

MESURE DES PROPRIETES THERMOOPTIQUES DES SOLIDES DES TEMPERATURES CRYOGENIQUES AUX TRES HAUTES TEMPERATURES

**P. HERVE (1) ; L. FRANCOU (1) ; N. RAMBURE (1) ;
A. SADOU (1) ; D. RAMEL (1) ; J.L. BODNAR (2).**

(1) Laboratoire d'Energétique et d'Economie d'Energie. Université Paris X,
1, chemin Desvallières, 92410 Ville-d'Avray.

(2) UTAP – Laboratoire d'énergétique et optique. Université de Reims.
Campus du moulin de la housse BP1039, 51687 Reims cedex 2

RESUME :

La détermination des propriétés thermooptiques des solides, facteurs d'émission, de transmission, de réflexion et les indices optiques est délicate aux températures extrêmes. Aux basses températures, la difficulté principale provient des flux ambiants se réfléchissant sur les échantillons. Nous présentons la méthodologie de mesure ainsi que les résultats obtenus jusqu'à 40 K. Des résultats sur l'émission de revêtements de satellites dans la gamme de températures 40K – 300K et de longueurs d'onde 16 μ m – 100 μ m ont été obtenus jusqu'à 40 K. Pour les hautes températures, les difficultés proviennent surtout de la mise en température et de la mesure de cette température. Des résultats obtenus jusqu'à 2000°C sur des métaux réfractaires et des diélectrique sont présentés.

INTRODUCTION

I. Définitions et relations entre grandeurs thermooptiques

Les définitions des grandeurs thermooptiques sont les mêmes que celle des grandeurs optiques mais adaptées en domaine de longueur d'onde à l'émission de rayonnement de sources thermiques.

Les grandeurs directement observables sont les facteurs qui caractérisent les transferts énergétiques.

ρ_λ : facteur de réflexion monochromatique.

τ_λ : facteur de transmission monochromatique.

$\alpha_\lambda = \varepsilon_\lambda$: facteur d'absorption et facteur d'émission.

Avec :

$$\alpha + \rho + \tau = 1 \quad (1)$$

Ces grandeurs dépendent de la longueur d'onde, de la température et de l'angle de réflexion ou d'émission.

A partir de ces facteurs, on peut calculer l'indice complexe :

$$n(\lambda) = n_r(\lambda) - j\chi(\lambda) \quad (2)$$

La détermination la plus simple de χ est ainsi obtenue à partir du facteur de transmission d'une épaisseur x de matériau :

$$\tau_\lambda(x) = e^{-4\pi\chi x/\lambda} \quad (3)$$

La partie réelle de l'indice peut être obtenue à partir du facteur d'émission. Le facteur d'émission normal est :

$$\varepsilon_n = \frac{4n_r}{(n_r + 1)^2 + \chi^2} \quad (4)$$

Les formules donnant ε (ou ρ) en fonction de l'angle sont plus compliquées [1] et permettent, par inversion, d'obtenir $n_r(\lambda)$ et $\chi(\lambda)$.

A partir de spectres de n_r et χ , on peut, en utilisant les théories proposées par DRUDE déterminer la fréquence plasma et la fréquence de relaxation en fonction de la température.

L'indice complexe est en effet relié à la permittivité diélectrique $\varepsilon' - j\varepsilon''$ par la relation :

$$(n_r - j\chi)^2 = \varepsilon' - j\varepsilon'' \quad (5)$$

Avec :

$$\varepsilon'' = \frac{\omega_\tau \cdot \omega_p^2}{\omega(\omega^2 + \omega_\tau^2)} ; \varepsilon' = P - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \omega_\tau^2} \quad (6)$$

Où P est la polarisation, ω_τ la pulsation relaxation et ω_p la pulsation plasma.

A partir de ces 3 paramètres fondamentaux, on peut, au moins pour les métaux, retrouver le spectre d'émission ou d'absorption par la théorie de DRUDE. P. MASCLLET a, dans sa thèse, [2] analysé ces méthodes. On peut aussi, à partir de ces 3 paramètres, déterminer d'autres paramètres comme la conductivité électrique ou thermique. A partir de grandeurs observées, on peut donc relier les propriétés optiques aux propriétés thermiques ou électriques.

Nous allons maintenant étudier les moyens de mesurer les grandeurs observables en prenant pour exemples les cas extrêmes hautes températures et températures cryogéniques.

II. Moyens de mesure

Les méthodes de mesure peuvent schématiquement être divisées en 3 types distincts :

2.1. Mesures calorimétriques

Ces mesures ne donnent en général que des valeurs totales qui ne permettent pas de déduire l'indice optique. Ce sont des mesures utiles pour les bilans énergétiques, par exemple celui d'un panneau solaire.

Mesures par réflexion

Ce type de mesure est le plus utilisé par les opticiens, qui étudient presque toujours des matériaux dont la surface a un poli « optique ». Par ellipsométrie, on détermine ainsi avec précision, les indices, que le matériau soient opaques ou semi transparents.

Pour les matériaux rugueux, les mesures par réflexion permettent d'obtenir le facteur d'émission par intégration sur tout le demi espace [5]. Ces mesures bidirectionnelles sont difficiles à mettre en œuvre et la précision est faible. Il est plus simple d'effectuer des mesures par émission, du moins si l'énergie émise est suffisante et si le but recherché est la détermination de l'émission.

2.2. Mesure de l'émission de rayonnement

D'une façon générale, la luminance spectrale mesurée par une chaîne de mesure sur un échantillon de facteur d'émission ϵ_λ de température T, dans un environnement à la température T_e est :

$$L_{\lambda,T} = \epsilon_\lambda L_{\lambda,T}^\circ + \rho_\lambda L_{\lambda,T_e}^\circ \quad (7)$$

$$C_1 = 1.192 \cdot 10^{-16} \text{ W m}^2$$

$$C_2 = 14.380 \cdot 10^{-6} \text{ m }^\circ\text{C}$$

$$L_{\lambda,T}^\circ = C_1 \lambda^{-5} \frac{1}{e^{c_2/\lambda T} - 1} \quad (8)$$

En pratique, on étalonne la mesure sur un corps noir ($\epsilon = 1$) et on compare directement ou indirectement la luminance de l'échantillon à celle, $L_{\lambda,T}^\circ$ du corps noir de référence.

Dans le cas de très hautes températures, le rayonnement réfléchi est en général très faible et les difficultés principales seront la mise en température de l'échantillon et la mesure de cette température. Aux basses températures le terme dû à la réflexion du rayonnement ambiant peut être prépondérant et il faudra trouver une méthode permettant de calculer ou d'éliminer cette perturbation.

L'appareillage général que nous utilisons est schématisé sur la figure 1.

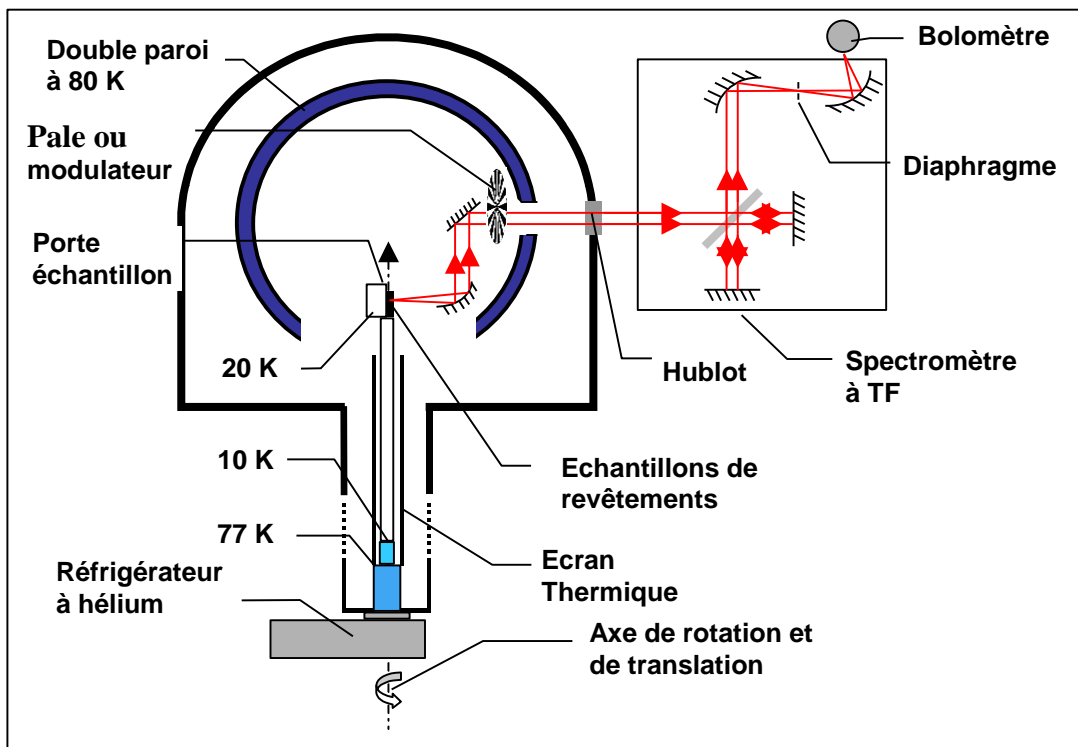


Fig. 1 : Schéma général de la chaîne de mesure.

La chaîne de mesure est essentiellement composée d'un porte échantillon chauffé jusqu'à 2500 K ou refroidi jusqu'à 10 K. La rotation et l'élévation de l'échantillon sont effectués avec des platines motorisées. L'échantillon est placé dans une enceinte où le vide secondaire est de

10^{-7} mm Hg. Le faisceau de mesure est polarisé, puis analysé par un spectromètre à transformée de Fourier. Ce système de base permet des variantes suivant les domaines de températures.

III. Etudes des très hautes températures

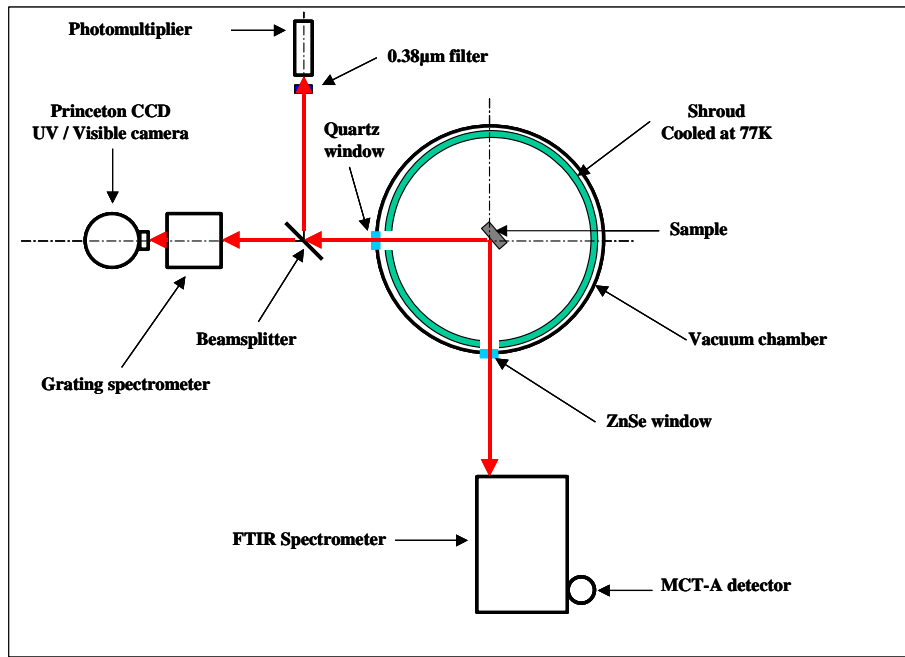


Fig. 2 : Chaîne de mesure adaptée aux hautes températures.

Dans le cas des très hautes températures, l'échantillon est chauffé par bombardement électronique et les températures atteignent 2 500 K ou plus. L'enceinte intérieure, refroidie à l'azote liquide sert de piège froid et permet d'obtenir, malgré le dégazage, le vide secondaire (10^{-6} mm Hg) nécessaire au bombardement électronique.

Les mesures optiques sont au nombre de 3 :

- * Faisceau 1 analysé par le spectromètre à TF
Domaine de mesure : $0.4\mu m < \lambda < 1000\mu m$
- * Faisceau 2 analysé par un spectromètre à réseau
Domaine de mesure : $0.2\mu m < \lambda < 1.1\mu m$
- * Faisceau 3 : mesure de la température par comptage de photons dans l'ultraviolet ($\lambda = 0,38 \mu m$).

Le point délicat est la mesure de la température de l'échantillon. Nous utilisons une méthode originale [6] en faisant une mesure de luminance à la plus courte longueur d'onde possible afin de minimiser l'influence du facteur d'émission. La précision est de l'ordre de 10 K autour de 1 500 K. En mesurant la polarisation du rayonnement émis, si le matériau est lisse, on peut atteindre une précision meilleure que 5K. Ceci induit des précisions sur l'émissivité qui s'améliorent lorsque la longueur d'onde augmente.

Les figures 3 et 4 montrent les résultats obtenus sur de l'alumine frittée. On remarquera la bande d'absorption à $\lambda = 10 \mu m$. L'alumine frittée, connue pour avoir une émissivité proche

de l'unité, simule ici les matériaux complexes utilisés pour les boucliers de rentrée d'objets spatiaux.

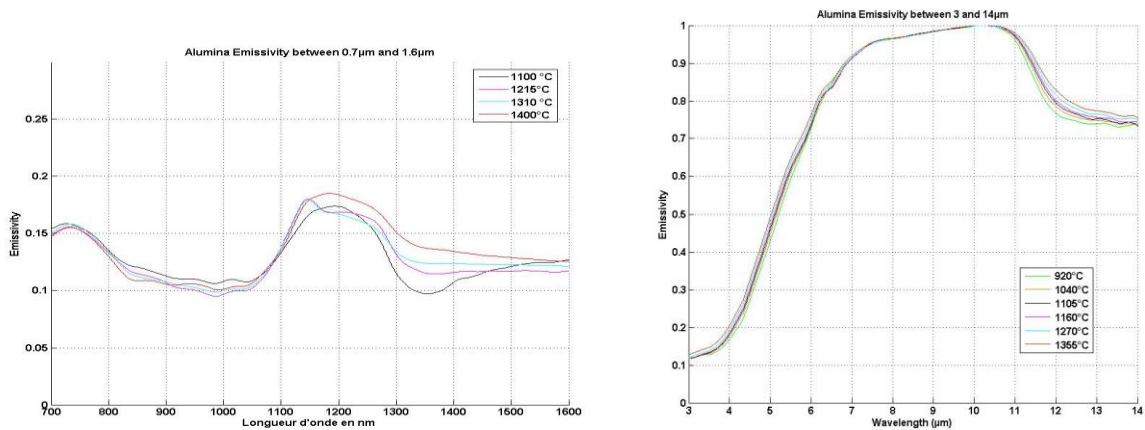


Fig. 3 – 4 – Emissivité de l'alumine entre 0.7 et 14 µm

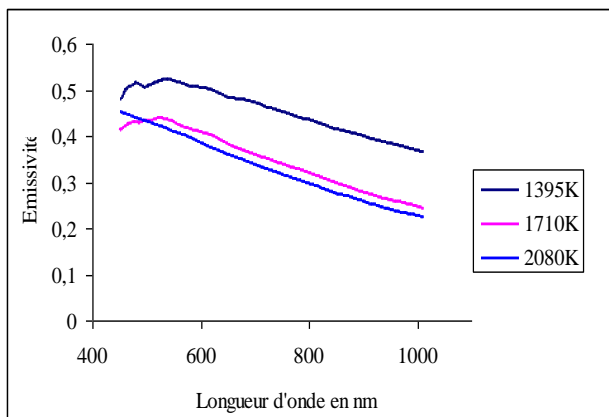


Fig. 5 : émissivité du tantale

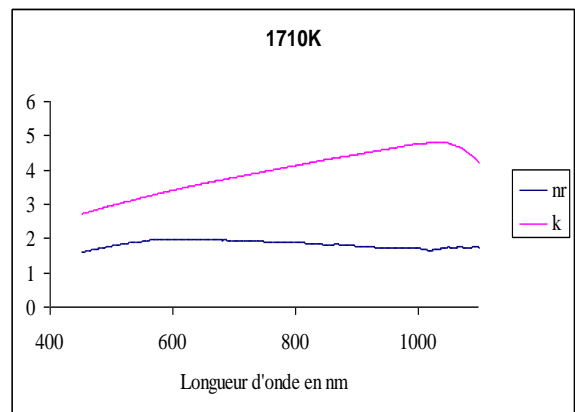


Fig. 6 : indice complexe du tantale à 2080K

La figure 5 montre les résultats d'indice complexe du tantale déterminés à partir de mesures de luminances angulaires en lumière polarisée. Pour les applications, l'émissivité est ensuite calculée à partir de la relation (4).

IV – Etudes aux températures cryogéniques

Aux basses températures, la difficulté essentielle provient de la réflexion du rayonnement ambiant sur l'échantillon. Dans le cas où l'échantillon est lisse et opaque, il est plus simple de mesurer le facteur de réflexion spéculaire en fonction de l'angle et d'en déduire l'indice complexe.

Par contre, dans le cas des matériaux rugueux, si l'on souhaite travailler en réflexion, il faut effectuer des mesures bidirectionnelles dont l'intégration donnera, avec une forte imprécision, le facteur d'absorption. Dans le cas des matériaux semi transparents, ce qui est le cas général des diélectriques aux grandes longueurs d'onde ($\lambda > 100 \mu\text{m}$), il n'est alors pas possible de calculer le facteur d'émission, l'indice, etc...

Nous préférons généralement utiliser directement l'émission et nous mettons en œuvre le montage représenté sur la figure 6. Les flux étant très faibles, nous utilisons comme détecteur un bolomètre refroidi à l'hélium liquide dont la détectivité spécifique, D^* , est meilleure que 10^{12} (le signal à détecter est de l'ordre de 10^{-10} W).

Pour éliminer le rayonnement ambiant nous utilisons des mesures différentielles en comparant l'émission de l'échantillon et celle d'un corps noir aux deux mêmes températures T_1 et T_2 .

A partir de 4 mesures d'émittance nous obtenons en première approximation le facteur d'émission.

$$\varepsilon = \frac{M(T_1) - M(T_2)}{M^0(T_1) - M^0(T_2)} \quad (9)$$

L'élimination des termes dus au rayonnement ambiant suppose que la réflectivité, ou le facteur d'émission monochromatique, ne varie pas entre les deux températures T_1 et T_2 .

Dans le cas des mesures que nous avons effectuées pour l'ESA, sur des revêtements destinés à refroidir par rayonnement dans l'espace les miroirs des télescopes des satellites Planck et Herschell¹, cette propriété était vérifiée aux basses températures. T_1 était à 15K et T_2 variable.

La figure (7) présente les résultats obtenus qui ont permis de choisir, parmi plusieurs, le revêtement qui sera utilisé. Dans ce cas, c'est l'émissivité totale dans la bande spectrale 1 μ m-1000 μ m qui intéressait l'ESA. La précision est de l'ordre de +/-4 % à 50 K. Des mesures monochromatiques ont déjà été présentées [7].

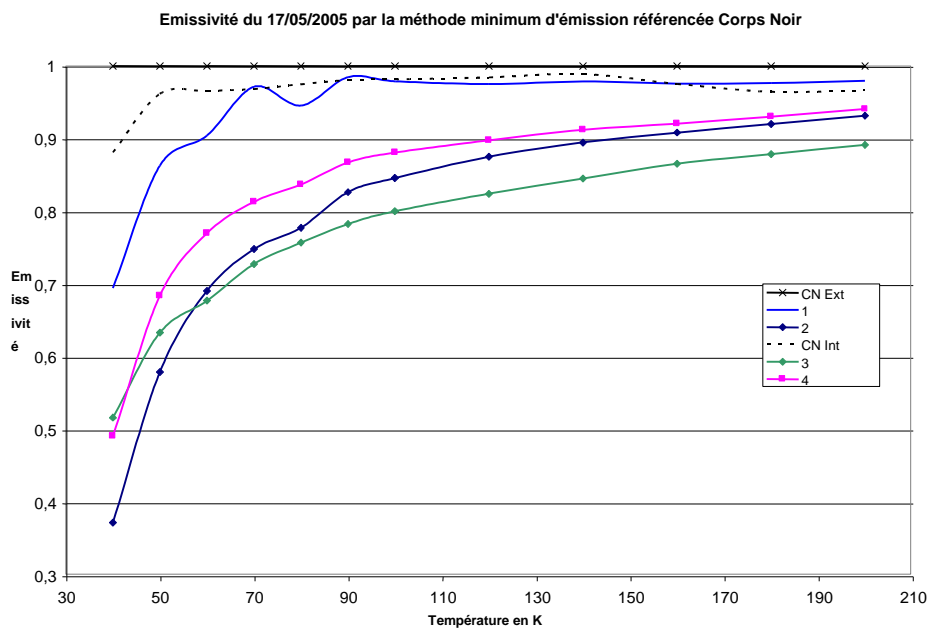


Fig. 7 : Emissivité totale en fonction de la température

D'une façon plus générale, si la réflectivité monochromatique varie avec la température, la formule (9) ne peut être appliquée et nous appliquons alors une formule :

¹ Ces satellites seront lancés en 2007 par l'ESA. PLANCK observera le fond du ciel à 27 K pour observer la naissance des galaxies il y a 14 milliards d'années. HERSCHELL est destiné à l'observation dans l'infrarouge.

$$\varepsilon_2 = \left(\frac{T_1}{T_2}\right)^4 \varepsilon_1 + \left(1 - \left(\frac{T_1}{T_2}\right)^4\right) \frac{M_{éch}(T_2) - M_{éch}(T_1)}{M^0(T_2) - M^0(T_1)} \quad (9)$$

Pour trouver $\varepsilon(T_1)$ il faut donc avoir $\varepsilon(T_2)$. Avec une méthode itérative sur un ensemble de mesures à $T_1, T_2, T_3, T_4, \dots, T_n$, on obtient sans erreur de méthode l'émissivité à ces températures.

Nous poursuivons actuellement ces études pour effectuer des mesures spectrales dans le domaine 10 – 1000 μm aux très basses températures.

PERSPECTIVES ET CONCLUSION

Différentes voies semblent prometteuses : La conjugaison de méthodes par réflexion et par émission doit permettre d'explorer un très large domaine en températures et en longueurs d'onde. L'extension de la gamme en température permet de dégager des lois fondamentales à partir des paramètres de base (fréquence de relaxation, etc...) sur les facteurs émission-réflexion-transmission qui ont des applications industrielles. L'extension du domaine de longueurs d'onde, à la fois vers l'infrarouge lointain, mais surtout vers l'ultraviolet, permettra d'appliquer les relations de causalité de KRAMERS-FRÖNIG, qui relie les deux composantes de l'indice complexe et, ainsi, de déterminer les valeurs de cet indice en dehors même de la plage de mesure.

REFERENCES

1. P. HERVE : Mesure de l'émissivité. Techniques de l'ingénieur. R 2737. 09.2005.
2. P. MASCLLET : Etude de l'émission de rayonnement thermique des solides. Thèse d'état. Paris VI. Mai 1993.
3. R.M. AZZAM ; N.M. BASHARA : Ellipsometry and polarized light. North Holland publishing company. Amsterdam, 1977
4. S. MATTEI ; P. MASCLLET ; P. HERVE : Study of complex refractive index of gold and copper using emissivity measurements. Infrared Phys. Vol. 29, n° 6, : 1989.
5. . L. FRANCOU ; P. HERVE : An FTIR based instrument for measuring infrared diffuse reflectance. Quantitative Infrared Thermography 4 (QIRT 98). Eurotherm seminar n° 60. Lodz. Pologne, Sep. 98.
6. P. HERVE : Procédé de pyrométrie dans l'ultraviolet pour mesurer sans contact et à distance la température d'un corps. Brevet, Mars 1988.
7. L.FRANCOU, A.SADOU, D.RAMEL, J-C TEJEDA, P.HERVE, Mesure directe de l'émissivité à basse temperature CMOI 2003
8. P.Delouard, U.Krabenbühl, G. Peikert, Materials characterisation at cryogenic temperatures for the planck telescope, Présentation ESA