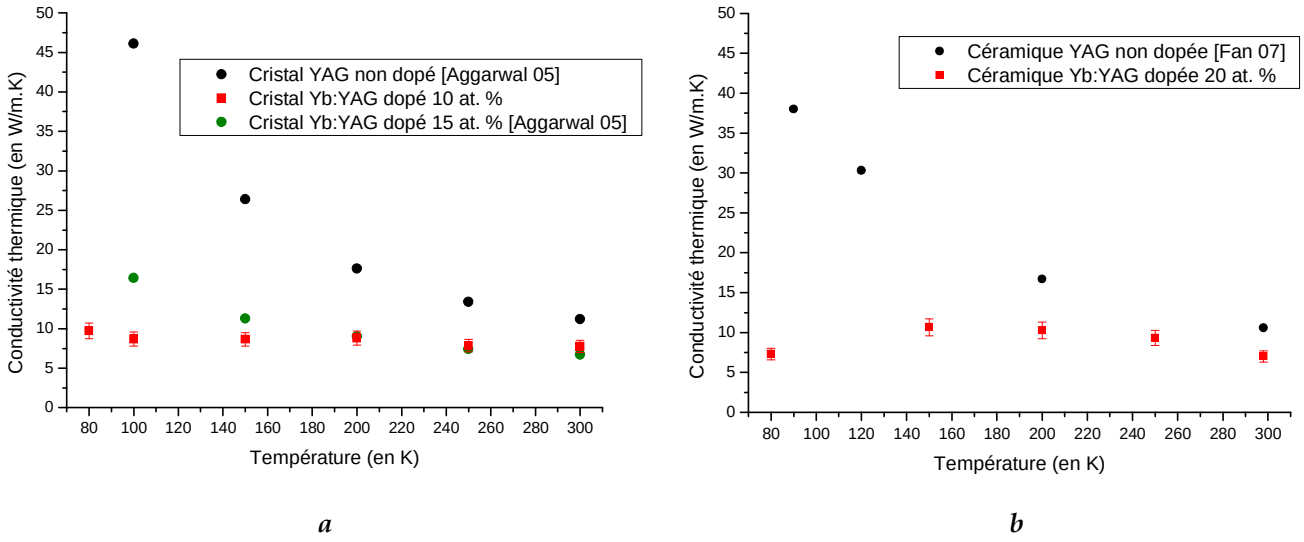


Figure IV - 27 : Conductivités thermiques obtenues pour un cristal Yb : YAG à basse température. Comparaison avec les conductivités thermiques mesurées sur des cristaux YAG non dopé et dopé 2 at. % ytterbium [Aggarwal 05].

D'une manière générale, la conductivité thermique augmente d'un facteur 4 lorsque la température passe de la température ambiante à la température de l'azote liquide. Nous pouvons également remarquer que l'augmentation de la conductivité thermique est moins significative que celle de la diffusivité thermique lorsque la température diminue. Ce phénomène peut s'expliquer par la diminution non négligeable de la capacité thermique massique du matériau. Ce dernier paramètre joue un rôle important dans la détermination de la conductivité thermique : dans le cadre de la méthode flash laser, il est donc nécessaire de mesurer à la fois la diffusivité thermique mais également la capacité thermique massique en fonction de la température du matériau.

Enfin, au même titre que les mesures de diffusivité thermique, les valeurs de conductivité thermique mesurées sur un cristal YAG dopé 1 at. % ytterbium sont comprises entre les valeurs mesurées par Aggarwal *et al.* pour un cristal YAG non dopé et dopé 2 at. %.

D'autres mesures ont été réalisées sur un cristal Yb :YAG dopé 10 at. % et sur une céramique Yb :YAG dopée 20 at. % : les résultats obtenus à basse température sont représentés respectivement sur la figure IV-28 *a* et IV -28 *b* (une comparaison avec les valeurs mesurées par Aggarwal et Fan est donnée [Aggarwal 05],[Fan 07])



a ***b***

Figure IV - 28 : *a* : Conductivités thermiques obtenues pour un cristal Yb : YAG dopé 10 at. % à basse température. *b* : Conductivités thermiques obtenues pour une céramique Yb : YAG dopée 20 at. % à basse température. Comparaison avec les conductivités thermiques mesurées sur des cristaux / céramiques YAG [Aggarwal 05], [Fan 07].

A température ambiante et à 250 K, les valeurs de conductivité thermique mesurées sont respectivement de 7,7 et 8 W/m.K. Aux mêmes températures, Aggarwal *et al.* mesurent respectivement des valeurs de 11,2 et 13,4 W/m.K pour un cristal YAG non dopé et 6,7 et 7,4 W/m.K pour un cristal YAG dopé 15 at. % ytterbium. Les valeurs mesurées sont en accord avec celles de la littérature. Cependant, aux basses températures, les résultats obtenus pour un cristal Yb :YAG dopé 10 at. % sont inattendus : pour des températures inférieures à 200 K, les valeurs mesurées devraient être comprises entre les valeurs obtenues pour un

cristal YAG non dopé et un cristal Yb :YAG dopé 15 at. % [Aggarwal 05]. A ce jour, aucune explication n'a pu être trouvée pouvant expliquer ce phénomène.

Fan *et al.* ont mesuré la conductivité thermique d'une céramique YAG non dopée lorsque la température diminue. A température ambiante, ils mesurent une valeur de 10,6 W/m.K [Fan 07]. Pour une céramique YAG dopée 20 at. % ytterbium, nous mesurons une conductivité thermique de 7 W/m.K. Conformément au modèle de Gaumé, la conductivité thermique diminue lorsque le taux de dopage augmente. Cependant, nous pouvons remarquer que la conductivité thermique de la céramique dopée 20 at. % augmente jusqu'à atteindre un maximum autour de 200 K, pour ensuite diminuer lorsque la température diminue. Nous verrons par la suite, que ces résultats sont à prendre avec précaution.

Intéressons nous désormais aux conductivités thermiques de céramiques sesquioxydes d'yttrium, de scandium et de lutétium dopées ytterbium à basse température. Pour chaque matériau, lors du calcul de ce paramètre, nous avons pris en considération les mesures de capacités thermiques massiques réalisées à température cryogénique (Cf. Figure IV-19).

Des mesures de conductivité thermique ont également été menées à basse température sur une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. %. La figure IV-29 présente les résultats obtenus à basse température, une comparaison avec les valeurs mesurées par Fan *et al.* sur une céramique non dopée est donnée.

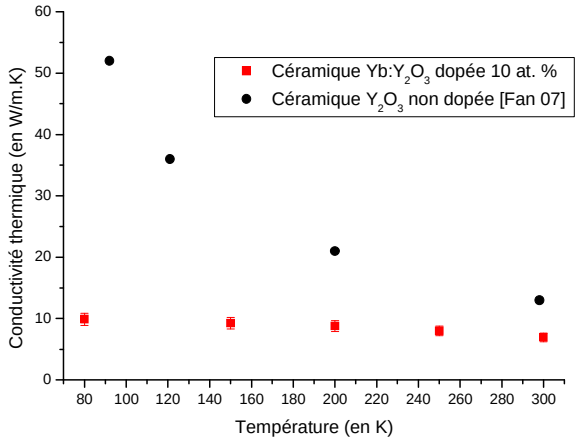
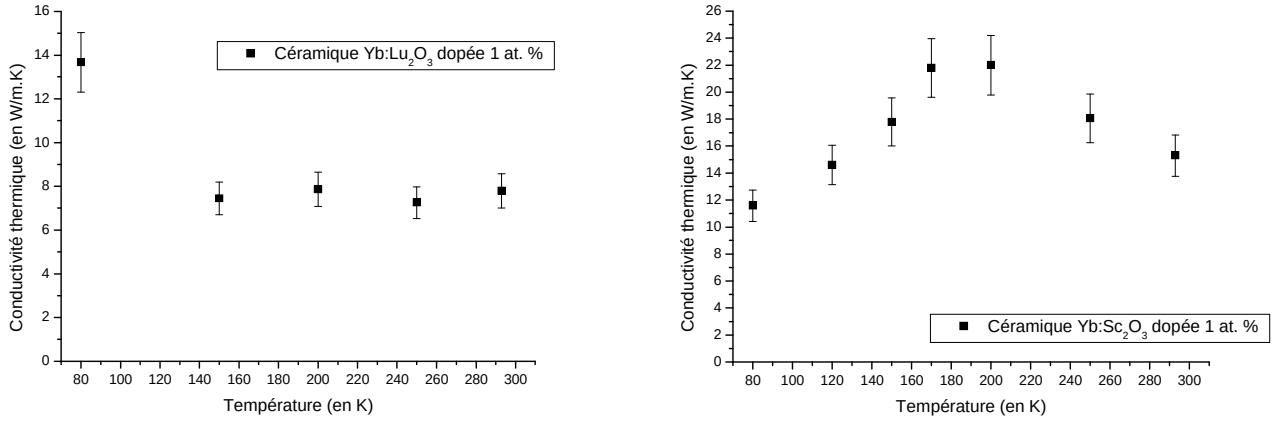


Figure IV - 29 : Conductivités thermiques obtenues pour une céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. % à basse température. Comparaison avec les conductivités thermiques mesurées sur une céramique Y_2O_3 non dopée [Fan 07].

Comparée à la conductivité thermique donnée par Fan *et al.* pour une céramique Y_2O_3 non dopée (valeur de 13 W/m.K), la valeur mesurée pour une céramique Yb :Y_2O_3 dopée 10 at. % est de 7 W/m.K, soit une valeur pratiquement deux fois plus petite que celle pour un matériau non dopé. Cependant, lorsque la température du matériau chute de la température ambiante à la température de l'azote liquide, la conductivité thermique n'augmente que d'un facteur 1,5 alors que pour une céramique non dopée, la conductivité augmente d'environ un

facteur 4. Il serait alors intéressant de réaliser ce type de mesure pour des températures inférieures à 77 K.

Les figures IV-30 *a* et IV-30 *b* représentent respectivement les conductivités thermiques mesurées pour des céramiques Lu_2O_3 et Sc_2O_3 dopées 1 at. %.



a ***b***

Figure IV - 30 : *a* : Conductivités thermiques obtenues pour une céramique Yb : Lu_2O_3 dopée 1 at. % à basse température. *b* : Conductivités thermiques obtenues pour une céramique Yb : Sc_2O_3 dopée 1 at. % à basse température.

Aucune donnée n'est présente dans la littérature quant à l'évolution de la conductivité thermique de ces deux matériaux à basse température. Cependant, à température ambiante, les conductivités thermiques de cristaux Lu_2O_3 et Sc_2O_3 non dopés sont respectivement de 12,2 et 15,5 W/m.K [Mix 99]. Comparées à nos mesures expérimentales, à température ambiante, pour des céramiques Yb : Lu_2O_3 et Yb : Sc_2O_3 dopées 1 at. %, nous trouvons respectivement des valeurs de 8 et 15 W/m.K, soit une valeur voisine de celle donnée par Mix pour le scandium mais inférieure à 30 % près pour le lutétium.

Pour ces deux matériaux, nous pouvons remarquer que la conductivité thermique augmente lorsque la température diminue. Pour le cas du lutétium, elle augmente d'un facteur 2 quand la température chute de la température ambiante à celle de l'azote liquide. Cependant, dans le cas du scandium, l'allure de la courbe d'évolution de la conductivité thermique en fonction de la température ressemble à celle décrite par Slack *et al.* [Slack 71].

Enfin, des dernières mesures de conductivités thermiques ont été effectuées sur des cristaux de CaF_2 non dopé et dopé 3 at. % ytterbium. Les capacités thermiques massiques à basse température n'ayant pas été mesurées pour ce matériau, nous nous sommes référés aux valeurs citées par Corning [Corning]. Les résultats sont présentés sur la figure IV-31 *a* pour un cristal non dopé et sur la figure IV-31 *b* pour un cristal dopé 3 at. %. La figure IV-31 *c* regroupe l'ensemble des résultats. Une comparaison avec les valeurs de Corning et mesurées par Slack sur des cristaux de CaF_2 non dopés [Slack 61] et Popov *et al.* sur des cristaux dopés [Popov 08] est également donnée.

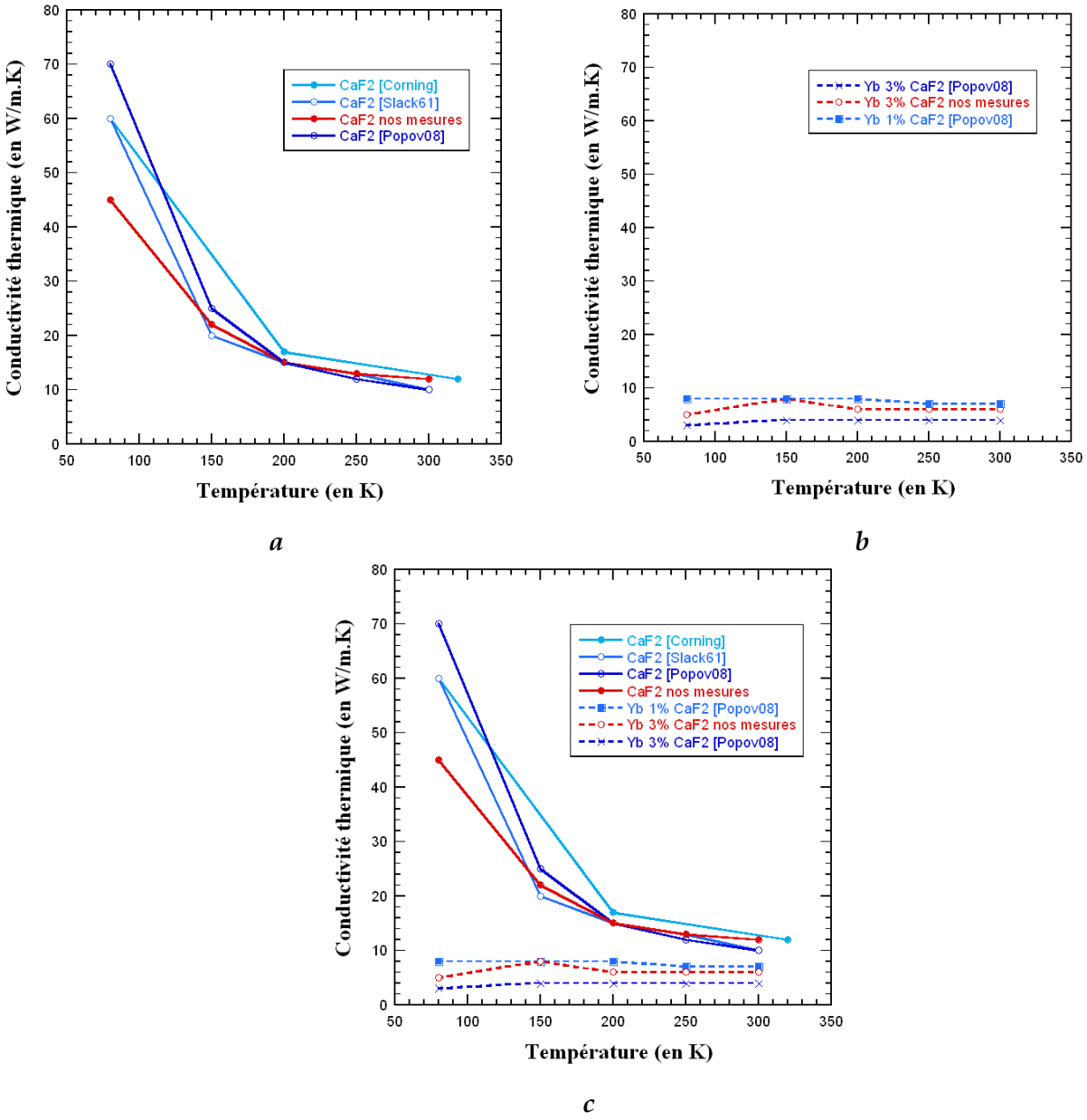


Figure IV - 31 : Conductivités thermiques obtenues pour des cristaux CaF_2 non dopé (*a*) et dopé ytterbium (*b*) à basse température. Ensemble des résultats regroupés (*c*).

Pour des cristaux non dopés, et pour des températures comprises entre 296 et 150 K, les valeurs de conductivité thermique mesurées sont semblables, au maximum à 10 % près, des valeurs de la littérature.

Comparons à présent les résultats trouvés pour des cristaux non dopé et dopé 3 at. % : entre 80 K et 293 K, la conductivité thermique est augmentée d'un facteur 4 alors que pour un cristal dopé, la conductivité thermique semble passer par un maximum autour de 150 K (lorsque la température chute de 293 K à 150 K, la conductivité thermique est augmentée d'un facteur 2). Nous restons toutefois prudents quant aux valeurs de conductivités thermiques mesurées. En effet, à ce jour, nous n'avons pas mesuré les capacités thermiques massiques de ces matériaux à basse température. Compte tenu de l'influence non négligeable de ce paramètre, nous nous basons sur les valeurs de diffusivités thermiques mesurées. Pour

un cristal non dopé, et lorsque la température passe de 293 K à 80 K, la diffusivité thermique augmente de 4,6x10^{-6} m^2/s à 50,8 x10^{-6} m^2/s (correspondant ainsi à une augmentation d'un facteur 10). Pour un cristal Yb : CaF_2 dopé 3 at. %, lorsque la température du matériau chute de 293 K à 80 K, la diffusivité thermique passe de 2,1 x10^{-6} m^2/s à 5 x10^{-6} m^2/s, soit une augmentation d'un facteur 2.

Enfin, lors de nos mesures, nous avons pu remarquer qu'un très faible taux de dopage fait chuter considérablement la conductivité thermique. Cette constatation a été validée par les résultats obtenus par Popov *et al.*.

IV.5.2.4. Estimation de la température de Debye

Que ce soit pour les céramiques Yb : Sc_2O_3 dopée 1 at. % et Yb :YAG dopée 20 at. %, nous avons pu noter que l'allure de la courbe représentative de la conductivité thermique en fonction de la température est semblable à celle présentée par Slack *et al.* [Slack 71]. Rappelons que la conductivité thermique se comporte selon trois façons différentes suivant l'intervalle de température considéré (Cf. § IV.3.2.6.) :

- Pour les hautes températures, lorsque la température est supérieure à la température de Debye, la conductivité thermique est équivalente à un comportement inversement proportionnel à la température,
- Pour des températures plus basses, la conductivité thermique suit une évolution en $exp(-\theta_D/2T)$,
- Enfin, aux très basses températures, pour des températures inférieures à la température de Debye, la conductivité thermique varie en T^3.

Une tentative de modélisation a été appliquée sur les courbes de conductivité thermique du scandium et du YAG, suivant les trois comportements cités préalablement. Nous restons toutefois prudent quant aux résultats obtenus et aux modélisations correspondantes.

Concernant la céramique Yb : Sc_2O_3 dopée 1 at. %, la figure IV-32 représente les points expérimentaux obtenus (points noirs) ainsi que les courbes modalisant le comportement de la conductivité thermique (courbes rouges).

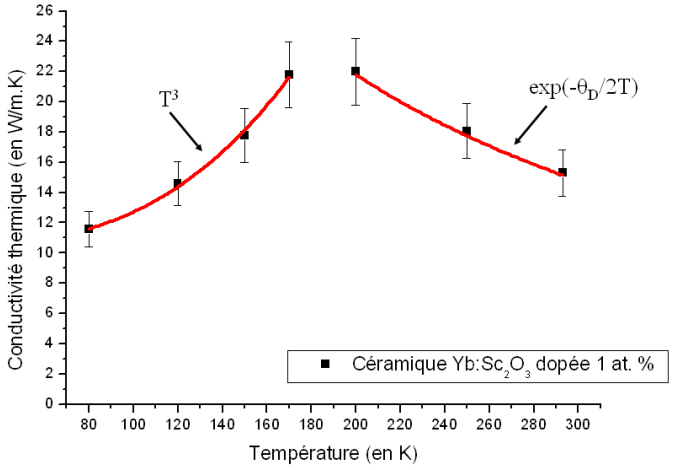


Figure IV - 32 : Modélisation du comportement de la conductivité thermique obtenue pour une céramique Yb :Sc_2O_3 dopée 1 at. % en fonction de la température.

En considérant la modélisation, nous trouvons une température de Debye de 220 K. Cette valeur est très éloignée de celle donnée par Mix de 653 K pour un cristal non dopé [Mix 99].

Nous avons fait de même pour la courbe obtenue pour la céramique Yb :YAG dopée 20 at. %, et nous avons estimée une température de Debye de 1200 K. Plusieurs auteurs donnent la température de Debye pour YAG, celle-ci peut varier de 500 à 800 K. Cependant, il faut tenir compte de la nature du matériau (cristal / céramique) et du taux de dopage en ion ytterbium.

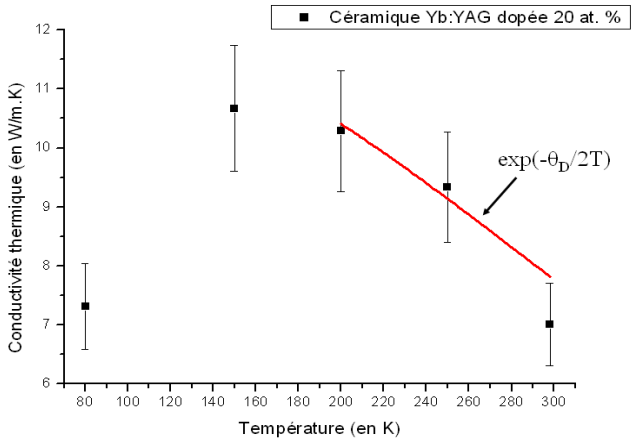


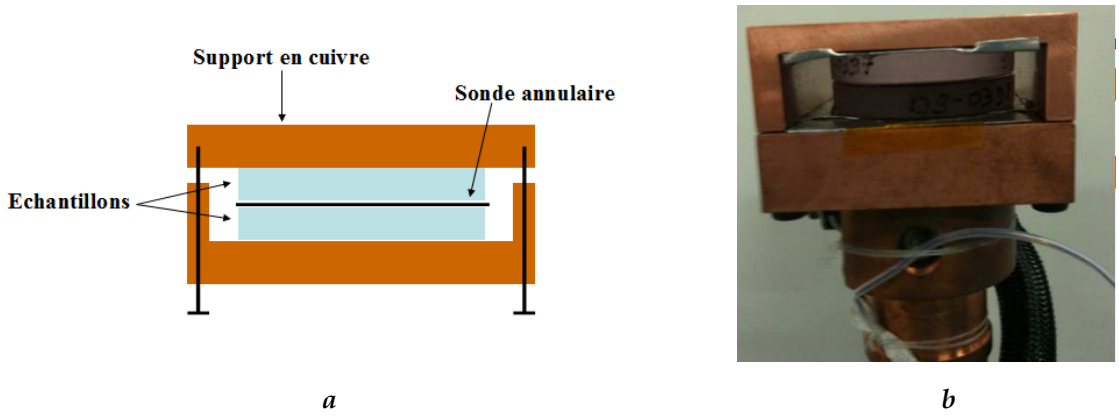
Figure IV - 33 : Modélisation du comportement de la conductivité thermique obtenue pour une céramique Yb :YAG dopée 20 at. % en fonction de la température.

IV.5.3. Méthode de la sonde annulaire

Dans le cadre des mesures de conductivité thermique, la méthode de la sonde annulaire présente l'avantage de mesurer directement ce paramètre. Cette méthode nécessite d'avoir

des échantillons de grandes dimensions. Cependant, pour des matériaux faiblement conducteurs, des échantillons de taille suffisante peuvent convenir.

Nous avons donc testé les mêmes verres phosphate dopés néodyme que ceux utilisés pour l'étude à température ambiante. Ces échantillons sont des disques de diamètre 30 mm et d'épaisseur 5 mm. Pour mesurer la conductivité thermique de ce matériau à basse température, nous avons développé un support échantillon spécifique en cuivre (Figure IV-34 *a*). La figure IV-34 *b* représente une photo de ce support.



a *b*

Figure IV - 34 : *a* : Schéma du dispositif expérimental mis en place pour la mesure de la conductivité thermique par la méthode de la sonde annulaire à basse température. *b* : Photo du support échantillon avec deux échantillons de verre phosphate dopé néodyme.

La courbe représentée en figure IV-35 représente la conductivité thermique de ce matériau obtenue à basse température :

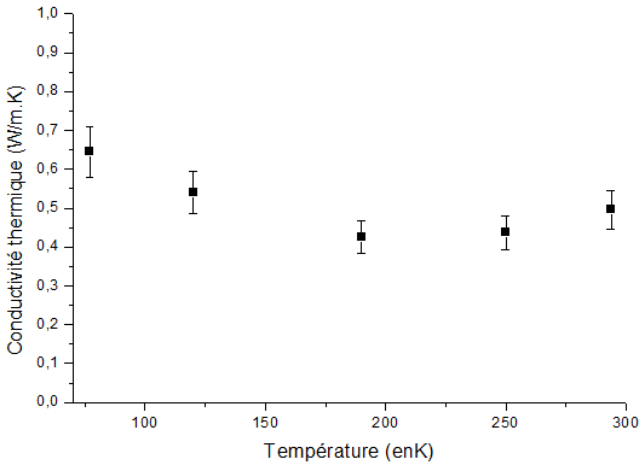


Figure IV - 35 : Conductivité thermique du verre phosphate dopé néodyme, verre HOYA, LHG-8 à basse température.

A température ambiante et à 80 K, nous mesurons respectivement des valeurs de conductivité thermique de 0,5 W/m.K et 0,6 W/m.K. Nous retrouvons la valeur de la conductivité thermique mesurée lors des premiers tests effectués par NeoTIM à température ambiante. Dans le cas particulier du verre, nous pouvons constater que l'évolution de la

conductivité thermique en fonction de la température est quasiment constante. Ce phénomène a également noté par Tempel *et al.* [Tempel 00], [Tempel 02]. Ces derniers ont mesuré la conductivité thermique de verres pour des températures comprises entre 273 et 1073 K : à température ambiante, ils trouvent une valeur de conductivité thermique voisine de 1 W/m.K. Cependant, aucune explication liée à ce phénomène n'est précisée.

IV.6 Conductivité thermique en fonction du taux de dopage

Nous avons vu que le modèle développé par Gaumé permet de prédire la conductivité thermique du matériau en fonction de son taux de dopage en ion actif [Gaumé 02], [Gaumé 03]. Nous avons appliqué ce modèle à nos matériaux lasers et comparé les résultats expérimentaux à ceux du modèle.

Les tableaux ci-dessous regroupent les valeurs de conductivité thermique mesurées par diverses méthodes ou laboratoires dans les cas des sesquioxydes d'yttrium, de scandium, et de lutétium.

	Conductivité thermique mesurée par le LEMTA (méthode flash laser) (en W/m.K)	***Conductivité thermique mesurée par le LNE (méthode flash laser)*** (en W/m.K)	***Conductivité thermique mesurée par NeoTIM (méthode disque chaud)*** (en W/m.K)
Céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. %	5,85	5,74	5,27

	Conductivité thermique (en W/m.K)
Céramique Yb : Sc_2O_3 dopée 10 at. %	4,11
Céramique Yb : Sc_2O_3 dopée 1 at. %	7,56

	Conductivité thermique (en W/m.K)
Céramique Yb : Lu_2O_3 dopée 10 at. %	10,01
Céramique Yb : Lu_2O_3 dopée 1 at. %	11,51

Tableau IV - 12 : Conductivités thermiques mesurées pour des céramiques Y_2O_3, Sc_2O_3 et Lu_2O_3 pour différents taux de dopage en ion ytterbium.

Les figures IV-36 *a*, IV-36 *b* et IV-36 *c* représentent respectivement les conductivités thermiques de céramiques Y_2O_3, Sc_2O_3 et Lu_2O_3 pour différents taux de dopage. Pour chaque matériau, une comparaison avec le modèle de Gaumé est présente.

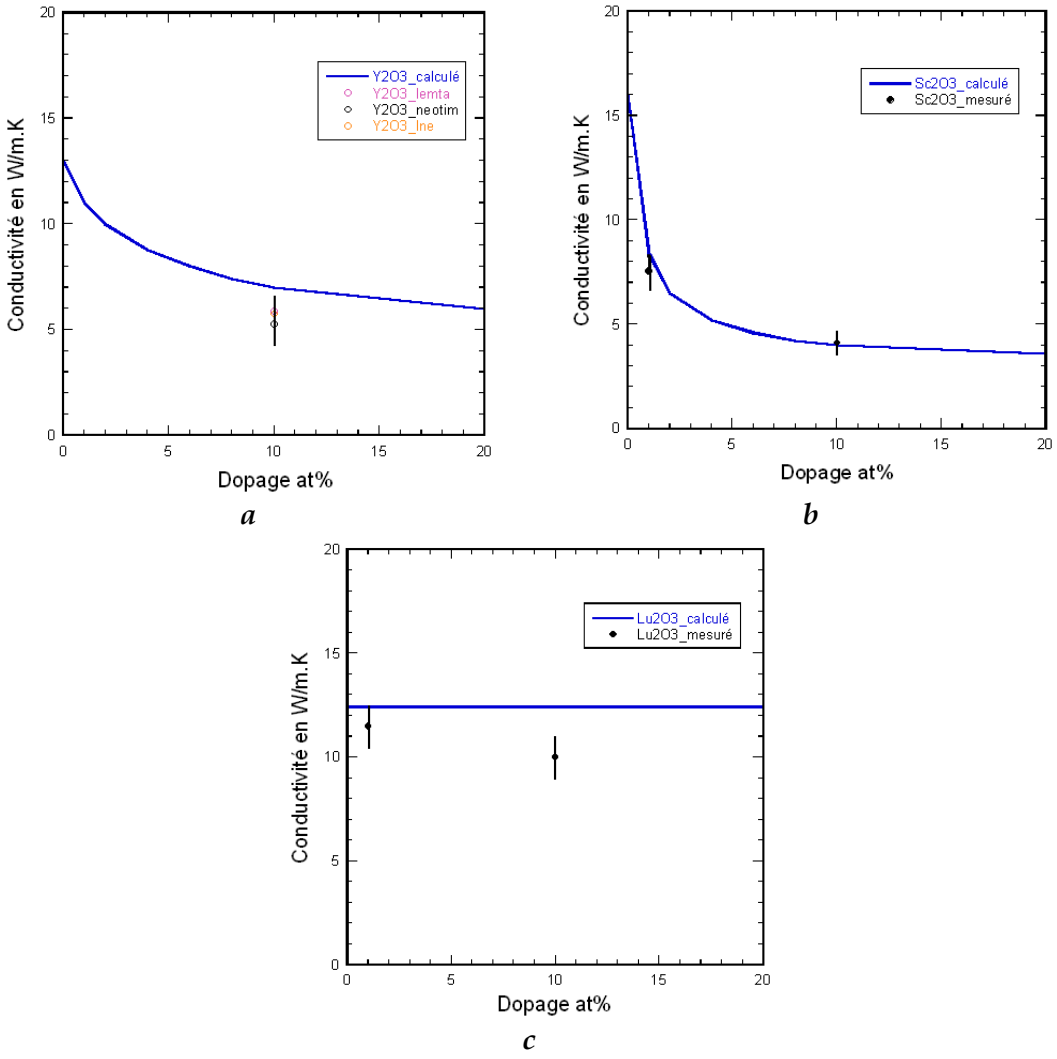


Figure IV - 36 : Conductivités thermiques mesurées pour des céramiques Y_2O_3, Sc_2O_3 et Lu_2O_3 pour différents taux de dopage en ion ytterbium. Comparaison avec les résultats du modèle de Gaumé.

Dans le cas de l'yttrium, pour un taux de dopage de 10 at. % en ion ytterbium, nos valeurs expérimentales sont légèrement inférieures à celle calculée par le modèle pour un même taux de dopage. Rappelons que ce modèle est nécessite de connaître précisément la valeur de la conductivité thermique du matériau non dopé : l'allure de la courbe dépend donc de cette valeur. En effet, dans le cas du lutétium, nous pouvons voir que pour une céramique dopée 1 at. %, la valeur mesurée est légèrement inférieure à celle du modèle.

IV.7 Conclusion

Dans cette partie, une démarche scientifique a été proposée permettant de caractériser le paramètre de conductivité thermique. Aucune information n'est présente dans la littérature concernant les matériaux étudiés. Pour ce type de mesure, nous rappelons que la stratégie suivante a été adoptée. Des premières mesures ont été menées à température ambiante par les méthodes flash laser et de la sonde annulaire sur des matériaux dits de référence : le but étant de comparer et ainsi valider les résultats trouvés comparés à ceux de la littérature. La métrologie correspondante à ce type de mesure est ensuite adaptée à notre système cryogénique.

Dans le cadre des mesures par la méthode flash laser, son estimation nécessite de mesurer à la fois la diffusivité thermique, la capacité thermique massique et la densité en fonction de la température. Outre l'influence de la température sur la diffusivité thermique, nous avons montré que la capacité thermique massique a une influence non négligeable sur les valeurs de la conductivité thermique lorsque la température du matériau diminue. N'ayant réalisé des mesures de ce paramètre que sur les céramiques sesquioxydes de scandium, d'yttrium et de lutétium à basse température, nous restons donc prudents sur les valeurs de conductivités thermiques calculées sur les autres matériaux, et nous nous attachons donc aux valeurs de diffusivités thermiques mesurées et aux comportements de ces dernières lorsque la température diminue.

Pour les mesures de la diffusivité thermique, deux types de sonde ont été utilisés : une sonde Cernox reposant sur le principe de mesure d'une résistance et un thermocouple. Lorsque la température diminue, les sondes usuellement utilisées, telles que le thermocouple ou encore la sonde Pt 100, ont une sensibilité qui diminue avec la température, ce qui n'est pas le cas de la sonde Cernox ayant un comportement inverse. Il serait alors intéressant de développer une nouvelle métrologie permettant d'utiliser ce type de sonde et ainsi obtenir de meilleures précisions de mesure.

Pour l'estimation de la conductivité thermique, la méthode de Parker a été employée. Cependant, son utilisation est discutable pour déterminer ce paramètre puisqu'elle ne prend pas en considération les pertes thermiques du système. Il serait donc intéressant d'utiliser une nouvelle méthode d'estimation utilisant toutes les informations fournies par le thermogramme enregistré lors de la mesure et permettant ainsi d'obtenir de meilleures précisions sur les valeurs de conductivités thermiques calculées. Nous pouvons entre autre citer la modélisation suivant la méthode des quadripôles.

Pour les raisons évoquées préalablement, nous restons donc prudents dans les valeurs de conductivité thermique estimées ainsi que sur les valeurs de Debye calculées pour les céramiques de scandium et de YAG.

Enfin, nous avons montré l'influence du dopage en ion ytterbium sur les valeurs de la conductivité thermique. A température ambiante, les valeurs mesurées sont en accord avec le modèle proposé par Gaumé [Gaumé 02].

Conclusion générale et perspectives

Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre du développement de lasers de forte puissance, à base de matériaux dopés à l'ion ytterbium. Il s'articule autour de deux axes complémentaires : d'une part, l'étude des performances lasers de matériaux à basse température ; et d'autre part, l'étude plus générale des propriétés thermo-optiques de ces matériaux à des températures cryogéniques.

Dans le premier chapitre de ce mémoire de thèse, nous avons montré que l'ion ytterbium présente de nombreux avantages pour la réalisation de lasers de haute puissance moyenne. En effet, sa structure électronique très simple, seulement composée de deux niveaux énergétiques autour de 10000 cm^{-1}, permet de s'affranchir des phénomènes d'absorption à partir de l'état excité ainsi que des processus de transfert d'énergie par relaxation croisée. De plus, la durée de vie de l'état excité de l'ion ytterbium est quatre fois plus longue que celle de l'ion néodyme (1 ms contre 250 µs), ce qui se traduit par un meilleur stockage de l'énergie. Enfin, le défaut quantique est faible et les pertes d'énergie de pompe sous forme de chaleur au sein du milieu laser sont fortement réduites.

Nous avons également rappelé trois facteurs de mérite, dépendant des paramètres intrinsèques du matériau tels que la conductivité thermique, le coefficient thermo-optique *dn/dT* ou le coefficient d'expansion thermique… Il s'est avéré que les grenats, les sesquioxydes de terre rare ou bien encore le fluorure de calcium apparaissent comme les matrices hôtes les plus prometteuses à l'ion ytterbium pour des applications lasers de forte puissance.

Nous avons enfin montré l'influence de la température sur les propriétés spectroscopiques, thermomécaniques et thermo-optiques : lorsque la température du matériau laser diminue, ces propriétés sont améliorées. Nous pouvons entre autre citer l'augmentation de la conductivité thermique du matériau lorsque la température de ce dernier chute.

Le second chapitre s'est intéressé à comparer expérimentalement les performances lasers de céramiques sesquioxydes de terre rare d'yttrium Y_2O_3, de scandium Sc_2O_3 et de lutétium Lu_2O_3 dopées ytterbium à basse température. Après avoir décrit le montage expérimental que nous avons mis en place, pour chaque matériau, et pour des températures allant de la température de l'azote liquide à la température ambiante, nous avons mesuré l'énergie en sortie de la cavité et la longueur d'onde du faisceau correspondant. Nous avons ainsi pu remarquer qu'une diminution de la température du matériau laser entraîne une augmentation de la pente d'efficacité laser et une diminution du seuil de fonctionnement des impulsions lasers. A ce titre, nous avons pu également constater que les longueurs d'onde du faisceau laser se décalent vers les courtes longueurs d'onde à basse température.

Dans la seconde partie, nous nous sommes intéressés plus en détail aux propriétés thermiques de ces matériaux à basse température. Ces propriétés sont quasiment inexistantes dans la littérature à basse température : seules des mesures concrètes ont été réalisées sur des matériaux YAG, Y_2O_3 et CaF_2.

Le troisième chapitre est consacré aux mesures du coefficient de dilatation et du coefficient thermo-optique à ces températures. La mesure de ce premier paramètre a été menée au Laboratoire Nationale de Métrologie et d'Essais pour des températures allant de 120 à 300 K à l'aide d'un dilatomètre commercial, Perkin Elmer. Nous avons ainsi pu montrer que la diminution de la température du matériau correspond à une diminution de son coefficient de dilatation. A ce jour, peu de modèle existe permettant de prédire l'influence de la température sur ce coefficient. Concernant les mesures du coefficient thermo-optique *dn/dT*, nous avons mis en place un interféromètre type Mach-Zehnder : à partir de la mesure du coefficient de dilatation et de la mesure du coefficient de variation de chemin optique en fonction de la température, nous pouvons en déduire les coefficients thermo-optiques. Nous avons montré que nos valeurs expérimentales sont semblables aux valeurs de la littérature pour des matériaux YAG, Y_2O_3 et CaF_2. Enfin, concernant le cas d'un cristal CaF_2, il existe un modèle de prédiction du coefficient thermo-optique en fonction de la température, modèle ne dépendant uniquement que de la valeur du coefficient d'expansion thermique : nous avons montré que nos valeurs expérimentales sont semblables à celles du modèle.

Le dernier chapitre s'est intéressé à montrer la faisabilité des mesures de conductivité thermique à basse température. Ces mesures sont plus délicates à mettre en place du fait de la petite taille, de la transparence et de la grande conductivité thermique qui caractérisent nos matériaux. D'autre part, les valeurs de conductivité thermique de nos échantillons sont quasiment inexistantes dans la littérature, en particulier à basse température. Le but du second chapitre de cette seconde partie est de proposer une méthode permettant de déterminer ce paramètre.

Dans un premier temps, il a été nécessaire de faire ces mesures à température ambiante afin de valider les résultats trouvés sur des matériaux références types YAG, puis d'adapter la méthodologie à notre système cryogénique et ainsi réaliser des mesures à basse température. Nous avons utilisé différentes méthodes : la méthode flash laser pour une mesure dite indirecte de la conductivité thermique, et les méthodes du disque chaud, du fil chaud et de la sonde annulaire pour des mesures dites directes.

Dans le cas de la méthode flash laser, la conductivité thermique nécessite de connaître les valeurs de la capacité thermique massique, de la densité et de la diffusivité thermique des matériaux.

Nous avons ainsi testé les méthodes de la sonde annulaire et flash laser pour mesurer ce paramètre à basse température. Il s'est avéré que chacune de ces méthodes sont confrontées à des limites. La taille de l'échantillon et la grande conductivité thermique des matériaux est un facteur limitant les mesures par la méthode de la sonde annulaire. Cependant, nous avons montré que cette méthode donne des résultats cohérents avec ceux de la littérature pour des matériaux faiblement conducteurs. La méthode flash laser est limitée à certains paramètres comme l'étape de métallisation nécessaire pour des matériaux transparents, mais également comme le refroidissement homogène du matériau.

Il existe un modèle de prédiction de la conductivité thermique d'un cristal en fonction du taux de dopage en ion actif. Nous avons établi une comparaison entre nos valeurs expérimentales et les valeurs théoriques de ce modèle.

Perspectives :

Parmi les perspectives à court et moyen termes, nous pouvons citer :

- la poursuite des tests lasers sur des céramiques Yb :YAG à basse température,

- les mesures des spectres d'émission et d'absorption des matériaux lasers aux températures correspondantes au décalage en longueur d'onde que nous avons observé lors de la caractérisation des performances lasers,

- les mesures des gains petits signaux pour les matériaux lasers que nous avons caractérisés. Il s'agirait de mettre en place un montage de type pompe – sonde. L'utilisation d'une source laser accordable nous permettrait de mesurer le profil spectral du gain d'un amplificateur en régime de petit signal en fonction de divers paramètres comme l'intensité, la durée ou le spectre des impulsions de pompe, ou encore l'épaisseur du matériau amplificateur. Cette sonde accordable pourrait être un oscillateur titane saphir,

Pour les mesures du coefficient thermo-optiques, il serait intéressant de réaliser le même travail que celui décrit dans ce mémoire mais pour d'autres longueurs d'onde, le but étant de pouvoir déterminer les coefficients de Sellmeier.

Dans le cadre des mesures de la conductivité thermique, trois solutions sont à envisager. La première, évidente mais pas des moindres, serait d'obtenir des échantillons de grandes dimensions pour utiliser la méthode de la sonde annulaire. Cela éviterait également l'étape de métallisation qui détériore le matériau testé. Les deux perspectives suivantes concernent les mesures flash laser :

- dans le cadre d'une mesure par contact, il serait intéressant de tester les sondes en semi-conducteurs développés par le Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée. Nous rappelons qu'ils ont développé des semi-conducteurs en tellure de bismuth, ayant une sensibilité de 360 µV/K et un temps de réponse très inférieur à celui des autres détecteurs de température,

- il serait également intéressant d'envisager des mesures dites sans contact à l'aide de détecteur infrarouge. Comme son nom l'indique, cette méthode est sans contact avec l'échantillon : la notion de résistance de contact entre l'échantillon et la sonde n'existe plus. Deux solutions sont à envisagées. La première serait d'utiliser un cryostat plus grand dans lequel la circulation d'azote liquide serait répartie dans tout son intérieur. Ainsi, nous pourrions y placer un détecteur infrarouge et faire les mesures. Dans le cas où l'obtention d'un cryostat plus grand n'est pas envisageable, la seconde solution serait de mettre en place un dispositif expérimental permettant de placer le détecteur à l'extérieur du cryostat, mais également d'envisager un refroidissement des hublots de ce dernier. Actuellement nos hublots sont à la température ambiante, dans le cas où un détecteur serait placé à l'extérieur de notre cryostat, les mesures seraient gênées par la chaleur qu'apportent les hublots.

Communications scientifiques

Communications à des congrès

A. Garcia, F. Guillen, V. Jubera, B. Le Garrec, V. Cardinali, "Emission and absorption spectra of ytterbium doped ceramic sesquioxides :Sc_2O_3, Y_2O_3 and Lu_2O_3", *poster présenté à la conférence ICL'08*, à Lyon, France, Juillet 2008.

V. Cardinali, E. Marmois, B. Le Garrec, G. Bourdet, "Thermal conductivity measurement of ytterbium doped sesquioxides at low temperature", *présentation orale à la conférence ISOPL'5, International Symposium on Materials and Devices for Nonlinear Optics*, à Porquerolles, France, Juin 2009.

J. Nonlinear Optics & Quantum Optics, **41**, p. 9-18, 2009.

G. Bourdet, O. Casagrande, N. Deguil-Robin, V. Cardinali, B. Le Garrec, "Towards IFE oriented laser chains : cryogenically cooled ytterbium doped materials", *présentation orale à la conférence 7th International Conference on Laser Application*, au Caire, Egypte, Mai 2009.

AIP Conference Proceedings, **1172**, p. 24-26, 2009.

V. Cardinali, E. Marmois, B. Le Garrec, G. Bourdet, "Comparison of ytterbium doped sesquioxides (Sc_2O_3, Y_2O_3 and Lu_2O_3) ceramic gain media at low temperatures", *présentation orale à la conférence 5th Laser Ceramic Symposium*, à Bilbao, Espagne, Décembre 2009.

V. Cardinali, E. Marmois, B. Le Garrec, G. Bourdet, "Performances lasers et conductivité thermique de céramiques sesquioxydes Sc_2O_3, Y_2O_3, Lu_2O_3 dopées ytterbium à basse température", *présentation orale aux Journées Nationales des Cristaux pour l'Optique*, à Valpré Ecully, France, Décembre 2009**.**

E. Marmois, V. Cardinali, G. Le Touzé, B. Le Garrec, "Mesures expérimentales et modélisation par éléments finis des effets thermiques dans des lasers à disques de sesquioxydes dopés Yb^{3+}", *poster présenté aux Journées Nationales des Cristaux pour l'Optique (JNCO)*, à Valpré Ecully, France, Décembre 2009**.**

V. Cardinali, E. Marmois, B. Le Garrec, G. Bourdet, "Thermo-optical measurements of ytterbium doped sesquioxides ceramics", ***présentation orale invitée*** *à SPIE Photonics Europ*, à Bruxelles, Belgique, Avril 2010.

Proceedings of SPIE, "Solid state lasers and amplifiers IV, and high power lasers", Vol. 7721, p. 77210U1-77210U-10. **Obtention du prix du meilleur papier étudiant pour la session "Solid state lasers and Amplifiers".**

E. Marmois, V. Cardinali, G. Le Touzé, B. Le Garrec, "Experimental measurements and finite-element modelling of thermal effects in Yb^{3+} doped sesquioxide thin disk lasers", *présentation orale à SPIE Photonics Europ*, à Bruxelles, Belgique, Avril 2010.

Proceedings of SPIE, "Solid state lasers and amplifiers IV, and high power lasers", Vol. 7721, p. 77210O1-77210O-14.

V. Cardinali, E. Marmois, B. Le Garrec, G. Bourdet, "Performances lasers et conductivité thermique de céramiques sesquioxydes Sc_2O_3, Y_2O_3, Lu_2O_3 dopées ytterbium à basse température", *présentation orale aux Journées Thématiques CMDO (Cristaux Massifs, Micro-Nano-structures et Dispositifs pour l'Optique) « Matériaux dopés Yb^{3+} pour laser de très forte puissance et à impulsions brèves »*, à Le Barp, France, Novembre 2010**.**

V. Cardinali, E. Marmois, B. Le Garrec, G. Bourdet, "Thermo-optical measurements of ytterbium doped sesquioxides ceramics", *présentation orale à la conférence 6th Laser Ceramic Symposium*, à Münster, Allemagne, Décembre 2010.

V. Cardinali, E. Marmois, B. Le Garrec, G. Bourdet, "Determination of the thermo-optic coeffcients and thermal conductivity of yttrebium doped sesquioxides ceramics at cryogenic temperature", *présentation poster à la conférence Advanced Solid-State Photonics, ASSP*, à Istanbul, Turquie, Février 2011.

Proceedings of OSA / ASSP 2011 – AMB20.pdf

V. Cardinali, E. Marmois, B. Le Garrec, G. Bourdet, "Matériaux lasers dopés à l'ion ytterbium : Performances lasers par diodes lasers et étude des propriétés thermo-optiques à des températures cryogéniques", ***présentation orale invitée*** *à la conférence SFO / JNCO*, à Marseille, France, Juillet 2011.

Articles à comité de lecture

B. Le Garrec, G. Bourdet, V.Cardinali, "Comparison of potential ceramic gain media", *Fusion Science and Technology*, **56**, p.369-373, 2009

E. Marmois, V. Cardinali, G. Le Touzé, B. Le Garrec, "Thermal Lensing in Diode-Pumped Ytterbium Doped Sesquioxides Thin-Disks Lasers", *en cours de publication dans IEEE J. Of Quantum Electronics.*

V. Cardinali, E. Marmois, B. Le Garrec, G. Bourdet, "Determination of the thermo-optic coefficient *dn/dT* of ytterbium doped ceramics (Sc_2O_3, Y_2O_3, Lu_2O_3, YAG), crystals (YAG, CaF_2) and neodymium doped phosphate glass at cryogenic temperature", *en cours de publication dans Optical Materials*.

Références bibliographiques

[Aggarwal 05] R. Aggarwal, D. Ripin, J. Ochoa, T. Fan, "Measurements of thermo-optic properties of $Y_3Al_5O_{12}$, $Lu_3Al_5O_{12}$, $YAlO_3$, $LiYF_4$, $LiLuF_4$, BaY_2F_8, $KGd(WO_4)_2$, and $KY(WO_4)_2$ laser crystals in the 80-300 K temperature range", *Journal of Applied Physics*, **98**, p. 103514-1 103514-14, 2005.

[Akiyama 10] J. Akiyama, Y. Sato, T. Taira, "Laser ceramics with rare-earth-doped anisotropic materials", *Optics Letters*, **35**(21), p. 3598-3600, 2010.

[Albach 10] D. Albach, "Amplified Spontaneous Emission and Thermal Management on a High Average-Power Diode-Pumped Solid-State Laser – The Lucia Laser System", *thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique*, spécialité Physique, 2010.

[Avizonis 09] P. Avizonis, D. Bossert, M. Curtin, A. Killi, "Physics of high performance Yb:YAG thin disk lasers", *High-Power Solid-State Lasers CLEO Symposium I: Multikilowatt Solid-State Lasers (CThA), CLEO*, 2009.

[Balageas 96] D. Balageas, "Mesure de la diffusivité thermique par méthode flash", Techniques de l'ingénieur, R2-955, p. 1-11.

[Basiev 10] T. Basiev, M. Doroshenko, O. Alimov, V. Konyushkin, D. Konyushkin, A. Nakladov, V. Osiko, "Spectroscopic and Oscillation Properties of Nd^{3+} Ions in Newly Developed SrF_2 Laser Ceramics", *article en cours de publication dans Optical Materials suite à la conférence 6th Laser Ceramic Symposium, Münster, Germany*, 2010.

[Benett 77] S. Bennett, "An absolute interferometric dilatometer", *J. Phys. E: Sci. Instrum.*, **10**, p.520-530, 1977.

[Bisson 04] J-F. Bisson, J. Lu, K. Takaichi, Y. Feng, M. Tokurakawa, A. Shirakawa, A. Kaminskii, H. Yagi, T. Yanagitani, K. Ueda, "Nanotechnology is stirring up solid-state laser fabrication technology", *Recent Res. Devel. App. Phys.*, **7**, p. 475-496, 2004.

[Bonnefois 06] A. Montmerle Bonnefois, "Etude théorique et expérimentale d'un laser à solide de forte puissance moyenne, déclenché à haute cadence et possédant une bonne qualité de faisceau", *thèse de doctorat de l'Université Paris XI*, spécialité Physique, 2006.

[Boudeile 08] J. Boudeile, J. Didierjean, P. Camy, J.L. Doualan, A. Benayad, V. Ménard, R. Moncorgé, F. Druon, F. Balembois, P. Georges, "Thermal behaviour of ytterbium-doped fluorite crystals under high power pumping", *Optics Express*, **16**(4), p.10098-10109, 2008.

[Bourdet 05] G. Bourdet, H. Yu, J-C. Chanteloup, A. Fülöp, C. Dambrine, S. Ferré, S. Le Moal, A. Pichot, G. Le Touzé, Z. Zhao, "Progress in the LUCIA project", *Proc. SPIE*, 5958, Lasers and applications, 2005.

[Bourdet 06] G. Bourdet, E. Bartnicki, "Generalised formula for CW end-pumped Yb-doped material amplifier gain and laser output power in various pumping configurations", *Applied Optics*, **45**(36), p. 9203-9209, 2006.

[Bourdet 07 a] G. Bourdet, O. Casagrande, "Effect of the diode wavelength broadening in diode end-pumped solid state amplifier", Applied Optics, 46(14), p. 2709-2716, 2007.

[Bourdet 07 b] G. Bourdet, H. Yu, "Longitudinal temperature distribution in a end-pumped solid-state amplifier medium: Application to a high average power diode pumped Yb:YAG thin disk amplifier", *Applied Optics*, **46**(23), p. 6033-6041, 2007.

[Bourdet 10] G. Bourdet, C. Gouédard "Simple analytical derivation of thermal lensing in longitudinally Q-CW pumped Yb:YAG", *Applied Optics*, **49**(22), p. 4160–4167, 2010.

[Brenier 01-a] A. Brenier, G. Boulon, "Overview of the Best Yb^{3+} -doped Laser Crystals", *J. Alloys Comp.*, **323-324**, 2001.

[Brenier 01-b] A. Brenier, G. Boulon, "New Criteria to Choose the Best Yb^{3+} -doped Laser Crystals", *Europhysics Letters*, **55**(5), 2001.

[Browder 69] J. Browder, S. Ballard, "Low temperature thermal expansion measurements on optical materials", *Applied Optics*, **8**(4), p.793-798, 1969.

[Brown 97] D. Brown, "Ultrahigh-average power diode-pumped Nd:YAG and Yb:YAG lasers", *IEEE J. Quant. Elec.*, **33**(5), p. 861-873, 1997.

[Brown 01] D. Brown, "Thermal stress, and thermo-optic effects in high average power double-clad silica fiber lasers", *IEEE J. Quant. Elec.*, **37**(2), p. 207-217, 2001.

[Brown 08] D. Brown, J. Singley, E. Yager, K. Kowalewski, J. Guelzow, J. Kuper, "Kilowatt Class High-Power CW Yb:YAG Cryogenic Laser", SPIE Proceeding, Vol. 6952, 69520K, 2008.

[Campbell 11] J. Campbell, J. Hayden, A. Marker, "High-Power Solid-State Lasers: a Laser Glass Perspective", *Int. Journal of Applied Glass Science*, **2**(1), p. 3-29, 2011.

[Carnall 66] E. Carnall, S. E. Hatch, and W. F. Parsons, "Optical studies on hot-pressed Polycrystalline CaF_2 with clean grain boundaries", *Mater. Sci. Res.*, **3**, p. 165-173, 1966.

[Carnall 69] E. Carnall, S. E. Hatch, W. F. Parson, and R. J. Weagley, "Hot pressed polycrystalline laser material", *U.S. Patent*, 3 453 215, 1969.

[Casagrande 06] O. Casagrande, "Etude théorique et expérimentale de l'architecture d'un laser à solide monocristallin ou céramique dopé ytterbium pour la génération d'impulsions de grande énergie à haute cadence de tir", *thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique*, spécialité Physique des lasers, 2006.

[Chanteloup 03] J-C. Chanteloup, G.L. Bourdet, A. Fülöp, Y. Julien, A. Migus, "The LUCIA project: toward 100 Joules nanosecond pulses kW averaged power based on ytterbium diode pumped solid state laser", CLEO Europe, 2003.

[Chénais 02] S. Chénais, "Nouveaux matériaux lasers dopés à l'ytterbium : performance en pompage par diode et étude des effets thermiques", *thèse de doctorat de l'Université Paris Sud XI*, spécialité Optique et Photonique, 2002.

[Courjaud 01] A. Courjaud, "Sources laser femtoseconde pompées par diode basées sur l'ion ytterbium", *thèse de doctorat de l'Université Bordeaux I*, spécialité Lasers et matière dense, 2001.

[Degiovanni 77] A. Degiovanni, "Diffusivité et méthode flash", *Rev. Gen. Therm.*, **185**, p. 420-442, 1977.

[Degiovanni 84] A. Degiovanni, G. Siniki, M. Laurent, "Flash thermal diffusivity measurements. Thermal properties temperature dependence and non uniform pulse heating", *Thermal conductivity*, **18**, 1984.

[Degiovanni 86] A. Degiovanni, M. Laurent, "Une nouvelle technique d'identification de la diffusivité thermique pour la méthode « flash » ", *Rev. Phys. Appl.*, **21**, p.229-237, 1986.

[Deloach 93] L. DeLoach, S. Payne, L. Chase, L. Smith, W. Kway, W. Krupke, "Evaluation of absorption and emission properties of Yb^{3+} doped crystals for laser applications", *IEEE J. Quant. Elec.,* **29** (4), p. 1179-1091, 1993.

[Deponte 74] F. Deponte, P. Philippo, "Design criteria for the host plate appartus, Heat transmission measurement in thermal insulations", *ASTM STP 544, American Society for testing and materials*, p. 97-117, 1974.

[Dong 03] J. Dong, M. Bass, Y. Mao, P. Deng, F. Gan, "Dependence of the Yb^{3+} emission cross section and lifetime on temperature and concentration in yttrium aluminium garnet", *J. Opt. Soc. Am. B*, **20**(9), p. 1975-1979, 2003.

[Dudik 03] M. Dudik, P. Halverson, M. Levine, M. Marcin, R. Peters, S. Shaklan, "Precision cryogenic dilatometer for James Webb Space Telescope materials testing", *paper presented at the Fifteenth Symposium on thermophysical Properties*, June 22-27, 2003, Boulder, Colorado, USA.

[Edwards 49] J. Edwards, R. Speiser, H. Johnston, "A High Temperature X-Ray Diffraction Camera", *Rev. Sci. Instrum.,* **20** (5), p. 343-347, 1949.

[Fan 92] T. Fan, "Optimizing the efficiency and stored energy in quasi-three-level lasers", *IEEE J. Quant. Elec.*, **28**(12), p. 2692-2697, 1992.

[Fan 93] T. Fan, "Heat generation in Nd:YAG and Yb:YAG", *IEEE J. Quant. Elec.*, **29**(6), p. 1457-1459, 1993.

[Fan 96] T. Fan, "Diode pumped solid-state lasers", in *Laser Sources and Applications*, Proceedings of the 47th Scottish Universities Summer School in Physics, St Andrews, edited by A. Miller and D. Finlayson, SUSSP Publications and Institute of Physics Publishing, 1996.

[Fan 98] T. Fan, J. Daneu, "Thermal coefficients of the optical path length and refractive index in YAG", *Applied Optics*, **37**(9), p. 1635-1637, 1998.

[Fan 07] T.Y. Fan, "Cryogenic Yb^{3+} doped solid state lasers", *IEEE Journal of Selected topics in quantum electronics*, **13** (3), p. 448-459, 2007.

[Fornaserio 99] L. Fornaserio, E. Mix, V. Peters, K. Petermann, G. Huber, "New oxide crystals for solid state lasers", *Cryst. Rev. Technol.*, **34**(2), p. 255-260, 1999.

[Foster 68] J.D. Foster, L.M. Osterink, "Index of refraction and expansion thermal coefficients of Nd:YAG", *Applied Optics*, **7**(12), p. 2428-2429, 1968.

[Frey 07] B. Frey, D. Leviton, T. Madison, "Cryogenic temperature-dependent refractive index measurements of N-BK7, BaLKN3, and SF15 and E-SF03", Cryogenic Optical Systems and Instruments XII. Edited by Heaney, James B.; Burriesci, Lawrence G.. *Proceedings of the SPIE, Volume 6692*, p. 669205, 2007.

[Friedrichs 89] H. Friedrichs, H. Neuhaüser, "Study of structural relaxation of metallic glasses by stress-free dilatometry", *J. Phys.: Condens. Matter*, **1**, p. 8305-8318, 1989.

[Garcia 08] A. Garcia, F. Guillen, V. Jubera, B. Le Garrec, V. Cardinali, "Emission and absorption spectra of ytterbium doped ceramic sesquioxides :Sc_2O_3, Y_2O_3 and Lu_2O_3", poster présenté à la conference ICL'08 à Lyon, France, 2008.

[Gaumé 02] R. Gaumé, "Relations structures – propriétés dans les lasers solides de puissance à l'ytterbium. Elaboration et caractérisation de nouveaux matériaux et de cristaux composites soudés par diffusion.", *thèse de doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie – Paris VI*, spécialité Physique et Chimie des Matériaux, 2002.

[Gaumé 03] R. Gaumé, B. Viana, D. Vivien, J-P. Roger, D. Fournier, "A simple model for prediction of thermal conductivity in pure and doped insulating crystals", *App. Phys. Letters*, **83**(7), p. 1355-1357, 2003.

[Giesen 94] A. Giesen, H. Hügel, A. Voss, K. Witting, U. Brauch, H. Opower, "Scalable concept for diode-pumped high power solid-state lasers", *Appl. Phys. B*, **58**, p. 365-372, 1994.

[Giesen 07] A. Giesen, J. Speiser, "Fifteen Years of Work on Thin-Disk Lasers: Results and Scaling Laws", *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, **13**(3), p. 598-609, 2007.

[Goyheneche 97] J-M. Goyheneche, "Modélisation et caractérisation thermique à très haute température de matériaux poreux en carbone destines à l'isolation des corps de rentrée dans l'atmosphère.", *thèse de doctorat de l'Institut National des Sciences Appliqués de Lyon*, 1997.

[Gustavson 94] M. Gustavson, E. Karawacki, S. Gustafsson, "Thermal conductivity, thermal diffusivity, and specific heat of thin samples from transient measurements with hot disk sensors", *Rev. Sci. Instrum.*, **65**, p. 3856-3859, 1994.

[Hahn 70] T. Hahn, "Thermal expansion of copper from 20 to 800 K – Standard reference material 736", *Journal of Applied Physics*, **41**(13), p. 5096-5101, 1970.

[Halverson 07] P. Halverson, T. Parker, P. Karlmann, K. Klein, R. Peters, M. Levine, "The JPL cryogenic dilatometer: measuring the thermal expansion coefficient of aerospace materials", ITCC 29/ITES 17 (International Thermal Conductivity Conference 29/International Thermal Expansion Symposium 17), p. 24-27, 2007, Birmingham, Alabama.

[Hariharan 60 a] P. Hariharan, D Sen, "Double-Passed Two Beam Interferometers", *Journal of the Optical Society of America*, **50**(4), p. 357-361, 1960.

[Hariharan 60 b] P. Hariharan, D Sen, "Half shade Setting System for the Michelson Interferometer", *Journal of the Optical Society of America*, **50**, p. 1026-1027, 1960.

[Hariharan 61] P. Hariharan, D Sen, "Double-Passed Two Beam Interferometers. II. Effects of specimen absorption and finite path difference", *Journal of the Optical Society of America*, **51**(11), p. 1212-1218, 1961.

[Harris 77] R.J. Harris, G.T. Johnston, G.A. Kepple, P.C. Krok, H. Mukai, "Infrared thermooptic coefficient measurement of polycrystalline ZnSe, ZnS, CdTe, CaF_2, and BaF_2, single crystal KCl, and TI-20 glass", *Applied Optics*, **16**(2), p.436-438, 1977.

[Harvey 75] J. Harvey, W. Wolfe, "Refractive index of Irtran 6 (hot-pressed cadmium telluride) as a function of wavelength and temperature", *Journal of the Optical Society of America*, **65**(11), p. 1267-1268, 1975.

[Hovartic 91] V. Hovartic, J. Gladic, Z. Vucic, O. Milat, "An assessment of a new type of capacitance dilatometer for measurement of the thermal expansion of solids between 273 and 620 K", *Meas. Sci. Technol.*, **2**, p.381-388, 1991.

[Hraiech 06] S. Hraeich, "Monocristaux cubiques de sesquioxydes Ln_2O_3 (Ln = Y, Lu et Sc) et de fluorures CaF_2 dopés par l'ion terre rare laser Yb^{3+}: croissance, caractérisations structurale et spectroscopique", *thèse de doctorat de l'Université Claude Bernard – Lyon 1*, spécialité Chimie, 2007.

[Ikesue 95] A. Ikesue, T. Kinoshita, K. Kamata, K. Yoshida, "Fabrication and Optical Properties of High- Performance Polycrystalline Nd:YAG Ceramics for Solid-State Lasers", *J. Am. Ceram. Soc.*, **78**, p. 1033-1040, 1995.

[Ikesue 96] A. Ikesue, K. Kamata, K. Yoshida, "Effects of Neodymium Concentration on Optical Characteristics of Polycrystalline Nd:YAG Laser Materials", *J. Am. Ceram. Soc.*, **79**, p. 1921-1926, 1996.

[Ikesue 97] A. Ikesue, K. Yoshida, T. Yamamoto, I. Yamaga, "Optical Scattering Centers in Polycrystalline Nd:YAG Laser", *J. Am. Ceram. Soc.*, **80**, p. 1517-1522, 1997.

[Izumitani 80] T. Izumitani, H. Toratani, "Temperature coefficient of electronic polarizability in optical glasses", *Journal of non crystalline solids*, **40**, p. 611-619, 1980.

[Jannot 08] http://www.thermique55.com

[Jeong 04] Y. Jeong, J. Sahu, D. Payne, J. Nilsson, "Ytterbium-doped large-core fiber laser with 1.36 kW continuous wave output power", *Optics Express*, **12**(25), p. 6088-6092, 2004.

[Johnston 65] H. Johnston, H. Altman, T. Rubin, "Coefficients of thermal expansions of alloys at low temperatures", *J. Chem. Eng. Data*, 10(3), p. 241-242, 1965.

[Kaminskii 81] A. Kaminskii, "Laser crystals, ch. 1: Brief review of the development of laser crystal physics", *Springer Verlag*, 1981.

[Killi 09] Killi, C. Stolzenburg, I. Zawischa, D. Sutter, J. Kleinbauer, S. Schad, R. Brockmann, S. Weiller, J. Neuhaus, S. Kalfhues, E. mehner, D. Bauer, H. Schlueter, C. Schmitz, "the broad applicability of the disk laser principle-from CW to ps", *Solid-State Lasers XVIII: Technology and Devices, Proc. SPIE*, **7193**, 2009.

[Kittel 83] C. Kittel, "Physique de l'état solide, ch. 5 : Phonons II – Propriétés thermiques", *5ème édition, Dunod université*, 1983.

[Klein 67] P.H. Klein, W.J. Croft, "Thermal conductivity, diffusivity, and expansion of Y_2O_3, $Y_3Al_5O_{12}$, and LaF_3 in the range 77-300 K", *Journal of Applied Physics*, **38**(4), p. 1603-1607, 1967.

[Koechner 70] W. Koechner, "Thermal lensing in a Nd:YAG laser rod ", *Applied Optics*, **9** (11), p. 2548-2553, 1970.

[Koechner 99] W. Koechner, Solid-State laser engineering, ch.7 : Thermo-optic effects an heat removal, 5ème edition, Springer Verlag, 1999.

[Kong 03] J. Kong, J. Lu, K. Takaichi, T. Uematsu, K. Ueda, D.Y. Tang, D.Y. Shen, H. Yagi, T. Yanagitani, A.A. Kaminskii, "Diode-pumped Yb:Y_2O_3 ceramic laser", *App. Phys. Lett.*, **82**(16), p. 2556-2558, 2003.

[Kong 04] J. Kong, D.Y. Tang, J. Lu, K. Ueda, "Spectral characteristics of a Yb doped Y_2O_3 ceramic laser", *App. Phys. B*, **79**, p. 449-455, 2004.

[Krupke 86] W. Krupke, M. Shinn, J. Marion, J. Caird, S. Stokowski, "Spectrscopic, optical, and thermomechanical properties of neodymium-and-chromium –doped gadolinium scandium gallium garnet", J. Opt. Soc, Am. B, 3(1), p. 102-113, 1986.

[Krupke 00] W. Krupke, "Ytterbium Solid-State Lasers – The first decade", *IEEE Journal on Selected topics in Quant. Elec.*, **6** (6), p. 1287-1296, 2000.

[Lacovara 91] P. Lacovara, H. Choi, C. Wang, R. Aggarwal, T. Fan, "Room temperature diode-pumped Yb :YAG laser", *Opt. Lett.*, **16**(14), p. 1089-1091, 1991.

[Lahlou-Kassi 94] L. Lahlou-Kassi, "Méthode interférométrique pour l'étude de la dilatation et des coefficients thermo-optiques de monocristaux anisotropes; applications aux matériaux ONL", *thèse de doctorat de l'Université de Nancy 1*, spécialité Sciences et Génie des Matériaux, 1994.

[Lallemand 82] M. Lallemand, J. Martinet, "Influence de la température sur le coefficient thermo-optique des fluorures alcalino-terreux", *Revue Phys. Appl.*, **17**(3), p. 111-117, 1982.

[Lanchester 70] P. Lanchester, "The low temperature magnetic thermal expansion coefficients of $NiCl_2.6H_2O$", *J. Phys. C: Solid St. Phys.*, **3**, p. 2411-2419, 1970.

[Laubitz 84] M. Laubitz, "Axial heat flow methods of measuring thermal conductivity", *Compendium of thermophysical property measurement methods*, Vol. 1, p. 11-60, Edited by K.D. Maglic, A. Cezailigan and V.E. Peletsky, Plenum Press, New York, 1984.

[Laversenne 02] L. Laversenne, "Nouvelle méthode de chimie combinatoire pour l'optimisation des propriétés spectroscopiques des ions terres rares laser Yb^{3+}, Er^{3+} et Ho^{3+} dans des fibres monocristallines de sesquioxides réfractaires M_2O_3 (M=Y, Sc, Lu, Gd)", *thèse de doctorat de l'Université Claude Bernard – Lyon I*, 2002.

[Le Garrec 08] B. Le Garrec, D. Taroux et S. Bouillet, "Les verres lasers de la LIL et du LMJ", Revue Verre, 14(1), p. 69-72, 2008.

[Le Garrec 09] B. Le Garrec, G. Bourdet, V. Cardinali, "Comparison of potential ceramic gain media", Fusion Science and Technology, 56, p.369-373, 2009.

[Leitner 03] J. Leitner, P. Chuchvalec, D. Sedmidubsky, A. Strejc, P. Abrman, "Estimation of heat capacities of solid state mixed oxides", *Thermochimica Acta*, **395**, Issues 1-2-3, p. 27-46, 2003.

[Levinton 03] D. Leviton, B. Frey, "Design of a cryogenic, high accuracy, absolute prism refractometer for infrared through far ultraviolet optical materials", *Proceedings of SPIE*, 4842, p. 259-269, 2003.

[Levinton] D. Levinton, B. Frey, T. Madison, "Temperature-dependent refractive index of CaF_2 and Infrasil 301", http://eprintweb.org/S/article/physics/0805.0096

[Limpert 05] J. Limpert, N. Deguil-robin, S. Petit, I. Manek-Hönninger, F. Salin, P. Rigail, C. Hönninger, E. Mottay, "High power Q-switched Yb-doped photonic crystal fiber laser producing sub-10 ns pulses", *App. Phys.B*, **81**, p. 19-21, 2005.

[LLNL 81] S. Stokowski, R. Saroyan, M. Weber, "Laser Glass, Nd-doped Glass Spectroscopic and Physical Properties", Vol. 1, Rev. 2, M-95, Lawrence Livermore National Laboratory

[Lyberis 10] A. Lyberis, P. Gredin, G. Patriarche, D. Vivien, M. Mortier, "New development in ytterbium doped CaF_2 transparnet ceramics for high power lasers", *article en cours de publication dans Optical Materials suite à la conférence 6th Laser Ceramic Symposium, Münster, Germany*, 2010.

[Maillet 00] D. Maillet, S. André, J-C Batsale, A. Degiovanni, C. Moyne, Thermal quadrupoles : Solving the heat equation through integral transforms, J. Wiley Editor- Chichester, 2000.

[Mangin 93] J. Mangin, P. Strimer, L. Lahlou-Kassi, "An interferometric dilatometer for the determination of thermo-optic coefficients of NLO materials", *Meas. Sci. Technol.*, **4**, p.826-834, 1993.

[Mao 08] X. Mao, S. Wang, S. Shimai, J. Guoz "Transparent Polycrystalline Alumina Ceramics with Orientated Optical Axes", *J. Am. Ceram. Soc.*, **91**(10), p. 3431–3433, 2008.

[Marmois 10] E. Marmois, V. Cardinali, G. Le Touzé, B. Le Garrec, "Experimental measurements and finite-element modelling of thermal effects in Yb^{3+} doped sesquioxide thin disk lasers", *Proceedings of SPIE*, "Solid state lasers and amplifiers IV, and high power lasers", Vol. 7721, p. 77210O1-77210O-14.

[Marmois 11] E. Marmois, V. Cardinali, G. Le Touzé, B. Le Garrec, "Thermal Lensing in Diode-Pumped Ytterbium Doped Sesquioxides Thin-Disks Lasers", *en cours de publication dans IEEE J. Of Quantum Electronics*.

[McCumber 64] D. McCumber, "Einstein relation connecting broadband emission and absorption spectra", *Physical Review*, **136**(4A), p. A954-A957, 1964.

[Mix 99] E. Mix, "Kristallzüchtung, Spektroskopie und Lasereigenschaften Yb-dotierter Sesquioxide", thèse de doctorat de l'Université d'Hambourg, spécialité Physique, 1999.

[Mulder 85] C. Mulder, G. de With, "Translucent $Y_3Al_5O_{12}$ Ceramics: Electronic Microscopy Characterization", *Solid State Ionics*, **16**, p. 81–86, 1985.

[Müller 91] A. Müller, A. Cezairliyan, "Interferometric Technique for the Subsecond Measurement of Thermal Expansion at High Temperatures: Applications to Refractory Metals", *International Journal of Thermophysics*, **12**(4), p.643-656, 1991

[Numazawa 01] T. Numazawa, O. Arai, Q. Hu, T. noda, "Thermal conductivity measurements for evaluation of crystal perfection at low temperatures", *Meas. Sci. Technol.*, **12**, p. 2089-2094, 2001.

[Parker 61] W. Parker, W. Jenkins, C. Butler, G. Abbot, "Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity and thermal conductivity", *J. Appl. Phys.*, **32**(9), p. 1679-1684, 1961.

[Pereira 70] F. Pereira, C. Barnes, G. Graham, "Sensitive dilatometer for low temperatures and the thermal expansion of copper below 10 K", *Journal of Applied Physics*, **41**(13), p.5050-5054, 1970.

[Petermann 00] K. Petermann, G. Huber, L. Fornaserio, S. Kuch, E. Mix, V. Peters, S.A. Basun, "Rare-earth doped sesquioxides", *J. Lumin.*, 87-89, p. 973-975, 2000.

[Petermann 05] K. Petermann, D. Fagundes-Peters, J. Johannsen, M. Mond, V. Peters, J.J. Romero, S. Kutovoi, J. Speiser, A. Giesen, "Highly Yb-doped oxides for thin disk lasers", *Journal of Crystal Growth*, **275**, p. 135-140, 2005.

[Peters 02] V. Peters, A. Bolz, K. Petermann, G. Huber, "Growth of high-melting sesquioxides by the heat exchanger method", *Journal of Crystal Growth*, **237–239**, p. 879-883, 2002.

[Petit 05] J. Petit, P. Goldner, B. Viana, "Laser emission with low quantum defect in Yb:$CaGdAlO_4$", *Optics Letters*, **30**(11), p. 1345-1347, 2005.

[Petit 06] J. Petit, "Monocristaux dopés ytterbium et matériaux assemblés pour lasers de fortes puissances", *thèse de doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie – Paris VI*, spécialité Physique et Chimie des Matériaux, 2006.

[Platt 75] B. Platt, H. Icenogle, J. Harvey, R. Korniski, W. Wolfe, "Technique for measuring the refractive index and its change with temperature in the infrared", *Journal of the Optical Society of America*, **65**(11), p. 1264-1266, 1975.

[Popov 08] P. Popov, P. Fedorov, S. Kuzenetsov, V. Konyushkin, "Thermal conductivity of single crystals of $Ca_{1-x}Yb_xF_{2+x}$ solid solutions", *Doklady Physics*, **53**(4), p. 198-200, 2008.

[Ripin 05] D. Ripin, J. Ochoa, R. Aggarwal, T. Fan, "300-W Cryogenically Cooled Yb:YAG Laser", IEEE Journal of Quantum Electronics, 41(10), p. 1274-1277, 2005.

[Risk 88] W. Risk, "Modeling of longitudinaly pumped solid-state lasers exhibiting reabsorption losses", *J. Opt. Soc. Am. B*, **5**(7), p. 1412-1423, 1988.

[Sablayrolles 06] J. Sablayrolles, "De l'ultraviolet à l'infrarouge : caractérisation spectroscopique de matériaux type borate et oxyborate dopés à l'ytterbium trivalent", *thèse de doctorat de l'Université Bordeaux 1*, spécialité Physico-Chimie de la matière condensée, 2006.

[Schmidt 66] E. Schmidt, K. Vedam, "Variation of the refractive indices of CaF_2, BaF_2 and β-PbF_2 with pressure to 7 kb", *J. Phys. Chem. Solids*, **27**(10), p. 1563-1566, 1966.

[Shapiro 64] D. Shapiro, "A sensitive dilatometer for use at low temperatures", *Can. J. Phys.*, **42**(5), p. 835-847, 1964.

[Shirakawa 03] A. Shirakawa, K. Takaichi, H. Yagi, J-F. Bisson, J. Lu, M. Musha, K. Ueda, "Diode-pumped mode-locked Yb^{3+}:Y_2O_3 ceramic laser", *Opt. Exp.*, **11**(22), p. 2911-2915, 2003.

[Slack 61] G. Slack, "Thermal conductivity of CaF_2, MnF_2, CoF_2, and ZnF_2 Crystals", *Phys. Rev.* **122**, p. 1451-1464, 1961.

[Slack 71] G. Slack, D. Oliver, "Thermal conductivity of garnets and phonon scattering by rare-earth ions", *Phys. Rev. B*, **4**(2), p. 592-609, 1971.

[Taira 10] T. Taira, "Anisotropic ceramics as a next generation laser", *6th Laser Ceramic Symposium*, 2010, Münster, Germany to be published in Optical Materials.

[Takaichi 05] K. Takaichi, H. Yagi, A. Shirakawa, K. Ueda, S. Hosokawa, T. Yanagitani, A.A. Kaminskii, "Lu_2O_3:Yb^{3+} ceramics – a novel gain material for high-power solid-state-lasers", *Phys. Stat. Sol.*, **202**(1), p. R1-R3, 2005.

[Tempel 00] L. Van Der Tempel, G. Melis, T. Brandsma, "Thermal conductivity of a glass: I. Measurement by the glass-metal contact", *Glass Physics and Chemistry*, **26**(6), p. 606-611, 2000.

[Tempel 02] L. Van Der Tempel, "Thermal conductivity of a glass: I. The empirical model", *Glass Physics and Chemistry*, **28**(3), p. 147-152, 2002.

[TI 2950] G. Bonnier, E. Devin, "Couples thermoélectriques : Caractéristiques et mesure de température", *Techniques de l'ingénieur R 2-950*, p. 1 – 22.

[Tokitai 05] S. Tokitai, J. Kawanaka, M. Fujita, T. Kawashima, Y. Izawai, "Sapphire-conductive end-cooling of high power cryogenic Yb:YAG lasers", *Appl. Phys. B*, **80**, p. 635–638, 2005.

[Tsay 73] Y.F. Tsay, B. Bendow, S.S. Mitra, "Theory of the temperature derivative of the refractive index in transparent crystals", *Physical Review B*, **8**(6), p. 2688-2696, 1973.

[Tsay 77] Y.F. Tsay, H.G. Lipson, P.A. Ligor, "The temperature variation of the termo-optic coefficient of CaF_2", *Journal of Applied Physics*, **48**(5), p. 1953-1955, 1977.

[Tummler 09] J. Tummler, R. Jung, H. Stiel, P. Nickles, W. Sandler, "high repetition rate diode-pumped CPA thin disk laser of the joule class", *Lasers and Electro-Optics, Conference on Quantum electronics and Laser Science Conference, CLEO*, 2009.

[Tzuk 04] Y. Tzuk, A. Tal, S. Goldring, Y. Glick, E. Lebiush, G. Kaufman, R. Lavi, "Diamond Cooling of High-Power Diode-Pumped Solid-State Lasers", *IEEE-JQE*, **40**(3), p. 262-269, 2004.

[Ward 06] H. Ward, E. Lafond, X. Julien :"Computation of thermally distorted wave-fronts in high-power lasers: comparison with LIL experiments", *J. Phys. IV France*, **133**, p. 687-689, 2006.

[Weber 82] M. Weber, CRC Handbook of laser science and technology, CRC Press, Inc., 1982.

[With 85] G. de With, J. Parren, "Translucent $Y_2Al_5O_{12}$ ceramics: Mechanical properties", *Solid State Ionics*, **16**(87), 1985.

[Wynne 99] R. Wynne, J.L. Daneu, T.Y. Fan, "Thermal coefficients of the expansion and refractive index in YAG", *Applied Optics*, **38**(15), p. 3282-3284, 1999.

[Xu 04] X. Xu, Z. Zhao, J. Xu, P. Deng, "Thermal diffusivity, conductivity and expansion of $Yb_{3x}Y_{3(1-x)}Al_5O_{12}$ (x=0.05, 0.1 and 0.25) single crystals", *Solid State Communications*, **130**, p. 529-532, 2004.

[Yagi 07] H. Yagi, T. Yanagitani, T. Numazawa, K. Ueda, "The physical properties of transparent $Y_3Al_5O_{12}$ Elastic modulus at high temperature and thermal conductivity at low temperature", *Ceramics International*, **33**, p.711-714, 2007.

[Yasuhara 08] R. Yasuhara, R. Katai, J. Kawanaka, T. Kawashima, H. Miyajima, H. Kan, "1J x 100 Hz Cryogenic Yb:YAG Laser Development for Feasibility Demonstration of GENBU Main Laser" *The Review of Laser Engineering, Supplemental Volume*, p. 1092-1093, 2008.

[Yoldas 75] B. Yoldas, "A transparent porous alumina", Am. Ceram**.** Soc. Bull., **54**, p. 286–288, 1975.

[ACM] http://www.acm-pvd.com

[Corning] http://www.lumonics.com/Materials/H0607_CaF2_Product_Sheet.pdf

[Cryoforum] http://www.cryoforum.com

[Hellma] http://www.hellma-optics.com/text/1/en/home.html

[Hot Disk] http://www.hotdisk.se

[Hoya] http://www.hoyaoptics.com

[ICMCB] http://www.icmcb.u-bordeaux.fr

[Jenoptik] http://www.jold.com

[Konoshima] http://www.konoshima.co.jp/en/index.html

[Laserayan] http://www.laser.am

[LEMTA] http://www.inpl-nancy.fr/francais/rechvalo/r_labos/rp_lemta.php

[LNE] http://www.lne.fr

[MAP] http://www.map-coatings.eu

[Neotim] http://www.neotim.fr

[Netzsch] http://www.netzsch-thermal-analysis.com/en/products/dilatometer/

[OceanOptics]

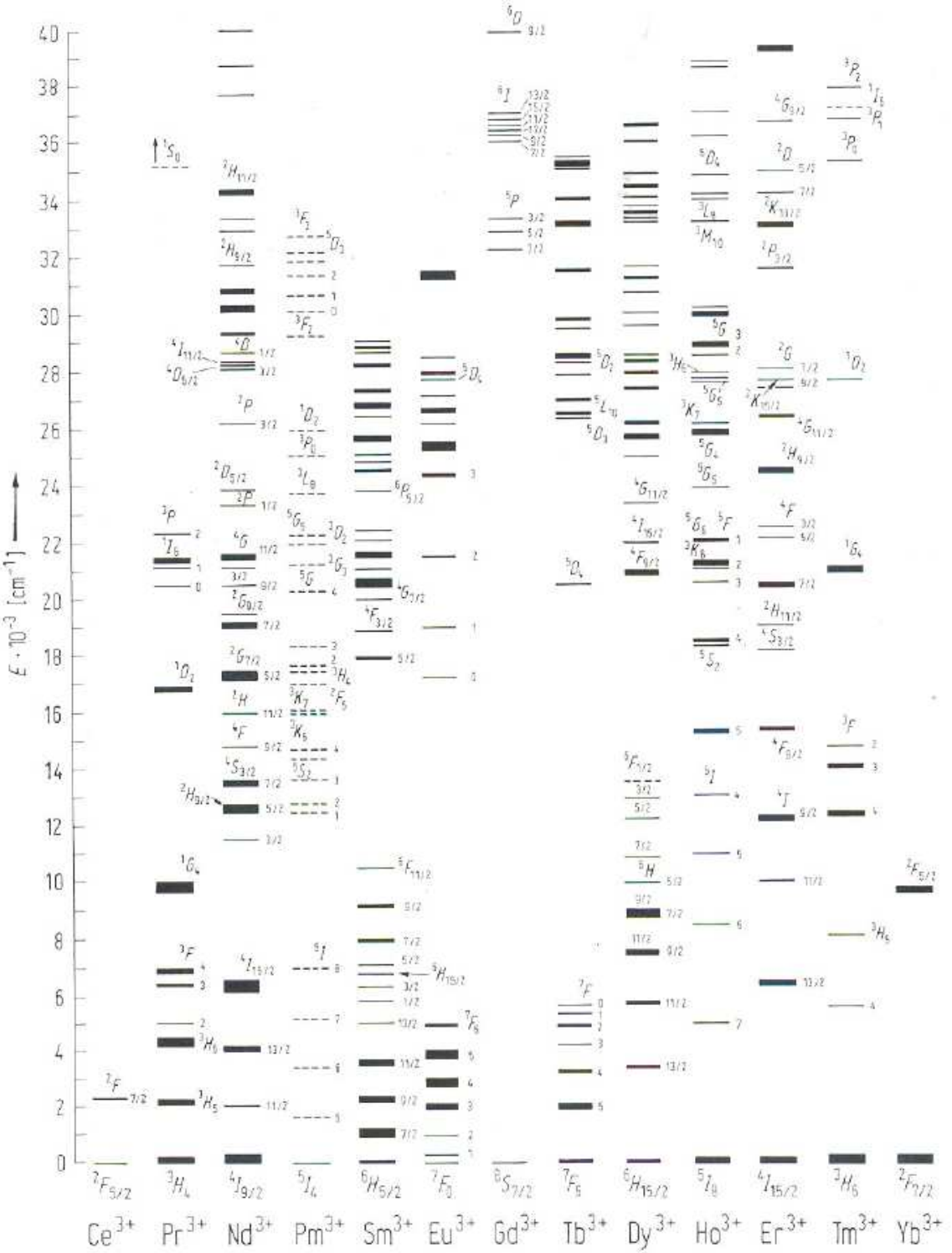
[ThermoScientific] http://www.thermo.com/thermoflex

[Thermocoax] http://www.thermocoax.com

Annexes

Annexe A :

Diagrammes énergétiques des ions lanthanidiques trivalents en solution vitreuse [Kaminskii 81]



Annexe B :

Mesures spectroscopiques à température ambiante et à température cryogénique – Détermination des sections efficaces d'absorption et d'émission

Rappelons le diagramme énergétique de l'ion ytterbium :

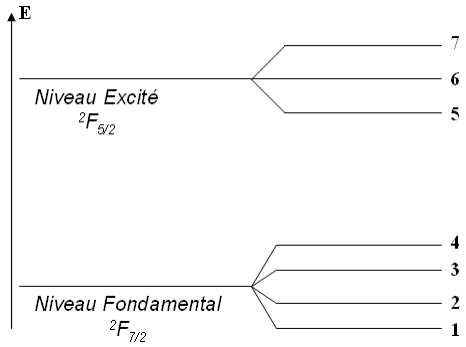


Figure B - 1 : Diagramme énergétique de l'ion ytterbium.

B.1. Calcul des sections efficaces d'absorption

Les spectres d'absorption ont été obtenus à l'aide d'un spectrophotomètre Cary 5000, Varian, entre 850 et 1100 nm. Les échantillons (épaisseur : 0,17 mm) ont été placés dans un cryostat refroidis à l'hélium liquide.

Des spectres d'absorption ont été mesurés sur nos échantillons à température ambiante et à basse température (~ 10 – 20 K).

Le coefficient d'absorption $a(\lambda)$ (en cm^{-1}) d'un échantillon d'épaisseur d est défini par la loi de Beer-Lambert :

$$I_t(\lambda) = I_0(\lambda)\exp(-\alpha(\lambda)d) \qquad \text{Équation B-1}$$

où $I_0(\lambda)$ et $I_t(\lambda)$ représente respectivement l'intensité incidente et l'intensité transmise.

Le coefficient d'absorption est donc accessible à partir de la mesure de la transmission $T(\lambda)$ ou encore, de la mesure de la densité optique $DO(\lambda)$:

$$\alpha = \frac{1}{d}\ln(\frac{1}{T}) = \frac{1}{d}DO\ln 10 \qquad \text{Équation B-2}$$

$$\text{avec } T = I_t / I_0 \text{ et } DO = \log(\frac{1}{T}). \qquad \text{Équation B-3}$$

La section efficace d'absorption σ_{abs} est directement reliée au coefficient d'absorption a et au nombre d'ions optiquement actifs par unité de volume N par la relation :

$$\sigma_{abs}(\lambda) = \alpha(\lambda)N \qquad \text{Équation B-4}$$

B.2. Calcul des sections efficaces d'émission

Les spectres d'émission ont été enregistrés avec un spectrofluoromètre SL 900 CDT, Edinburgh Instrument (monochromateur à double réseau pour sélectionner la longueur d'onde du signal d'excitation, monochromateur à simple réseau pour collecter le signal de fluorescence). Deux moyens d'excitation sont possibles :

- soit en excitant directement dans les niveaux *4f* (excitation par un rayonnement infrarouge),
- soit en excitant dans les bandes d'absorption du matériau localisées à haute énergie telles que les bandes de transfert de charge Yb-O. Ces bandes d'absorption sont associées au transfert d'un électron des orbitales du ligand sur la terre rare. Elles se situent pour l'élément ytterbium dans l'ultraviolet (entre 200 et 250 µm).

Le choix de la longueur d'onde d'excitation est primordial puisqu'il est directement lié au phénomène de réabsorption. En effet, le coefficient d'absorption du matériau est beaucoup plus fort pour une absorption dans la bande de transfert de charge (rayonnement ultraviolet) que dans les raies *4f* (rayonnement infrarouge).

Les photons émis suite à une excitation dans l'ultraviolet seront issus des ions proches de la surface. Au contraire, une excitation dans les niveaux *4f* induira une émission plus en profondeur. Dans ce dernier cas, la probabilité des photons émis d'être réabsorbé par d'autres ions ytterbium, avant de s'extraire du matériau, sera alors plus élevée. Le spectre d'émission est donc susceptible d'être modifié suivant la longueur d'onde d'excitation. Sablayrolles a mesuré le spectre d'émission du borate Yb :$Li_6Y(BO_3)_3$ dopé 20 at. % pour deux longueurs d'onde d'excitation : à 230 nm, correspondant à la bande de transfert de charge, et à 932 nm [Sablayrolles 06]. Une forte différence est observée entre les deux spectres : pour la *zéro-line*, l'intensité de l'émission infrarouge issue d'une excitation dans la bande de transfert de charge est nettement plus intense que celle issue d'une excitation dans le niveau $^2F_{5/2}$. A plus grande longueur d'onde (1040 nm), c'est le phénomène inverse qui est observé. Ceci reflète bien que le rayonnement issu d'une excitation à 230 nm (correspondant à une absorption de surface) est moins sujet à la réabsorption qu'un rayonnement issu d'une excitation à 932 nm.

Pour s'affranchir des phénomènes de réabsorption, nous avons excité nos céramiques dans la bande de transfert de charge de l'ion ytterbium en utilisant une lampe Xénon de 450 W, émettant entre 200 et 1500 µm : la longueur d'onde est fixée à 240 µm. Le signal émis par l'échantillon est collecté perpendiculairement au faisceau excité et est détecté par une cellule germanium (AD403L) refroidie à l'azote liquide. Ces poudres ont été placées dans un cryostat refroidi à l'hélium liquide permettant ainsi d'enregistrer des spectres d'émission pour des températures variant de la température de l'hélium liquide à la température ambiante.

La section efficace d'émission peut être évaluée par deux méthodes complémentaires :

- soit à partir du spectre d'absorption, en utilisant la méthode de réciprocité,

- soit à partir du spectre d'émission, en utilisant la méthode du Füchtbauer-Ladenburg.

B.2.1 Méthode de réciprocité

Dans cette méthode, la section efficace d'émission stimulée σ_{em} est calculée à partir de la section efficace d'absorption grâce à l'équation B-5 [McCumber 64] :

$$\sigma_{em}(\upsilon) = \sigma_{abs}(\upsilon)\frac{Z_f}{Z_e}\exp(\frac{E_{ZL} - h\upsilon}{kT}) \qquad \text{Équation B-5}$$

avec

$$Z_f = \sum_{i=1}^{4} g_i \exp(\frac{-E_i}{kT}) \qquad \text{Équation B-6}$$

$$Z_e = \sum_{j=5}^{7} g_j \exp(-\frac{E_j - E_{ZL}}{kT}) \qquad \text{Équation B-7}$$

υ est la fréquence, σ_{em} et σ_{abs} sont respectivement les sections efficaces d'émission et d'absorption, k représente la constante de Boltzmann, et h la constante de Planck, T est la température.

Z_f et Z_e sont respectivement les fonctions de partition des multiplets $^2F_{7/2}$ et $^2F_{5/2}$,

g_i et g_j sont les dégénérescences respectives des sous niveaux Stark i et j,

E_i et E_j sont respectivement, les énergies des sous niveaux de l'état fondamental et de l'état excité,

E_{ZL} est l'énergie de la *zéro-line*.

Cette méthode nécessite de connaître précisément le diagramme d'énergie des sous niveaux Stark des états fondamental et excité.

B.2.2 Méthode de Fuchtbauer-Ladenburg

A partir du spectre d'émission de l'échantillon étudié, il est possible de calculer les sections efficaces d'émission à partir de la relation de Fuchtbauer-Ladenburg :

$$\sigma_{em}(\lambda) = \frac{\lambda^4 A_{\sup} I(\lambda)}{8\pi n^2 c \int I(\lambda) d\lambda} \qquad \text{Équation B-8}$$

où c est la vitesse de la lumière, n l'indice de réfraction du matériau, λ la longueur d'onde. $I(\lambda)$ représente l'intensité du spectre d'émission de l'échantillon mesuré. A_{sup} est le coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée et est égal à l'inverse de la durée de vie radiative du niveau considéré.

Cette relation nécessite de connaître la valeur la durée de vie radiative de l'échantillon à une température donnée. Ainsi, pour des calculs de sections efficaces d'émission à basse température, il est nécessaire de mesurer ce paramètre.

Deux programmes MATLAB ont été développés : l'un pour la méthode de réciprocité et l'autre pour la relation de Fuchtbauer-Ladenburg.

B.3. Sections efficaces d'absorption et d'émission de céramiques Y_2O_3, Sc_2O_3 et Lu_2O_3 dopées ytterbium à différentes températures

Les spectres d'absorption et d'émission de céramiques sesquioxydes Y_2O_3, Lu_2O_3 et Sc_2O_3 dopées ytterbium à 10 at. % ont été mesurés à température ambiante et à basse température. Dans ce qui suit, nous ne présenterons que les courbes de sections efficaces d'absorption et d'émission correspondantes. Ces sections efficaces ont été calculées d'après les raisonnements décrits précédemment : pour les sections efficaces d'émission, nous présentons uniquement les résultats de calcul obtenus d'après la relation de Fuchtbauer-Ladenburg.

B.3.1 Sections efficaces d'absorption

Les figures B-2, B-3 et B-4 représentent respectivement les sections efficaces d'absorption de céramiques sesquioxydes Y_2O_3, Lu_2O_3 et Sc_2O_3 dopées 10 at. % ytterbium à température ambiante et à basse température.

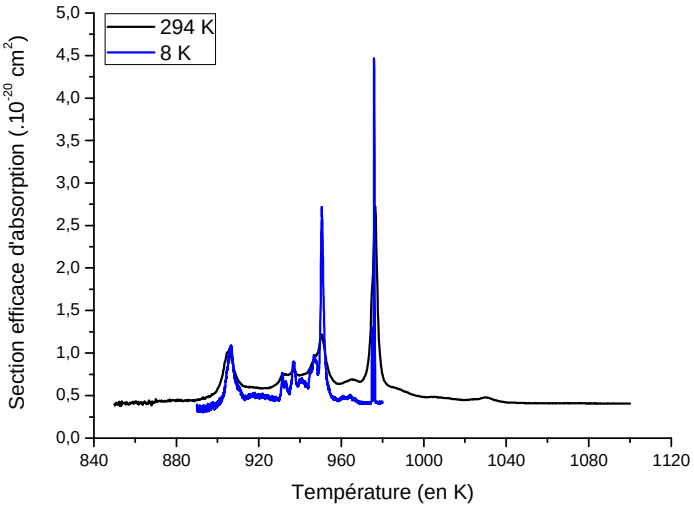


Figure B - 2 : Sections efficaces d'absorption d'une céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. % à 294 K (courbe noire) et à 8 K (courbe bleue).

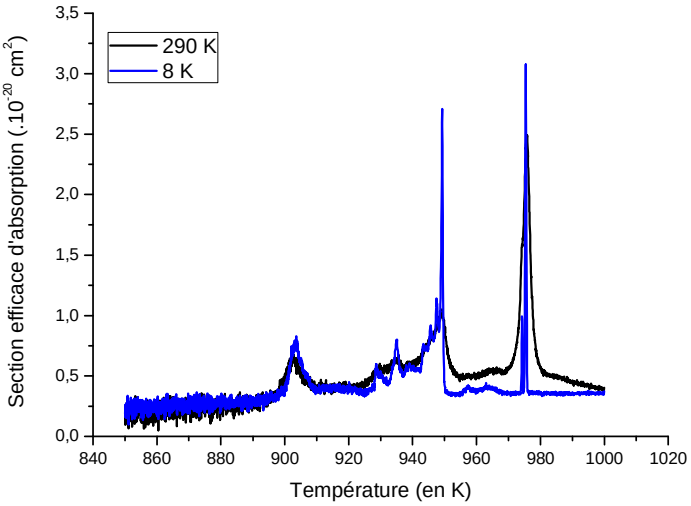


Figure B - 3 : Sections efficaces d'absorption d'une céramique Yb : Lu_2O_3 dopée 10 at. % à 290 K (courbe noire) et à 8 K (courbe bleue).

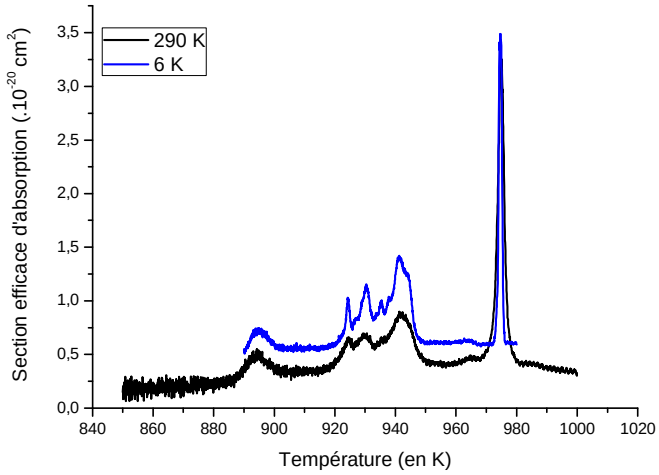
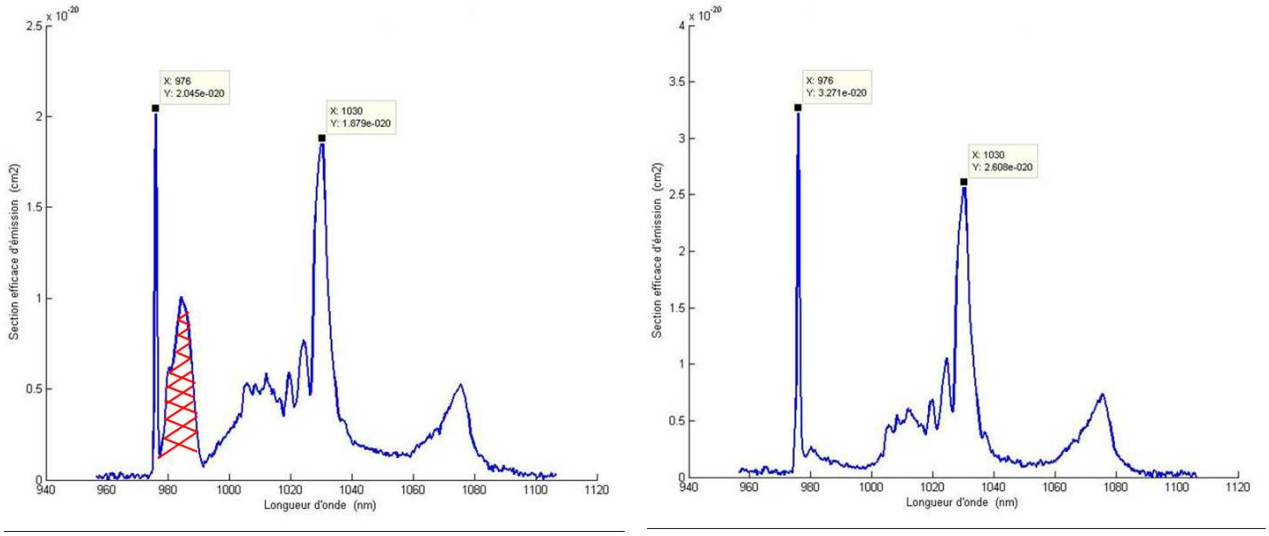


Figure B - 4 : Sections efficaces d'absorption d'une céramique Yb : Sc_2O_3 dopée 10 at. % à 290 K (courbe noire) et à 6 K (courbe bleue).

B.3.2 Sections efficaces d'émission

B.3.2.1 Sections efficaces d'émission de Yb : Y_2O_3

L'indice de réfraction pour l'échantillon Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. % est de 1,9 et sa durée de vie radiative est de 860 µs [Laversenne 02]. Les sections efficaces d'émission d'une céramique Y_2O_3 dopée ytterbium à 10 at. % ont été calculées respectivement à 4,2 K (Figure B-5 *a*) et à 76 K (Figure B-5 *b*) :

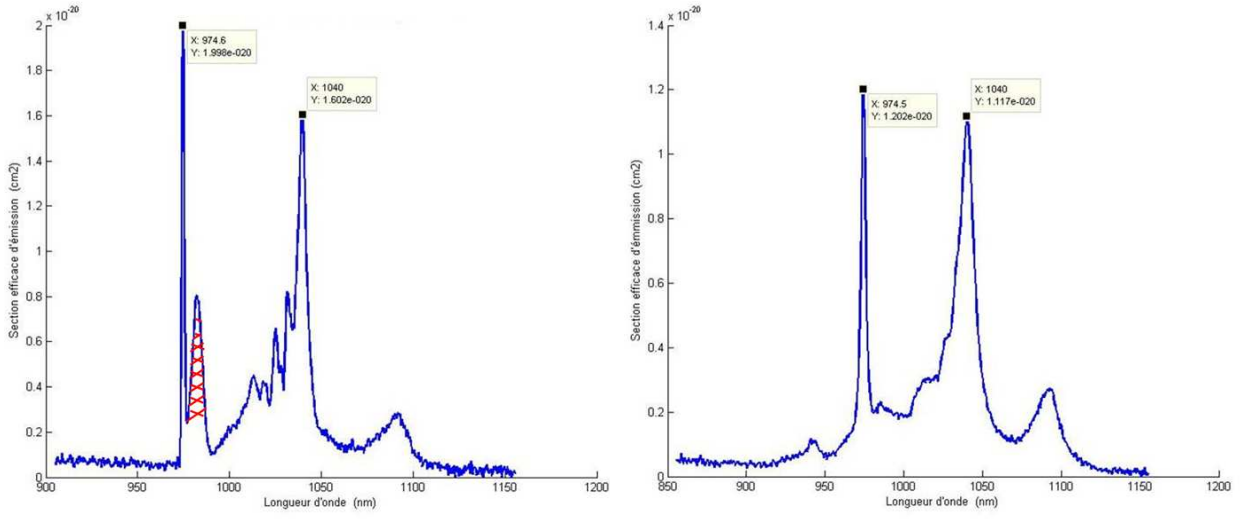


a ***b***

Figure B - 5 : Sections efficaces d'émission de Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. % à 4,2 K (*a*) et à 76 K (*b*).

B.3.2.2. Sections efficaces d'émission de Yb : Sc_2O_3

En appliquant la relation de Fuchtbauer-Ladenburg au spectre d'émission d'une céramique Sc_2O_3 dopée ytterbium 10 at. %, nous obtenons les graphes de sections efficaces d'émission pour une température de 5 K (Figure B-6 *a*) et pour une température de 294 K (Figure B-6 *b*). Nous avons considéré que l'indice de réfraction de Sc_2O_3 est égal à 1,86 et que sa durée de vie radiative est de 800 µs [Peterman 00] :



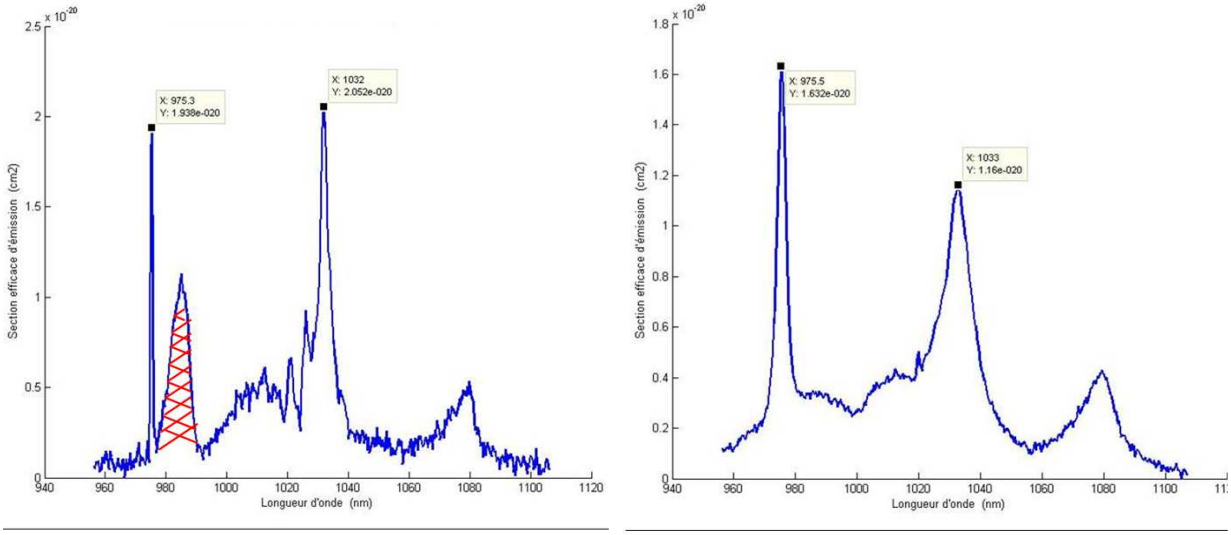
a ***b***

Figure B - 6 : Sections efficaces d'émission de Yb : Sc_2O_3 dopée 10 at. % à 5 K (*a*) et à 294 K (*b*).

B.3.2.3. Sections efficaces d'émission de Yb : Lu_2O_3

Pour une céramique Yb : Lu_2O_3 dopée 10 at. %, l'indice de réfraction est de 1,93 et sa durée de vie radiative de 820 µs [Laversenne 02]. Les courbes de sections efficaces d'émission

obtenues pour des températures de 16 K et de 294 K sont représentées respectivement sur les figures B-7 *a* et B-7 *b* :



a ***b***

Figure B - 7 : Sections efficaces d'émission de Yb:Lu_2O_3 dopée 10 at. % à 16 K (*a*) et à 294 K (*b*).

B.3.3 Analyse des résultats

B.3.3.1 Mise en garde pour le calcul des sections efficaces d'émission

Dans un premier temps, nous mettons en garde le lecteur que les courbes de sections efficaces d'émission obtenues sont à prendre avec précaution. En effet, par la méthode de Fuchtbauer-Ladenburg, les sections efficaces d'émission sont calculées à partir du spectre d'émission mesuré, mais également à partir des valeurs de l'indice de réfraction et de la durée de vie radiative. Pour ces calculs, les valeurs de ces deux paramètres proviennent de la littérature. Il apparaît donc nécessaire de mesurer précisément les valeurs de ces deux paramètres aux températures considérées.

B.3.3.2 Evolution générale des sections efficaces d'absorption et d'émission lorsque la température diminue

Que ce soit pour les sections efficaces d'absorption ou pour les sections efficaces d'émission, deux phénomènes majeurs représentatifs de la diminution de la température du matériau sont à noter :

- les raies se rétrécissent,
- les valeurs des sections efficaces d'absorption et d'émission augmentent.

Le tableau B-1 résume les valeurs des sections efficaces d'émission calculées pour la transition 5-1, correspondant à la *zéro-line*, et pour la transition 5-3 : il montre que les valeurs des sections efficaces d'émission augmentent de moins d'un facteur 2 pour Yb : Sc_2O_3 et Yb :Lu_2O_3 lorsque la température chute de plus de 280 K.

	Section efficace d'émission pour la transition 5-1		**Section efficace d'émission pour la transition 5-3**	
Yb : Y_2O_3 **10 at. %**	$2x10^{-20}$ cm² à 4,2 K	$3,3x10^{-20}$ cm² à 76 K	$1,9x10^{-20}$ cm² à 4,2 K	$2,6x10^{-20}$ cm² à 76 K
Yb : Sc_2O_3 **10 at. %**	$2x10^{-20}$ cm² à 5 K	$1,2x10^{-20}$ cm² à 294 K	$1.6x10^{-20}$ cm² à 5 K	$1,1x10^{-20}$ cm² à 294 K
Yb : Lu_2O_3 **10 at. %**	$2x10^{-20}$ cm² à 16 K	$1,6x10^{-20}$ cm² à 294 K	$2,1x10^{-20}$ cm² à 16 K	$1,2x10^{-20}$ cm² à 294 K

Tableau B - 1 : Tableau récapitulatif des valeurs de sections efficaces d'émission de Yb : Y_2O_3, Yb : Sc_2O_3, Yb : Lu_2O_3 à basse température et à température ambiante.

B.3.3.3 Présence d'un phénomène inattendu

Pour les courbes de sections efficaces d'émission, nous avons pu noter la présence de raies parasites aux basses températures, ce pic est d'autant plus visible pour la raie proche de la *zéro-line*. Ne correspondant à aucune transition laser, il joue toutefois un rôle non négligeable dans le calcul des sections efficaces d'émission.

En effet, l'équation B.8 fait intervenir le calcul de l'intégrale du spectre d'émission mesuré. Pour pouvoir évaluer l'influence de ce pic, nous avons repris le spectre d'émission à 5 K de l'échantillon Yb : Sc_2O_3 dopé 10 at. %. Le spectre d'émission a été modifié : le pic parasite a été « supprimé ». Nous avons alors obtenu une nouvelle courbe de section efficace d'émission. Pour la longueur d'onde de 1040 nm, nous avons trouvé une section efficace d'émission de $1,6x10^{-20}$ cm² pour la courbe présentant le pic et de $1,8x10^{-20}$ cm² pour la courbe sans le pic. Nous obtenons un écart d'environ 12 % par rapport à la valeur « vraie » (valeur de section efficace d'émission trouvée sans modification du spectre), ces raies parasites n'ont à priori aucune influence majeure sur le calcul des sections efficaces d'émission [Garcia 08].

B.3.3.4 Influence des valeurs des sections efficaces d'absorption et d'émission en fonction de la taille de site substitué

En comparant les spectres obtenus dans les trois matrices sesquioxydes, nous pouvons constater un décalage de l'émission du niveau $^2F_{5/2}$ vers les plus grandes longueurs d'onde et inversement, un décalage de l'absorption vers les plus courtes longueurs d'onde. Le rayon ionique du scandium est plus petit que celui du lutétium, lui-même plus faible que celui de l'yttrium : l'ion Yb^{3+} est soumis à un champ cristallin d'autant plus fort que le site cationique qu'il substitue est moins volumineux [Laversenne 02].

B.3.3.5 Comparaison entre nos valeurs expérimentales et quelques valeurs de la littérature

A température ambiante, pour des cristaux Yb :Y_2O_3, Yb : Lu_2O_3 et Yb : Sc_2O_3 dopés 5 at. %, à la longueur d'onde de 976 nm, Hraiech a calculé des valeurs de sections efficaces d'absorption, respectivement de $1,95x10^{-20}$ cm², $1,61x\ 10^{-20}$ cm² et $1,35x10^{-20}$ cm² [Hraiech 07].

Pour la même transition, nous avons calculé respectivement des sections efficaces d'absorption de 2,8 x 10^{-20} cm^2, 2,5 x 10^{-20} cm^2 et 3 x 10^{-20} cm^2.

Concernant les sections efficaces d'émission, pour la transition 5-3, Hraiech donne les valeurs de 0,81x10^{-20} cm^2, 1,04x10^{-20} cm^2 et 1,65x10^{-20} cm^2 pour respectivement, des cristaux Yb :Y_2O_3, Yb : Lu_2O_3 et Yb : Sc_2O_3 dopés 5 at. %, à température ambiante [Hraiech 07]. En se référant au tableau B-1, nous pouvons remarquer que nos valeurs expérimentales sont supérieures dans le cas de Y_2O_3 et Lu_2O_3 et inférieure pour Sc_2O_3.

A la température et pour des cristaux Yb :Y_2O_3, Yb :Lu_2O_3 et Yb :Sc_2O_3 dopés 5 at. %, Laversenne a mesuré des sections efficaces d'absorption, à 980 nm, comprises entre 1,1 et 1,2x10^{-20} cm^2 et des sections efficaces d'émission, pour la transition laser 5-3, comprise entre 0,9 et 1,5x10^{-20} cm^2.

D'un point de vue général, pour les valeurs des sections efficaces d'absorption, celles-ci peuvent différer d'un auteur à un autre, du moment où le taux de dopage en ion actif est différent.

Comme nous avons pu l'expliquer précédemment, les valeurs de sections efficaces d'émission dépendent de plusieurs paramètres tels que la valeur de l'indice de réfraction et la durée de vie radiative, dont il est nécessaire d'appréhender. Enfin, ajoutons que la longueur d'onde d'excitation du matériau joue un rôle primordial dans la mesure du spectre d'émission. Ainsi, Hraiech a excité ses échantillons à la longueur d'onde de 920 nm, risquant ainsi des phénomènes de réabsorption.

B.3.3.6 Estimation des niveaux énergétiques

L'attribution des niveaux d'énergie de l'ion Yb^{3+} dans chacune des matrices n'est pas immédiate du fait des transitions vibroniques qui apparaissent sur les spectres d'émission. Nous avons tenté tout de même, d'identifier la position des niveaux d'énergie pour chaque matrice hôte. Le tableau B-2 regroupe les différents niveaux énergétiques estimés pour des céramiques Yb : Y_2O_3, Yb : Lu_2O_3 et Yb : Sc_2O_3 dopées 10 at. %.

		Yb : Y_2O_3 dopé 10 at. %	Yb : Lu_2O_3 dopé 10 at. %	Yb : Sc_2O_3 dopé 10 at. %
	1	0	0	0
$^2F_{7/2}$	2	489 cm^{-1}	112 cm^{-1}	441 cm^{-1}
	3	536 cm^{-1}	652 cm^{-1}	565 cm^{-1}
	4	951 cm^{-1}	1118 cm^{-1}	977 cm^{-1}
	5	10245 cm^{-1}	10267 cm^{-1}	10245 cm^{-1}
$^2F_{5/2}$	6	10521 cm^{-1}	10536 cm^{-1}	10615 cm^{-1}
	7	11047 cm^{-1}	11078 cm^{-1}	11184 cm^{-1}

Tableau B - 2 : Position des niveaux d'énergie de l'ion Yb^{3+} dans les matrices Y_2O_3, Lu_2O_3 et Sc_2O_3.

Il existe une méthode permettant de déterminer plus précisément les niveaux d'énergie, méthode couramment appelée « méthode des barycentres ». N'ayant pas utilisé cette méthode, nous renvoyons le lecteur au mémoire de thèse de Laversenne [Laversenne 02] qui

a utilisé cette méthode pour l'attribution des niveaux d'énergie de l'ion Yb^{3+} dans des matrices Y_2O_3, Lu_2O_3, Sc_2O_3 et YAG.

B.4. Mesure de la durée de vie radiative

La durée de vie radiative est un paramètre essentiel pour évaluer l'efficacité d'un système laser. Quelques précautions doivent être prises en compte pour que la valeur expérimentale ne soit pas surestimée du fait du phénomène de la réabsorption radiative.

La teneur en ions luminescents est le facteur prépondérant du phénomène de la réabsorption. Laversenne a comparé les spectres d'émission de Y_2O_3 dopé à l'ion Yb^{3+} pour des concentrations de 1 et 5 at. %. Elle a ainsi montré que le phénomène de réabsorption de fluorescence se manifeste par la réduction de près de 60 % de l'intensité de la *zéro-line* par rapport à l'échantillon dopé 1 at. % [Laversenne 02].

D'autres paramètres tels que la température ou bien encore la taille de l'échantillon peuvent influencer la valeur de la durée de vie radiative. Tous ces points sont étroitement liés à ce phénomène :

- la population des niveaux Stark augmente avec la température et de ce fait, de plus en plus de transitions sont susceptibles d'être réabsorbées,
- la taille de l'échantillon est un paramètre crucial car plus elle est importante, plus le rayonnement pourra être réabsorbé et donc retardé avant de parvenir au point de la mesure.

Un dispositif expérimental a été mis en œuvre afin d'enregistrer les durées de vie radiative à température ambiante. Le principe est le suivant : la source excitatrice est une diode laser continue modulée par un générateur de fonction, créant un signal carré de fréquence 10 Hz. Le rayonnement excitateur est focalisé sur l'échantillon. Le rayonnement de fluorescence émis passe à travers un monochromateur HR 640, Jobin Yvon. La longueur d'onde de la transition étudiée est sélectionnée et est converti en signal électrique à l'aide d'un détecteur rapide au germanium AD 403HS : le signal est enregistré sur un oscilloscope.

Les durées radiatives de céramiques Yb : Y_2O_3, Yb : Sc_2O_3 et Yb : Lu_2O_3 dopées 10 at. % ont été mesurées respectivement à 965 µs, 630 µs et 900 µs. La barre d'erreur des mesures a été estimée à ± 15 %.

B.5. Les différents phénomènes pouvant se produire dans nos matériaux lasers

B.5.1. La luminescence coopérative

Au cours de l'étude des matrices sesquioxydes dopées à l'ion ytterbium, nous avons pu constater une émission verte intense. Nous avons émis l'hypothèse que la fluorescence verte pouvait être induite par le processus de luminescence coopérative. Ce processus correspond à la désexcitation simultanée de deux ions qui additionnent leurs énergies pour émettre un photon unique. Il est essentiellement dû à la forte concentration en ion ytterbium dans le matériau. La figure B-8 schématise le processus de luminescence coopérative entre deux ions Yb^{3+} : le photon est émis vers 500 nm, énergie correspondant à la somme des énergies des deux photons de la transition $^2F_{5/2}$ - $^2F_{7/2}$. Ce mécanisme n'est pas assimilable à un transfert d'énergie classique car dans le cas de l'ion Yb^{3+}, le photon émis provient d'un niveau d'énergie situé à 20 000 cm^{-1} qui n'est pas à un niveau d'énergie « réel » de l'ion.

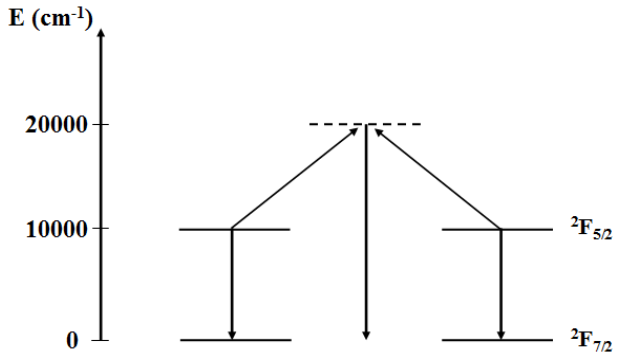


Figure B - 8 : Représentation schématique du processus de luminescence coopérative entre deux ions Yb^{3+}.

B.5.2. L'Addition Par Transfert d'Energie (APTE)

Ce processus fait intervenir un transfert d'énergie entre deux ions excités qui assure la promotion de l'un d'entre eux dans un état supérieur, à une énergie pouvant être égale à la somme des énergies des ions en interaction. L'APTE est représentatif de la présence d'impuretés dans le matériau. La figure B-9 illustre ce processus.

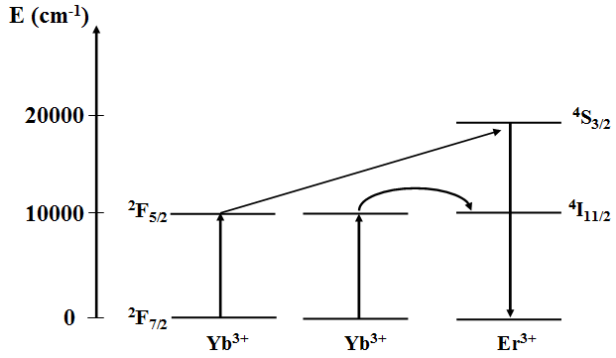


Figure B - 9 : Représentation schématique du processus d'APTE entre deux ions Yb^{3+}.

Lors des mesures de la durée de vie radiative, nous avons également remarqué une luminescence bleue autour de 550 nm. Celle-ci est représentative du processus d'APTE : nous avons ainsi pu mettre en évidence la présence d'ions erbium dans nos matériaux.

B.5.3. Transfert d'énergie par transition radiative (self-trapping)

Les transferts d'énergie par transition radiative sont aussi désignés par l'expression "piégeage radiatif" ou "self trapping" en anglais; ils se caractérisent par un processus en chaîne entre ions identiques de réabsorptions et réémissions de la radiation initiale. Ainsi, l'énergie est diffusée sur une grande distance, et expérimentalement, ce phénomène se traduit par un allongement de la durée de vie mesurée sur le volume de l'échantillon par rapport à la durée de vie de l'ion isolé. La taille et la concentration en ion actif de l'échantillon sont les principaux paramètres responsables du phénomène de réabsorption radiative : la probabilité qu'une radiation soit réabsorbée et réémise augmente avec la distance parcourue dans le matériau.

Il existe également des piégeages non radiatifs engendrant ainsi le processus dit de « quenching » : dans le même principe que le piégeage radiatif, ce processus est lié à la forte concentration en ion actif et est caractérisé par un processus en chaîne entre ion identique de réabsorption jusqu'à un centre piégeur qui va émettre. Lorsque la concentration augmente, la distance entre deux ions ytterbium diminue et il peut y avoir un transfert d'énergie non radiatif. Ce phénomène provoque une extinction de la luminescence, et donc une diminution de la durée de vie radiative du matériau.

L'évolution de la durée de vie en fonction de la concentration en ytterbium est une mesure intéressante car elle permet de mettre en évidence deux phénomènes compétitifs qui ont lieu après passage dans l'état excité : une augmentation de la durée de vie due à la réabsorption, et une diminution due aux transferts non radiatifs.

Ces deux phénomènes sont représentatifs de la forme de la courbe de la durée de vie en fonction de la concentration en ion actif. Prenons un exemple pour illustrer la dépendance de

ce paramètre en fonction du taux de dopage. Laversenne a mesuré les durées de vie sur des cristaux Yb :Y_2O_3 pour différents taux de dopage (Figure B-10) [Laversenne 02] :

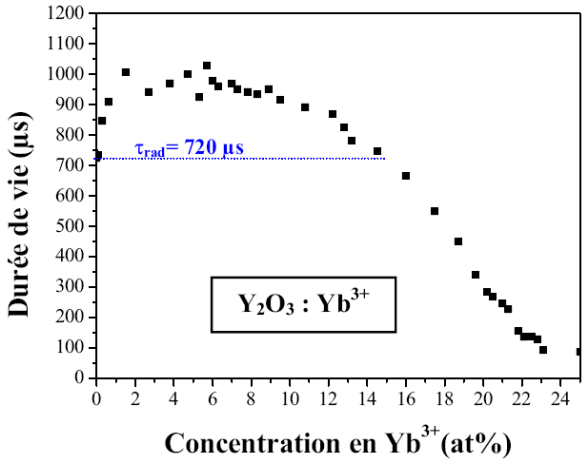


Figure B - 10 : Mesures des durées de vie radiative de cristaux Yb : Y_2O_3 pour différents taux de dopage.

Pour des taux de concentration inférieurs à 6 at. %, la durée de vie radiative augmente avec le taux de dopage : ce phénomène est représentatif du piégeage radiatif. Pour des concentrations supérieures à 6 at. %, la durée de vie diminue, ceci est dû au « quenching » de concentration.

Annexe C :

Métrologie thermique pour la cryogénie

Cette annexe se propose de détailler l'ensemble des moyens de métrologie et de thermométrie spécifiques au domaine de la cryogénie.

Pour l'ingénieur, la cryogénie est avant tout un outil : le développement des applications faisant appel à la cryogénie nécessite de refroidir l'appareillage concerné par divers moyens. Cet ensemble est placé dans une enceinte adapté, appelé couramment cryostat.

C.1. Spécificités des mesures à basse température

Pour réaliser une mesure correcte à basse température, il faut tenir compte, non seulement de l'aspect instrumentation, mais également de l'environnement, de l'accessibilité, du couplage thermique...

La qualité de la mesure dépend du choix du capteur, de sa mise en œuvre et des précautions prises lors du montage. L'apport de chaleur lié à la prise de mesure doit être minimisé, d'une part, pour ne pas perturber le système mesuré et, d'autre part, pour ne pas fausser la mesure. Ce paragraphe décrit entre autre les différents aspects à prendre en considération pour effectuer une mesure en température correcte.

Pour obtenir une mesure de température de qualité, il faut minimiser l'écart de température entre le capteur et l'élément à mesurer. Pour cela, il est possible d'agir sur les paramètres suivants : contact thermique, flux thermique par conduction, auto-échauffement du capteur, rayonnement thermique.

Concernant le contact thermique, la notion à prendre en compte est la résistance de contact entre le matériau à étudier et le moyen de mesure de température. Il dépend entre autre de l'état de surface de ces deux composants : les imperfections, la rugosité des surfaces en contact limitent à quelques points le passage de la chaleur. Pour améliorer le couplage thermique entre deux corps, nous pouvons agir soit sur la surface d'échange, soit sur la résistance de contact entre ces deux corps.

La surface d'échange dépend de la force de serrage. Sous la pression due au serrage, les aspérités des surfaces se réduisent et la surface d'échange augmente.

Pour des capteurs de température montés sur un support, il faut faire tout particulièrement attention à ce que le capteur reste bien en contact de la zone à mesurer. Il faut notamment tenir compte des coefficients de dilatation des matériaux qui varient en fonction de la température. Pour les mesures de conductivité thermique où la sonde de température est placée entre le support échantillon et le matériau, nous avons utilisé, afin de s'assurer d'un contact constant et permanent, des rondelles Belleville sur le support.

Des colles spécifiques aux températures cryogéniques peuvent être également utilisées telles que la colle STYCAST.

Il existe également des graisses spécifiques au domaine de la cryogénie. La graisse n'a pas forcément une bonne conductivité thermique, mais elle permet d'augmenter la surface d'échange entre le capteur et la surface à mesurer.

Le second point important concernant le couplage thermique est la notion de thermalisation. Il s'agit de l'apport de chaleur qu'apportent les fils électriques du capteur. Pour imager au mieux ce problème, prenons pour exemple les mesures de diffusivité thermique que nous avons effectuées à basse température. La sonde de température est placée entre le support échantillon et la face arrière de ce dernier. A la température de l'azote liquide, il faut attendre un certain temps pour que le système « support échantillon / sonde de température / échantillon » soit à 77 K. Les fils électriques reliés au passage étanche du cryostat étant dans le vide, leur température est équivalentes à la température ambiante. Pour réduire le flux de chaleur qu'ils peuvent apporter, nous les avons entourés autour du tube en cuivre sur lequel repose le support échantillon, et ont été plaqués avec du ruban adhésif en aluminium.

Enfin, le dernier point et non pas des moindres, à citer dans le cadre du couplage thermique est l'auto-échauffement de certaines sondes de températures. En effet, certains capteurs, tels que les sondes Cernox ou bien les sondes Pt 100, sont alimentés en courant. Ils dissipent alors par effet joule une puissance qui provoque l'auto-échauffement de ce dernier. Cela provoque un écart de température entre le capteur et l'élément à mesurer. Il est nécessaire de réduire au maximum le courant d'alimentation de ces capteurs. Lors des premiers tests de mesures de diffusivité thermique à basse température, nous avons été face à ce problème d'auto-échauffement…. Nous verrons dans la suite de ce chapitre qu'il est possible de diminuer ces effets grâce aux diverses options proposées par le contrôleur de température.

Un dernier point à ne pas négliger est le câblage des fils électriques entre l'intérieur du cryostat et l'extérieur. Pour cela, nous avons utilisé un passage étanche (modèle Jaeger) que nous avons positionné sur l'une des sorties de notre cryostat. Lors du câblage des fils du capteur de température, et plus particulièrement lors de l'opération de soudure, nous avons fait attention à mettre suffisamment et non abondamment de l'étain, pour ne pas fausser les mesures.

Dans ce qui suit, les différents moyens permettant de mesurer la température vont être détaillés.

C.2. Les moyens de mesures de la température

C.2.1 Les résistances de platine, ou encore appelé thermomètres à résistance métallique

Les thermomètres de résistance de platine sont les thermomètres les plus couramment utilisés entre 80 et 300 K. Ils ont deux atouts majeurs : leur faible coût, et la parfaite connaissance de la loi liant la température à la résistance de platine. Par exemple, pour une sonde Pt100, la loi liant la résistance à la température est :

$$R = 100 + 0{,}3864T \qquad \text{Équation C-1}$$

Dans le domaine des thermomètres à résistance métallique, nous pouvons également citer les résistances Rhodium-Fer. Ces thermomètres sont beaucoup moins utilisés que les thermomètres en platine, car il n'existe pas de norme définissant précisément la relation résistance-température, pour des températures supérieures à 30 K, leur sensibilité est beaucoup plus faible que celle du platine. Ces thermomètres sont beaucoup plus utilisés dans la gamme de température comprise entre 1,5 K et 30 K.

C.2.2 Les thermomètres à résistance de carbone

En raison de leur faible coût, les résistances en carbone ont été pendant longtemps les capteurs les plus utilisés dans les applications fonctionnant à l'hélium liquide. En dessous de 100 K, leur sensibilité est très importante. Malheureusement, ce type de capteur est assez instable et nécessite de fréquents réétalonnages.

C.2.3 Les thermomètres à résistance d'oxyde de ruthénium

Les résistances RuO_2 (oxyde de ruthénium) sont des composants utilisés dans les circuits électroniques et sont utilisés comme capteur de température pour des températures inférieures à 1 K, où ils ont une très bonne sensibilité. Ils exigent au moins un étalonnage par lot. De nouveaux composants, avec de meilleures sensibilités de 4 K à 300 K, apparaissent actuellement sur le marché.

C.2.4 Les thermomètres au germanium

Les résistances au germanium dopé sont utilisables pour des températures inférieures à 100 K. Elles sont stables. Comme pour les thermomètres au carbone, la résistance des

thermomètres au germanium varie d'une sonde à l'autre : ils doivent donc être étalonnés avant utilisation.

C.2.5 Les thermomètres à diodes

Les diodes au silicium (Si) ou à l'arséniure de gallium (AsGa) ont des caractéristiques résistance-température pratiquement linéaire sur une grande partie de leur plage de fonctionnement. Elles sont interchangeables avec une exactitude d'environ 1 % pour une plage de température de 40 K à 300 K.

C.2.6 Les thermomètres Cernox

Les thermomètres Cernox sont des sondes de températures développés par LakeShore pour les applications cryogéniques. Ils couvrent la plage de température comprise entre 1,5 K et 300 K avec une bonne sensibilité, mais ils exigent un étalonnage pour chaque sonde.

C.2.7 Le thermocouple

Le thermocouple est le moyen le plus couramment utilisé pour la mesure de température.

Au bornes d'un circuit composé de deux conducteurs A et B dont la jonction est la température T_1, différente de celle des extrémités T_2, il apparaît une force électromotrice ne dépendant que de la nature des conducteurs et des températures T_1 et T_2. Cet effet est appelé effet Seebeck [TI 2950].

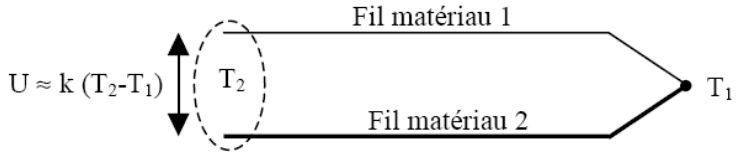


Figure C - 1 : Schéma de principe d'un thermocouple.

Des tables donnent pour chaque type de thermocouple la tension $U(T)$ délivrée lorsque la jonction froide est à 273 K et la jonction chaude à T.

Le point important à noter est que la sensibilité des thermocouples diminue avec la température, il est donc difficile d'obtenir de bonnes exactitudes de mesure. Dans le domaine de la cryogénie, le thermocouple est essentiellement utilisé pour des mesures différentielles : dans le cas contraire, il est nécessaire d'avoir un point de référence de température. Le tableau suivant regroupe les différents types de thermocouples utilisés pour les basses températures :

Couple	*Plage de température (en K)*	*Sensibilité moyenne (en µV/K)*
Cuivre-Constantan (type T)	3 à 670	3 à 62
Chromel-Constantan (type E)	3 à 1270	4 à 75
Fer-Constantan (type J)	60 à 1030	20 à 64
Chromel-Alumel (type K)	3 à 1370	2 à 38

Tableau C - 1 : Les différents types de thermocouples utilisés aux températures cryogéniques.

La réalisation de la soudure de deux fils pour réaliser un thermocouple est délicate : pour des fils de gros diamètre, il est possible de réaliser la jonction en les torsadant. Dans ce cas la température mesurée est celle du dernier point de contact entre les deux fils.

La mesure d'une température de surface est délicate à cause du contact imparfait entre la soudure (ou la torsade) des extrémités des fils et la surface dont on veut mesurer la température. Il subsiste toujours une résistance thermique de contact entre les deux qui fausse plus ou moins la mesure. Il est préférable de réaliser un contact séparé en appliquant (par un morceau de ruban adhésif si la température le permet) les extrémités des deux fils du thermocouple sur la surface à une distance de quelques millimètres. Le contact électrique est alors réalisé par la surface elle-même, à condition qu'elle soit conductrice (si elle ne l'est pas on la recouvre d'une fine couche de laque d'argent). On mesure ainsi la moyenne des températures des deux points de contact en étant sûr qu'il n'existe pas de résistance de contact, l'existence d'un défaut de contact est facilement repérable car il conduit à une tension nulle aux bornes du thermocouple (circuit ouvert).

Lors de mesures en régime transitoire rapide, il est important que le thermocouple présente un temps de réponse le plus faible possible. Plus les fils sont fins, plus le temps de réponse est faible.

Un dernier point concerne l'étalonnage du thermomètre : cela consiste à donner une loi qui lie sa grandeur physique à la température. La méthode la plus fréquemment utilisée est l'étalonnage par comparaison avec une référence de température. Les thermomètres sont placés dans un cryostat qui permet de réaliser des paliers de température. A chaque palier, la température de référence est mesurée ainsi que la résistance des thermomètres à étalonner. Dans le cas où seule l'élévation de la température est le paramètre à mesurer, le procédé d'étalonnage n'est pas nécessaire.

C.2.8 Le détecteur infrarouge IR

Ce sont des détecteurs optiques (photovoltaïques) de quelques mm^2 qui génèrent un courant quand ils sont exposés à un rayonnement infrarouge. Placés proches de la surface dont on veut mesurer la température, ils délivrent un signal proportionnel à la température de surface si les écarts de température sont faibles. Leur intérêt est de permettre une mesure sans contact donc sans perturbation de la surface dont on veut mesurer la température. Ils présentent également un temps de réponse pratiquement nul ce qui permet d'étudier des

phénomènes transitoires de quelques millisecondes. Ils nécessitent d'être maintenus à température constante la plus basse possible par utilisation d'azote liquide ou d'élément Peltier. Un inconvénient réside de leur coût, relativement élevé.

C.2.9 La caméra infrarouge IR

Ces cameras permettent de mesurer non plus une température ponctuelle mais un champ de grandeurs proportionnelles à la température. Un calibrage à partir d'un corps à température contrôlée et d'émissivité connue est nécessaire pour remonter aux températures. Le nombre d'informations à traîter devient très important et nécessite d'utiliser des techniques de traitement du signal performantes. Les applications sont multiples : détection de défauts dans des plaques, mesure de champ de diffusivité thermique…

C.3 Le système cryogénique mis en place dans le cadre de nos mesures

Le cryostat, modèle ST-100, Janis, est utilisé pour refroidir des échantillons de céramiques lasers à des températures cryogéniques. L'échantillon est alors refroidi à l'intérieur du cryostat par conduction thermique. L'isolation thermique du dispositif expérimental est assurée par l'enceinte à vide du cryostat et par une canne de transfert sous vide.

Le cryostat est pourvu de 4 hublots transparents. Le vide est assuré à l'aide d'un système de pompage : il s'agit d'un combiné regroupant une pompe primaire et une pompe turbo moléculaire de type VARIAN TV70LP permettant d'atteindre un vide d'environ 10^{-6} mbar dans l'enceinte du cryostat, soit 10^{-4} Pa. Une jauge de mesure de pression a été mise en place afin de contrôler la valeur du vide dans le cryostat. Le réservoir est légèrement pressurisé (environ 1,3 bars). Cette pression est établie naturellement par les pertes thermiques du réservoir d'azote liquide.

Un contrôleur de température (correcteur PID) associé à des capteurs de température placés dans le cryostat, pilote une résistance chauffante pour asservir la température de la céramique laser à une température donnée.

Notons enfin que la canne de transfert autorise le contrôle du débit d'azote liquide injecté dans le cryostat par l'intermédiaire d'une vanne de réglage du débit, permettant de réaliser des rampes de températures. La double paroi de la canne évite les risques de brûlure encourus lors du refroidissement du cryostat. Lors de la mise à froid du cryostat, les vapeurs d'azote sont émises par le port d'évacuation de ce dernier. Afin de protéger les optiques placées autour du cryostat, une canalisation flexible a été placée sur ce port. L'autre côté de son extrémité est plongé dans un réservoir cryogénique fixé au marbre permettant de recueillir les éventuelles gouttelettes d'azote liquide.

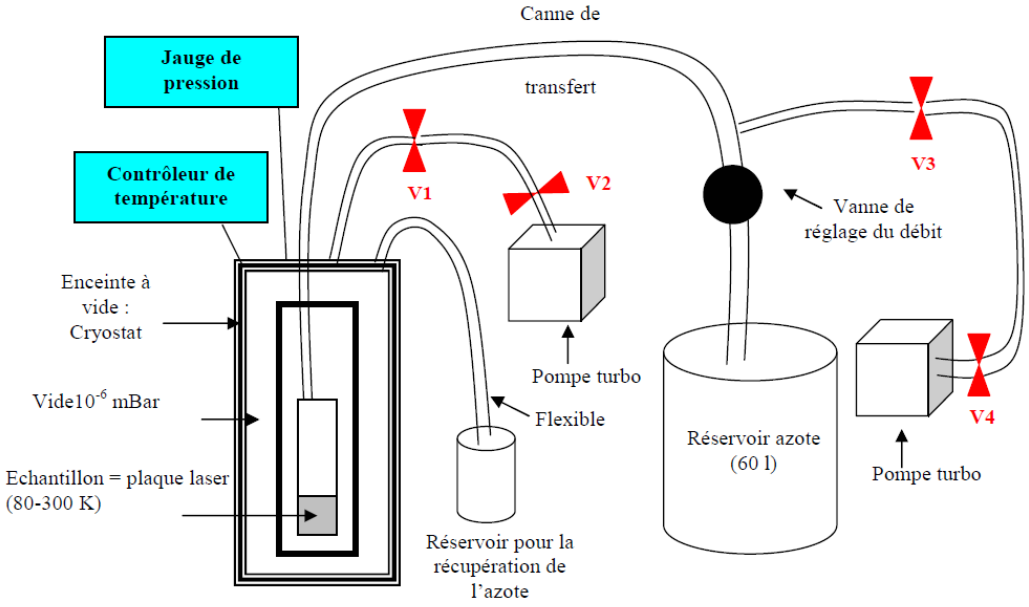


Figure C - 2 : Schéma de principe du cryostat avec son système de vide et son réservoir.

Dans le cadre de cette thèse, plusieurs types de thermomètres ont été utilisés. Les sondes sont reliées à un contrôleur de température LakeShore, modèle 332, distribué par CryoForum. Cet appareil permet de mesurer les tensions aux bornes des thermomètres. Une des sorties de ce contrôleur de température est relié à une centrale d'acquisition HP, permettant ainsi d'enregistrer le signal en sortie du contrôleur.

Des thermocouples type T et K ont été utilisés pour vérifier les températures de certains composants tels que les hublots du cryostat ou bien encore l'échantillon.

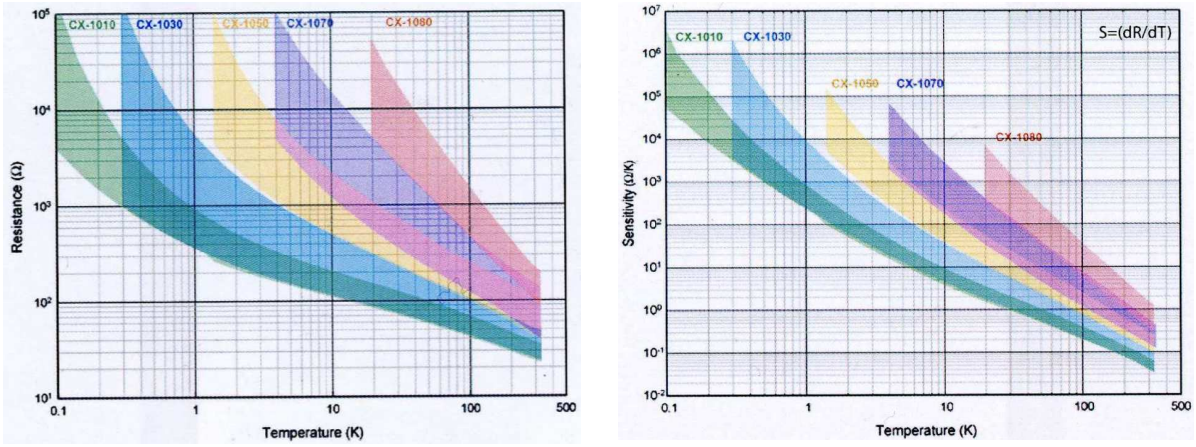
La température du cryostat est mesurée par une diode en silicium placée près du support échantillon.

Dans le cadre des mesures du coefficient thermo-optique *dn/dT*, une sonde Cernox, modèle RTDs a été mise en place sur le support en cuivre de l'échantillon.

Pour les mesures de la conductivité thermique, deux types de sonde ont été envisagées.

Pour l'avantage d'avoir une sensibilité qui augmente lorsque la température diminue, une sonde Cernox, modèle « barchip » CX-1070-BC a été positionnée entre le support et l'échantillon.

Les sondes Cernox correspondent à des mesures de résistances. Chaque modèle de sonde Cernox (RTDs, barchip, ...) possède plusieurs types de capteurs, différenciés par des numéros allant de 1010 à 1080, suivant la gamme de température de travail et la sensibilité que l'on souhaite acquérir. Pour chacun d'entre eux, il existe des tables établissant la correspondance entre la valeur de la température et les valeurs de la résistance, de la sensibilité, ... Les deux figures suivantes représentent pour chaque type de sonde, d'une part, les valeurs de résistances de ces capteurs en fonction de la température, et d'autre part, les sensibilités correspondantes.



a *b*

Figure C - 3 : Résistances et sensibilités en fonction de la température de différentes sondes Cernox.

Deux possibilités sont à envisager pour ce type de sonde : soit la sonde est reliée au contrôleur de température, lui-même câblé à la centrale d'acquisition, soit la sonde est reliée directement à la centrale d'acquisition.

Dans ces deux cas, la mesure correspond à une mesure de résistance de la sonde, mesure couramment appelée « mesure 4 fils » : le contrôleur de température ou la centrale d'acquisition envoie une intensité à la sonde, permettant ainsi son fonctionnement et correspondant à l'utilisation de deux fils de connexion de la sonde, et effectue ensuite une mesure de résistance (utilisation des deux autres fils de connexion de la sonde).

L'avantage de l'utilisation du contrôleur de température est que l'intensité délivrée peut être choisie par l'utilisateur, celle-ci pouvant varier de 1 mA à 1 µA selon la résistivité de la sonde. Dans le cas de la centrale d'acquisition, l'intensité délivrée est fixée à 1 mA. Ce point est important. En effet, si le courant envoyé à la sonde est élevé, un phénomène de sur-échauffement peut se produire.

Dans le cadre des mesures de diffusivité thermique, l'élévation de la température mesurée en face arrière du matériau peut être inférieure à 1 K. Si lors de cette mesure, la sonde se surchauffe, elle peut créer un surplus de chaleur, faussant ainsi la véritable élévation de la température. Il est donc important d'imposer le courant d'alimentation de ce type de sondes : l'utilisation du contrôleur de température est plus judicieuse. L'inconvénient de cet appareil est son temps de réponse : en effet, la mesure de résistance ne se fait que toutes les 40 ms. Pour les mesures de diffusivité thermique à basse température, si l'élévation de la température est inférieure à ce temps de réponse, la mesure est faussée.

Une autre solution est l'utilisation d'un thermocouple type K avec des fils de fins diamètres. L'inconvénient de ce type de mesure est que la sensibilité du thermocouple diminue avec la température. L'avantage est que ce dernier ne nécessite pas de courant d'alimentation : la mesure correspond à une mesure directe de la tension. Afin de s'affranchir des problèmes de temps de réponse, l'idée est de relier le thermocouple directement à une centrale d'acquisition de type Nicolet permettant de réaliser jusqu'à 10 000 points de mesure par seconde.

Annexe D :

Autres mesures expérimentales réalisées sur nos échantillons

Cette annexe se propose de montrer des résultats expérimentaux supplémentaires obtenus sur nos céramiques Yb : Y_2O_3, Yb : Sc_2O_3 et Yb : Lu_2O_3 dopées 10 at. % étudiées lors de mesures de performances lasers.

D.1 Performances lasers à basse température sur un support échantillon troué

Les mesures de surface d'onde que nous avons réalisées nécessitent d'utiliser un support échantillon troué [Marmois 10].

Les échantillons sont les mêmes que ceux utilisés lors des mesures de performances lasers présentés dans la première partie de ce mémoire. Nous rappelons qu'il s'agit de disques de 20 mm de diamètre (pour les échantillons Yb : Y_2O_3), ou de 18 mm de diamètre (pour les échantillons Yb : Sc_2O_3 et Yb : Lu_2O_3) et d'épaisseur comprise entre 1 et 3 mm, tous dopés à 10 at. % ytterbium. La face avant est traitée antireflet pour une gamme de longueurs d'onde comprises entre 900 nm et 1100 nm, la face arrière est quant à elle hautement réfléchissante pour la même gamme de longueurs d'onde.

Le disque est placé sur un support en laiton du cryostat, ce support est percé d'un trou de diamètre 16 mm, en vue des mesures de focale thermique. Une feuille d'indium, d'épaisseur 125 µm, a été placée entre le support et l'échantillon permettant un bon contact thermique.

La cavité laser est constituée de la face arrière hautement réfléchissante de l'échantillon et d'un coupleur ayant une réflectivité de 95, 80 ou 70%. L'angle entre le faisceau de pompe et la cavité est de 30°. Le schéma du dispositif expérimental est donné par la figure D-1 :

Le système de pompage est le même que celui décrit dans le chapitre 2 de la première partie.

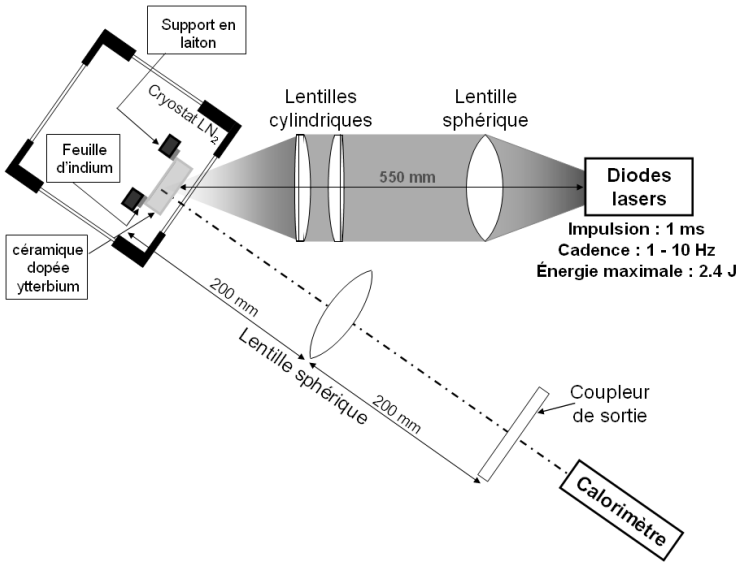


Figure D - 1 : Schéma du dispositif expérimental.

D.1.1 Résultats expérimentaux pour Yb : Y_2O_3

Cette partie présente les résultats obtenus avec une céramique, d'épaisseur 2 mm, Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. %. Nous nous sommes placés dans la configuration où les diodes lasers ont une cadence de 1 Hz avec des impulsions de 1 ms et sont refroidies à une température de 40°C. Nous avons utilisé un coupleur de sortie de réflectivité 70 %, pour des températures du porte échantillon comprises entre 77 K et 230 K, et un coupleur de sortie de réflectivité 95% lorsque l'échantillon est à température ambiante. Pour chaque température, l'énergie extraite de la cavité est mesurée en fonction de l'énergie de pompe incidente. Les résultats sont présentés dans la figure D-2 :

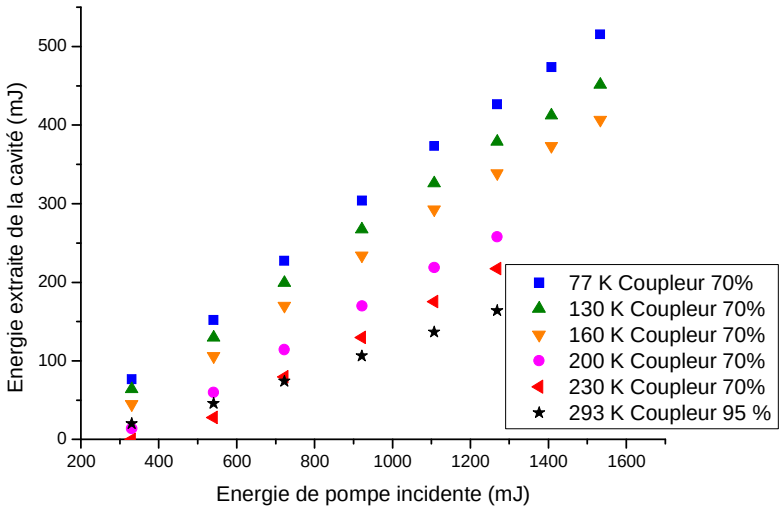


Figure D - 2 : Energies en sortie de l'oscillateur Yb : Y_2O_3 dopé 10 at. %, d'épaisseur 2 mm en fonction de l'énergie de pompe incidente pour différentes températures du porte échantillon comprises entre 77 K et 293 K.

De cette figure, nous avons déterminé la pente d'efficacité laser et le seuil du fonctionnement laser de chaque courbe. Les résultats sont résumés dans le tableau D-1 :

Température	*Coupleur de sortie*	*Pente*	*Energie seuil*
77 K	70 %	36,8 %	112,5 mJ
130 K	70 %	32,5 %	121,2 mJ
160 K	70 %	30,5 %	173,9 mJ
200 K	70 %	26,6 %	291,7 mJ
230 K	70 %	23,9 %	376,4 mJ
293 K	95 %	15,5 %	228,1 mJ

Tableau D - 1: Tableau récapitulatif des pentes d'efficacité et des énergies seuil de l'oscillateur Yb : Y_2O_3 obtenues à partir des courbes précédentes.

De la figure D-2 et du tableau D-1, nous pouvons en déduire deux phénomènes majeurs. Nous constatons que la pente d'efficacité augmente lorsque la température du porte échantillon diminue. La pente passe de 23,9% à 36,8% lorsque la température chute de 153 K. De plus, nous pouvons constater que la valeur du seuil de fonctionnement laser diminue lorsque la température diminue. En effet, lorsque la température chute de 153 K, la valeur du seuil passe de 376,4 mJ à 112,5 mJ. Ces phénomènes sont identiques à ceux obtenus sur support plein : leur explications restent donc identiques à ceux présentés en chapitre 2.

D.1.2 Résultats expérimentaux pour Yb : Lu_2O_3

Cette partie présente les résultats expérimentaux obtenus à différentes températures sur un disque de sesquioxyde de lutétium dopé 10 at. % ytterbium, d'épaisseur 1.5 mm. Nous nous sommes placés dans la configuration où les diodes lasers ont une cadence de 1 Hz avec des impulsions de 1 ms et sont refroidies pour une température du système de refroidissement de 40°C. Nous avons utilisé un coupleur de sortie de réflectivité 95 %. Les résultats sont présentés dans la figure D-3 :

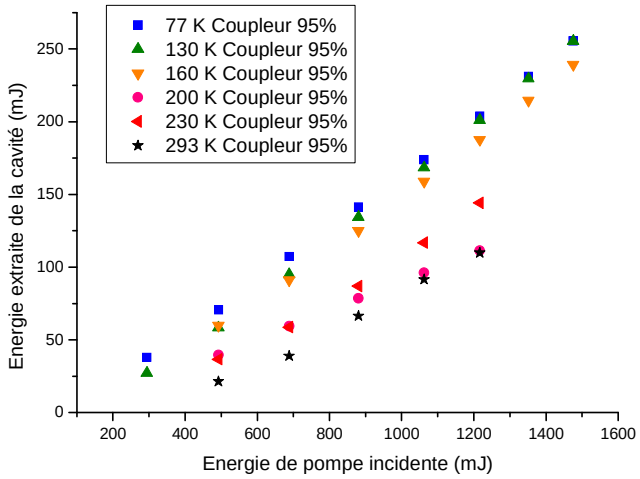


Figure D - 3 : Energies en sortie de l'oscillateur Yb : Lu_2O_3 dopé 10 at. %, d'épaisseur 1,5 mm en fonction de l'énergie de pompe incidente pour différentes températures du porte échantillon comprises entre 77 K et 293 K.

Le tableau D-2 synthétise les valeurs des pentes d'efficacité et des énergies seuil obtenues à partir des courbes de la figure D-3 :

Température	*Coupleur de sortie*	*Pente*	*Energie seuil*
77 K	95 %	18,4 %	103,9 mJ
130 K	95 %	19,5 %	183,9 mJ
160 K	95 %	18,3 %	185,4 mJ
200 K	95 %	9,9 %	88,4 mJ
230 K	95 %	14,9 %	274,6 mJ
293 K	95 %	12,6 %	346,8 mJ

Tableau D - 2 : Tableau récapitulatif des pentes d'efficacité et des énergies seuil de l'oscillateur Yb : Lu_2O_3 obtenues à partir des courbes précédentes.

Là encore les performances de l'oscillateur sont améliorées de manière significative lorsque la température de l'échantillon diminue. D'une part, la pente d'efficacité laser est plus importante à basse température : elle passe de 18,4 % à 77 K à 12,6 % à température ambiante. D'autre part, le seuil de démarrage des oscillations lasers dans la cavité est plus faible lorsque la température de l'échantillon diminue.

D.1.3 Résultats expérimentaux pour Yb : Sc_2O_3

Nous avons fait les mêmes mesures que pour Yb : Y_2O_3 et Yb : Lu_2O_3 sur une céramique de sesquioxyde de scandium, d'épaisseur 1 mm, dopée à 10 at. % ytterbium (les diodes lasers ont une cadence de 1 Hz avec des impulsions de 1 ms et sont refroidies pour une

température du système de refroidissement de 40°C, le coupleur de sortie est de 80 %). La figure D-4 présente les mesures de l'énergie extraite de la cavité en fonction de l'énergie de pompe incidente et pour différentes températures du porte échantillon.

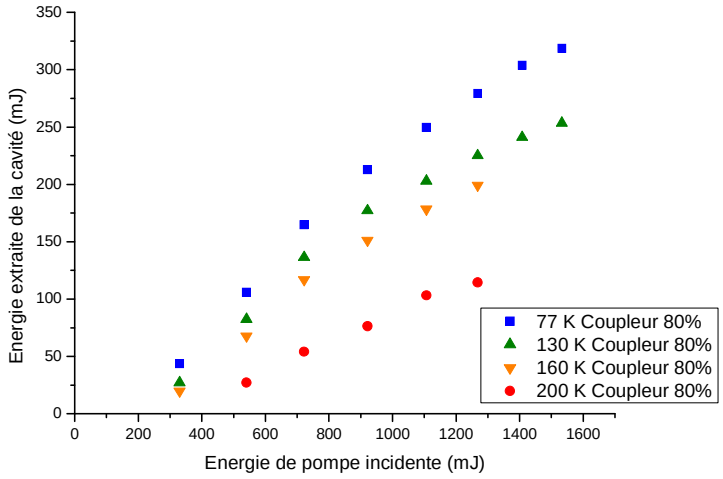


Figure D - 4 : Energies en sortie d'oscillateur Yb : Sc_2O_3 dopé 10 at. %, d'épaisseur 1 mm en fonction de l'énergie de pompe incidente pour des températures du porte échantillon comprises entre 77 K et 200 K.

Le tableau D-3 synthétise les valeurs des pentes d'efficacité et des énergies seuil obtenues à partir des courbes de la figure D-4 :

Température	*Coupleur de sortie*	*Pente*	*Energie seuil*
77 K	80 %	30,9 %	192,1 mJ
130 K	80 %	27,9 %	237,3 mJ
160 K	80 %	24,8 %	256,2 mJ
200 K	80 %	13,8 %	334,9 mJ

Tableau D - 3 : Tableau récapitulatif des pentes d'efficacité et des énergies seuil de l'oscillateur Yb : Sc_2O_3 obtenues à partir des courbes précédentes.

Là encore, nous pouvons constater que les performances de l'oscillateur sont améliorées de manière significative lorsque la température de l'échantillon diminue. D'une part, la pente d'efficacité laser est plus importante à basse température, et d'autre part, le seuil de démarrage des oscillations lasers dans la cavité est plus faible pour les basses températures.

D.1.4 Comparaison entre les résultats obtenus pour un support percé et un support plein

Prenons le cas des résultats expérimentaux obtenus sur une la céramique Yb : Y_2O_3 dopée 10 at. %. Le tableau D-4 rappelle les pentes d'efficacités lasers et des énergies seuils obtenues dans le cas d'un support plein :

Température	*Coupleur de sortie*	*Pente*	*Energie seuil*
77 K	70 %	39,3 %	95,5 mJ
120 K	70 %	37,8 %	114,2 mJ
170 K	70 %	31,2 %	133,6 mJ
220 K	70 %	22,7 %	235,6 mJ
293 K	95 %	17,9 %	118,2 mJ

Tableau D - 4 : Tableau récapitulatif des pentes d'efficacité et des énergies seuil de l'oscillateur Yb : Y_2O_3 obtenues pour un support plein

Pour des températures de support échantillon et des coupleurs de sortie identiques, les performances lasers sont meilleures dans le cas d'un support plein. Cela peut s'expliquer par meilleur refroidissement de l'échantillon que le support percé.

D.2. Mesures de l'énergie absorbée à basse température

Avant de mesurer les effets thermiques présents dans le matériau laser, il est nécessaire de connaître avec exactitude l'énergie absorbée par celui-ci. Nous avons mis en place un dispositif expérimental (Figure D-5) permettant de réaliser un bilan énergétique pour différentes températures des céramiques lasers.

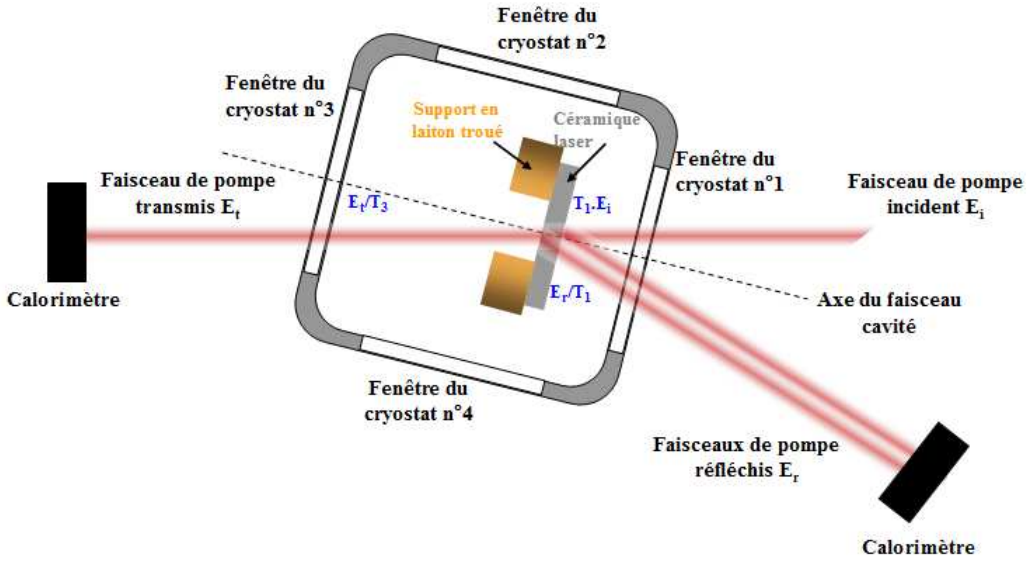


Figure D - 5 : Dispositif expérimental permettant de mesurer l'énergie absorbée.

L'énergie absorbée les matériaux est égale à la mesure de l'énergie de pompe incidente E_i à laquelle nous soustrayons l'énergie de pompe transmise E_t et l'énergie de pompe réfléchie E_r. Pour ce dernier paramètre, il est nécessaire de prendre en compte les énergies réfléchies par les faces avant et arrière de l'échantillon. La transmission des hublots du cryostat à la longueur d'onde de pompe doivent également être pris en considération dans le calcul :

$$E_{abs}(\lambda_p) = E_i T_1(\lambda_p) - \frac{E_t}{T_3(\lambda_p)} - \frac{E_r}{T_1(\lambda_p)} \qquad \text{Équation D-1}$$

où E_{abs} est l'énergie absorbée par le matériau. E_i est l'énergie incidente avant transmission du hublot 1, E_t et E_r sont respectivement les énergies transmise et réfléchie mesurées après transmission des hublots 3 et 1. T_1 et T_3 sont respectivement les facteurs de transmission des hublots 1 et 3 du cryostat, à la longueur d'onde de pompe.

Les mesures ont été réalisées à la fois dans le cas du lasage et du non lasage du matériau.

Concernant l'erreur des mesures, la valeur du coefficient de transmission des hublots est supposée négligeable devant celle des mesures des énergies, estimées à 15 %. Ainsi, l'erreur totale sur le calcul de l'énergie absorbée est donnée par :

$$\Delta E_{abs} = \Delta E_i \cdot T_1(\lambda_{pump}) + \frac{\Delta E_t}{T_3(\lambda_{pump})} + \frac{\Delta E_r}{T_1(\lambda_{pump})} \qquad \text{Équation D-2}$$

D.3. Autres mesures de performances lasers

Cette dernière partie présente les résultats de mesures de performances lasers obtenues sur nos échantillons. Les conditions expérimentales sont identiques à celles présentées pour les mesures précédentes. La seule différence réside dans la fréquence des impulsions : les diodes lasers émettent à 5 Hz. Ces mesures nous ont été nécessaires puisque les résultats ont été utilisés pour les mesures de la surface d'onde de nos échantillons en fonction de la température. Afin de ne pas alourdir cette annexe, nous ne présenterons que les courbes des énergies en sortie de cavité en fonction de l'énergie absorbée pour une gamme de température allant de la température de l'azote à la température ambiante.

	Yb :Y_2O_3 dopé 10 at. %			**Yb :Sc_2O_3 dopé 10 at. %**			**Yb :Lu_2O_3 dopé 10 at. %**		
	Epaisseur 2 mm			**Epaisseur 1 mm**			**Epaisseur 1 mm**		
Température	**Coupleur de sortie**	**Efficacité laser**	**Energie Seuil**	**Coupleur de sortie**	**Efficacité laser**	**Energie Seuil**	**Coupleur de sortie**	**Efficacité laser**	**Energie Seuil**
77K	70 %	30 %	5 mJ	95 %	13 %	300 mJ	95 %	25 %	75 mJ
130K	70 %	26 %	35 mJ	95 %	12 %	510 mJ	95 %	19 %	65 mJ
200K	70 %	22 %	180 mJ	95 %			95 %	16 %	140 mJ
295K	95 %	15 %	110 mJ	95 %			95 %	11 %	400 mJ

	Yb :Y_2O_3 dopé 10 at. %		
	Epaisseur 1 mm		
Température	**Coupleur de sortie**	**Efficacité laser**	**Energie Seuil**
77K	70 %	20 %	85 mJ
130K	70 %	19 %	90 mJ
200K	70 %	13 %	80 mJ
295K	95 %	7 %	100 mJ

Tableau D - 5 : Tableau récapitulatif des pentes d'efficacités lasers et des énergies seuil obtenues sur des céramiques Yb :Y_2O_3, épaisseurs 2 et 1 mm, Yb :Sc_2O_3, épaisseur 1 mm, et Yb :Lu_2O_3, épaisseur 1 mm, dopées 10 at. % à basse température.