

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique



Université El-Hadj Lakhdar - BATNA 1

Faculté des Sciences de la Matière

Département de Physique



THÈSE

En vue de l'obtention du
Diplôme de Doctorat

Présenté par :

Azoui Hanane

Thème :

**Modélisation des processus de croissance cristalline des
fibres préformées**

Spécialité : Physique des rayonnements, Option : Laser-Plasma.

Soutenue le : 08/07/2018.

Devant le jury :

Président :	Sid Abdelaziz	Prof.	Université Batna1.
Rapporteur :	Bahloul Derradji	Prof.	Université Batna1.
Examineurs :	Brima Abdelhafid	Prof.	Université Biskra.
	Djouimaa Siham	Prof.	Université Batna1.
	Benmachiche Abdelmoumene Hakim	MCA.	Université Biskra.
	Guebous Lakhdar	D.R. Habilitation	CRNA- Alger.
Invité :	Bougoul Saadi	Prof.	Université Batna1.

Remerciements

Avant tout, je commence par remercier ALLAH NOTRE DIEU de m'avoir donné la santé, la volonté et la patience durant toutes mes études, afin d'accomplir cette thèse de doctorat.

*J'exprime ma profonde gratitude a mon directeur de thèse le Professeur **Bahloul Derradji**, du département de physique, Université Batna 1, pour l'encadrement, l'aide, et ses précieux conseils. Je tiens à saluer la confiance dont il a fait preuve, mais également ses encouragements jusqu'au terme de ce travail.*

*J'exprime mes sincères remerciements au Dr **Sid Abdelaziz**, Professeur, du département de physique, Université de Batna1, qui est accepté de présider le jury de la soutenance.*

*Je remercie également Dr **Guebous Lakhdar**, D.R Habilité au CRNA- Alger pour sa participation à l'appréciation du travail réalisé et la peine qu'il a pris pour assister à la soutenance.*

*Mes sincères remerciements vont aussi au Professeur **Brima Abdelhafid** et au Dr **Benmachiche Abdelmoumene Hakim**, Maitre de conférences A, au département de mécanique de l'Université de Biskra, pour leur aide, leurs conseils, d'avoir accepté de juger ce travail de thèse.*

*Je m'adresse aussi mes très sincères remerciements au Dr **Djouimaa Siham** et au Dr **Bougoul Saadi**, Professeurs, du département de physique, Université de Batna1, d'avoir accepté d'être examinateurs à mon jury de thèse.*

*Tous les travaux de simulation ont été réalisés au sein du laboratoire de recherche Physique des rayonnements et leur interaction avec la matière (**PRIMALAB**) à l'université Batna1. Je remercie profondément une seconde fois le directeur du laboratoire PRIMALAB le professeur **Sid Abdelaziz** de son soutien pour la mise en service de la station de calcul sans laquelle les travaux de simulation n'auront pas pu être possibles.*

*Un grand merci également au Dr **Laidoune Abdellah** Maître de conférences B du département de physique, Université de Batna1, pour son soutien, son encouragement et pour les discussions avec lui sans lesquels ce travail n'aurait pas pu être réalisé.*

*Je n'oublie pas de remercier également Dr **Nouara Soltani**, Maître de conférences B, du département de génie mécanique, Université de Batna2, qui m'a beaucoup aidé dans le cadre de la réalisation de ce travail, qui a été à mes côtés et m'a offert ses conseils, son soutien et sa gentillesse.*

Je m'adresse aussi ma profonde reconnaissance à :

***Mon mari Abdelkader Nouasria**, pour son perpétuel soutien, ses encouragements, sa patience jusqu'à la dernière minute de la réalisation de ma thèse.*

*Merci enfin à **mes chères parents** d'être toujours là pour moi, **mes chères sœurs et frères** chacun par son nom, pour leur soutien moral et leurs encouragements.*

*Le meilleur pour la fin, merci à mes enfants : **Mohamed Abderrahman, Aridj Hibat Errahman** et **Ahmed Abderrahim**, un sourire de vous deux et ma vie prend un sens.*

AZOU Hanane



Table des matières

Remerciement	
Nomenclatureur	
Introduction générale.....	1
Chapitre. I	
Généralités	
I.1- Introduction.....	4
I.2- Le saphir.....	4
I.3- Applications du saphir.....	6
I.4- Propriétés du saphir.....	7
I.4-1- Propriétés physiques et thermiques.....	7
I.4-2- Propriété optique.....	7
I.4-3- Propriété cristallographique.....	9
I.5- Le saphir comme matrice hôte.....	12
I.5-1- Différents types de la matière première du saphir.....	13
I.6- Dopage du saphir	13
I.6-1- Les impuretés introduites dans le réseau cristallin du saphir	14
I.6-2- Dopage du saphir par les ions du titane (Ti^{3+}).....	15
I.6-2-1- Le Titane.....	15
I.6-2-1-1 Propriétés spectroscopiques du titane.....	15
I.6-2-1-2- L'intérêt du titane pour la formation des milieux actifs.....	16
I.7- Le laser Titane Saphir (Ti^{3+} , Al_2O_3).....	18
I.7-1- Caractéristiques du laser titane saphir	19
I.7-2- Diagramme de phase d' $Al_2O_3-TiO_2$	20
I.8- Les fibres du saphir.....	21
I.8-1- Applications des fibres du saphir.....	21
I.8-2- Les lasers à fibre.....	22
I. 9- Méthodes de croissance du saphir.....	23
I.9-1- La germination.....	24
I.9-1-1- L'importance de la germination.....	24
I.9-1-2- Les types de germination.....	24
I.9-2- La croissance.....	25
I.9-2-1- Les méthodes à croissance rapide.....	25

I.9-2-2- Les méthodes à croissance lente.....	25
I.10- Les méthodes à croissance rapide.....	26
I.10-1- La méthode Verneuil.....	26
I.10-1-1- La découverte du premier cristal laser par la croissance Verneuil.....	26
I.10-1-2- Les projets et les applications de la méthode Verneuil.....	27
I.10-1-3- L'appareillage et le principe de la méthode Verneuil.....	30
I.10-1-4- Principe de la méthode de Verneuil.....	31
I.10-1-5- Les avantages.....	32
I.10-1-6- Les inconvénients.....	32
I.10-2- Technique de Bridgman.....	32
I.10-2-1- L'utilisation de La méthode Bridgman.....	34
I.10-3- La méthode de l'échangeur thermique (HEM).....	35
I.10-4- La technique LHPG.....	36
I.10-5- Méthode EFG (Edge Defined Film Fed Growth).....	38
I.10-5-1- Tirage de cristaux du saphir par la technique EFG.....	38
I.10-6- Méthode Stépanov.....	39

Chapitre. II

Méthodes de croissances étudiées : μ -PD et Cz

II.1- Historique.....	42
II.2- La méthode micro Pulling down (μ -PD).....	42
II.3- Illustration schématique et l'appareillage de la technique de μ P-D.....	42
II.4- Les principaux avantages de la technique μ -PD.....	44
II.5- Le principe de la méthode de micro-pulling down.....	45
II.6- Dispositif expérimental de la technique μ -PD.....	45
II.6-1- Le creuset.....	46
II.6-1-1- Le choix du creuset.....	46
II.6-1-2- Protection du creuset.....	47
II.6-2- L'After heater.....	48
II.6-3- Les capillaires utilisés dans le processus micro-pulling down	49
II.7- Opération de tirage du saphir par la technique de micro-pulling down.....	50
II.7-1-Etapes de tirage d'une fibre cristalline du saphir.....	50
II.7-2-Différentes phases intermédiaires au cours de la cristallogenèse du saphir.....	51
II.7-3-Etude de la qualité cristalline des cristaux saphir-titane.....	52

II.7-4-Conditions d'une croissance stationnaire.....	52
II.7-4-1- Conservation de la masse.....	53
II.7-4-2- Conservation de l'énergie.....	53
II.7-4-3- L'équilibre de la forme de ménisque (Stabilité du format).....	54
II.7-4-4- Effet de l'angle de croissance sur la hauteur de la zone fondue.....	55
II.7-5- Types de convection dans la zone fondue.....	57
II.7-6- Forme de l'interface de cristallisation.....	57
II.8- Les études théoriques et expérimentales qui ont été réalisés par la μ -PD.....	59
II.8- La méthode de Czochralski (Cz).....	63
II.8-1-Historique.....	63
II.8-2- Première expérience du tirage par la méthode de Czochralski.....	63
II.8-3- Principe de la méthode Czochralski.....	64
II.8-4- Les avantages et les inconvénients de cette méthode.....	66
II.8-5- L'utilisation de la méthode de Czochralski.....	67
II.8-6- Les monocristaux tirés par la méthode de Czochralski.....	67
II.9- Croissance cristalline du saphir par la méthode Czochralski (Cz).....	68
II.9-1- Les différentes étapes de tirage du saphir par la méthode Czochralski.....	69
II.9-1-1- Chauffage du bain.....	71
II.9-1-2- L'isolation thermique.....	71
II.9-1-3- Contrôle des convections (libre et forcée) au sein du creuset Cz	71
II.9-1-3-1-Vitesse de rotation du cristal (Convection forcée).....	71
II.10- Quelques études numériques et expérimentales réalisés par la méthode de Czochralski.....	72
Conclusion.....	75

Chapitre. III

Simulation de la technique de Czochralski

III.1- Système de croissance de Czochralski.....	77
III.2- Les hypothèses simplificatrices.....	78
III.3- Equations gouvernantes.....	78
III.4- Effet du maillage.....	80
III.4-1- Le maillage du domaine d'étude.....	82
III.5- Les conditions aux limites.....	83
III.6- Résultats et discussions.....	86

III.6-1- Etude de la convection libre dans le creuset	86
III.6-1-1- Le profil de la température axiale	87
III.6-1-2- Présentation du profil de la température radiale.....	87
III.6-1-3- Profils des vitesses	88
III.6-1-4- Profil de la vitesse radiale	88
III.6-1-5- Profil de la vitesse axiale.....	89
III.6-1-6- Profil de la vitesse tangentielle.....	89
III.6-1-7- Profil du module de la vitesse.....	90
III.6-2- Contours de l'évolution temporelle de la température dans le creuset Cz.....	91
III.6-2-1- Contours et isothermes de température (cas stationnaire).....	94
III.6-3- Contours de la vitesse.....	95
III.7- Analyse des fluctuations de la température.....	96
III.8- La convection forcée et convection mixte.....	99
III.8-1- La vitesse de tirage du cristal (la composante axiale de la vitesse)	100
III.8-2- Effet de la rotation du cristal sur l'écoulement.....	100
III.8-3- Représentation des contours des vitesses dans le domaine d'étude.....	104
III.8-3-1- Contours des vitesses radiales.....	104
III.8-3-2- Contours des vitesses axiales.....	105
III.8-3-3- Contours des vitesses tangentielles.....	106
III.8-3-4- Contours du module de vitesse.....	107
III.9- Contours horizontaux de la température radiale.....	107
III.9-1- Cas instationnaire.....	107
III.9-2- Cas stationnaire.....	109
III.9-3- Profil radial de la température.....	111
III.10- La vitesse de rotation optimale.....	112
III.10-1- Effet du nombre de Rayleigh sur la vitesse de rotation optimale.....	114
III.10-1-1- La forme de l'interface L/S pour un chauffage de 2353 K	114
III.10-1-2- La forme de l'interface L/S pour un chauffage 2363 K.....	114
III.10-1-3- La forme de l'interface L/S pour un chauffage 2383K.....	116
III.10-1-4- La forme de l'interface L/S pour un chauffage 2393K.....	117
III.11- Instabilités thermiques.....	118
III.11-1- Analyse des fluctuations de la température.....	119
III.11-1-1- Variation temporelle de la température.....	119

III.11-1-2- Les fluctuations de la température.....	121
Conclusion.....	123

Chapitre. IV

Fibres préformées tirées par la Technique de micro-pulling down

IV.1-Introduction.....	126
IV.2- Représentation du domaine de micro pulling down (μ -PD).....	126
IV.3-Formulation mathématique.....	129
IV.3-1-Le modèle obtenu en coordonnées cylindriques.....	130
IV.3-2-Normalisation des équations.....	130
IV.3-3-Modèle adimensionnel.....	132
IV.4-Le maillage.....	132
IV.5- Les conditions aux l.....	133
IV.5-1- La forme générale des conditions aux limites.....	135
VI.6-L'organigramme.....	137
IV.7-Résultats et Discussions.....	141
IV.7-1- Effet de la vitesse de tirage sur la distribution des dopants.....	142
IV.7-1- 1-La distribution des dopants dans la zone fondue.....	142
IV.7-1-2-La distribution axiale des dopants dans la fibre tirée.....	143
IV.7-1-3-Étude de la qualité cristalline des fibres du saphir.....	144
IV.7-2-La distribution radiale des dopant dans le centre de la fibre.....	146
IV.7-3-Etude de la ségrégation de Ti^{3+} en fonction de la vitesse de tirage	147
IV.7-4-Etude de la forme de l'interface liquide-solide.....	148
IV.8-Fibre préformées de section carrée.....	149
IV.8-1-Le maillage	149
IV.8-2-Les conditions aux limites	151
IV.9-Résultats et Discussion	153
IV.9-1-Le transfert de chaleur dans le domaine de croissance.....	153
IV.9-2-La forme de l'interface liquide-solide	155
Conclusion	158
Conclusion générale	159
Références.....	161

Nomenclature

Symboles Latins

Propriétés	Signification	Unité (S.I)
C_{p_m}	Chaleur spécifique du liquide à pression constante.	$J. kg^{-1} .K^{-1}$
C_{p_c}	Chaleur spécifique du solide à pression constante.	$J. kg^{-1} .K^{-1}$
C	Concentration	atome%
C_0	Concentration initiale	atome%
D	Diamètre	m
D_m	Diffusivité massique	(m^2 /s)
g	Accélération de la pesanteur	$m.s^{-2}$
h	Coefficient de transfert de chaleur par convection	$W.m^{-2} . K^{-1}$
H	Hauteur	m
K_m	Conductivité thermique du liquide	$W.m^{-1} . K^{-1}$
K_c	Conductivité thermique du solide	$W.m^{-1} . K^{-1}$
L	Longueur	m
P	Pression	Pa
r, θ, z	Coordonnées cylindriques	
R	Rayon	m
t	Temps	s
T	Température	K
T_a	Température ambiante	K
S	Terme source	Sans dimension
u_r, u_θ, u_z	Vitesse : radiale, azimutale, axiale respectivement	$m.s^{-1}$
v	Vitesse axiale	$m.s^{-1}$
V	Volume	m^3
w	Vitesse azimutale	rad/s

Symboles grecs

α_m	Diffusivité thermique du liquide	$m^2.s^{-1}$
β_T	Coefficient d'expansion thermique à pression constante	K^{-1}
γ	Coefficient de tension superficielle	$N.m.kg^{-1}$
μ_m	Viscosité dynamique	$kg .m^{-1} .s^{-1}$
ν	Viscosité cinématique	$m^2.s^{-1}$
ρ_m	Masse volumique du liquide	$kg. m^{-3}$

ρ_c	Masse volumique du solide	kg. m ⁻³
ϕ	Variable intervenant dans l'équation de transport	
ϕ_0	Angle de croissance	
ω	Vitesse de rotation	tr.min ⁻¹
ΔH	Chaleur latente	
ΔT	Différence de température	K

Indices

a	ambient
c	chaud
d	(Die), bas du creuset
cri	cristal
cru	creuset
f	fusion, froid
m	liquide (<i>melt</i>)
min	minimum
max	maximum
opt	optimale
0	Paramètre de référence
s	solide, cristal
tir	tirage

Nombres Adimensionnels

A	Facteur de forme	H/D
Bi	Nombre de Biot	$h R_d / k_m$
Gr	Nombre de Grashof	$g \beta_T \Delta T H^3 / \nu^2$
Ma	Nombre de Marangoni	$\partial \gamma / \partial T (R_{cru} - R_s) \Delta T / (\mu_m \alpha_m)$
Pe _m	Nombre de Peclect pour le liquide	$v_m R_d / \alpha_m$
Pe _c	Nombre de Peclect pour le solide.	$v_c R_d / \alpha_m$
Pr	Nombre de Prandtl	ν / α_m
Ra	Nombre de Rayleigh	$g \beta_T \Delta T H^3 / \alpha_m \nu$
Re	Nombre de Reynolds	$\omega_{cri} R_{cri}^2 / \nu$
Ri	Nombre de Richardson	Ra / Re^2
Sc	Nombre de Schmidt	ν / D_m

Introduction générale

La fabrication des systèmes et des sources lasers exige des monocristaux et des fibres de structures et de formats bien déterminés, avec une homogénéité des propriétés chimiques, optiques et électriques [1]. Le domaine des fibres cristallines est un domaine prometteur, il forme une des grandes bases pour la recherche de nouvelles techniques d'élaboration et de développement pour l'optoélectronique et les applications lasers [2]. Du fait de leurs caractéristiques remarquables, les fibres cristallines sont considérées comme des dispositifs spécifiques d'une grande importance et en particulier les fibres monocristallines qui sont des systèmes de haute technicité et de haut rendement. Elles présentent des caractéristiques optiques, chimiques et thermomécaniques indispensables pour diverses applications en physique des rayonnements [3]. Les fibres monocristallines occupent en effet un grand champ d'application dans divers domaines, nous citons surtout le domaine des lasers, de l'optoélectronique et de la micro optique également en chirurgie et en télécommunications. D'un autre côté les monocristaux sont toujours au centre d'enjeux économiques cruciaux dans les applications de haute technologie. Ils jouent un rôle crucial dans l'évolution et dans le développement des systèmes lasers et optiques.

La réalisation de la croissance cristalline des monocristaux et des fibres cristallines de façon efficace nécessite une compréhension de la dynamique des processus de tirage [4]. La qualité des cristaux et des fibres tirées est gouvernée par plusieurs facteurs qui doivent être prise en considération, la dynamique de tirage, l'écoulement du liquide, le transfert de chaleur et de masse, le type et l'effet de la convection, la hauteur de la zone fondue et la forme de l'interface liquide-solide etc.... Beaucoup de ces paramètres sont extrêmement difficiles à mesurer ou à visualiser expérimentalement en raison entre autre des températures très élevées. Donc la simulation numérique de processus de croissance nous offre la possibilité de calculer les paramètres qui ne sont pas accessible expérimentalement. Ceci constitue l'avantage des simulations en plus du faible coût par rapport au prix exorbitants des essais expérimentaux.

Notre étude numérique est basée sur un modèle tridimensionnel pour simuler le processus de la croissance cristalline des fibres préformées du saphir de section circulaire et carrée par les deux procédés : Czochralski et micro-Pulling Down.

La première méthode c'est la méthode de Czochralski, qui a prouvé sa performance pour tirer des cristaux de haute qualité mais avec des coûts relativement élevés. Le processus de Cz est l'un des processus les plus stables utilisés pour la croissance des monocristaux du saphir de bonne qualité optique. La deuxième technique est relativement nouvelle. C'est la technique de micro-pulling down (μ -PD) qui présente plusieurs avantages. Elle permet la croissance des fibres monocristallines préformées de très bonne qualité avec une bonne homogénéité chimique [5].

L'objectif de ce travail est l'optimisation de la croissance des fibres monocristallines préformées de saphir non dopé et dopé au titane. Il s'agit de cerner les paramètres pertinents jouant un rôle important sur les conditions de croissance et la qualité des cristaux tirés. Les simulations numériques dans les stations de calcul modernes avec les logiciels performants nous offrent une grande opportunité pour étudier de façon efficace le processus de croissance. Ceci constitue une aide importante aux expérimentateurs pour optimiser les conditions de croissance tout en réduisant le coût global des processus de croissance.

Ce manuscrit comporte quatre chapitres. Le premier chapitre commence par un rappel sur les propriétés du saphir non dopé et dopé au titane ainsi que sur les diverses applications optoélectroniques, industrielles et médicales de ce matériau. Ce chapitre se termine par une présentation des différentes méthodes de croissance cristallines les plus utilisées pour le tirage du saphir cristallin. Le deuxième chapitre est dédié aux deux méthodes modélisées dans ce travail et qui sont la technique de Czochralski et celle de micro-pulling down. Nous présentons dans ce chapitre tous les éléments importants pour comprendre le mécanisme de travail de ces techniques, ainsi que les avantages et les inconvénients de ces deux processus.

Les chapitres III et IV contiennent les modèles numériques, les équations qui gouvernent la croissance, la géométrie, le maillage ainsi que les résultats obtenus concernant respectivement la méthode de Cz et μ -PD. Nous présentons dans ces deux chapitres les résultats des simulations numériques de chaque technique de croissance avec une discussion. Nous terminons ce manuscrit par une conclusion générale dans laquelle nous résumons les résultats principaux de ce travail.

Chapitre I

Généralités

Dans ce chapitre nous présentons le matériau choisi dans cette étude qu'est le saphir. Ce matériau possède de bonnes propriétés physiques, thermiques, optiques et spectroscopiques qui sont citées dans ce chapitre ainsi que ses applications et ses utilisations surtout dans le domaine des lasers. Nous montrons aussi le dopage du saphir par différentes impuretés qui lui confère diverses couleurs, ou nous nous concentrons sur l'ion le plus important qu'est le titane. Pour ce qui nous concerne on donnera plus de détails sur les cristaux et les fibres du saphir non dopé et dopé au titane puisqu'il fait l'objet de notre travail.

Par ailleurs, les cristaux et les fibres monocristallines du saphir passent lors de leurs procédés de fabrication par le phénomène de la solidification, qui est une transition de phase au cours de laquelle ces fibres passent de l'état liquide à l'état solide. Cette transformation liquide-solide se fait en deux étapes qui sont la germination et la croissance. La croissance cristalline du saphir se réalise à l'aide de différentes techniques dont nous allons citer les plus importantes. En se concentre particulièrement sur les méthodes à croissance rapides les plus utilisées comme Verneuil, Bridgman, HEM, LHPG, EFG et Stépanov. Ainsi que la méthode de Czochralski et celle de la micro-Pulling Down qui sont fait l'objet de notre étude et que nous exposerons plus tard.

I.1-Introduction

Les fibres monocristallines sont des milieux cristallins, fins avec des différentes longueurs. Leur tirage se fait dans des directions bien déterminées [1]. Les fibres possèdent généralement des formes cylindriques avec des diamètres inférieurs ou égaux à quelques mm [1, 2]. Elles peuvent être cristallines ou monocristallines comme les fibres du saphir (Al_2O_3) et de YAG ; elles peuvent être amorphe comme les fibres de silice. Ces milieux (les fibres) interviennent dans beaucoup d'applications tels que celles d'optique et d'optoélectronique et de manière générale en photonique, télécommunication et en médecine. Elles sont utilisées en particulier dans les applications laser ainsi que dans le développement des systèmes lasers comme un milieu amplificateur efficace qui augmente le rendement en sortie de laser [3, 4].

A cause de sa combinaison entre les avantages des cristaux et des fibres. Les fibres cristallines vont s'imposer comme des nouveaux milieux lasers intégrés dans des systèmes répondant à de multiples applications. Parmi ces applications, nous citons l'usinage de cellules solaires, l'inspection et la réparation de circuits électroniques, l'inspection par laser de processus industriels et la télémétrie... Toutes ces applications ont comme point commun le besoin en sources de fortes puissances crête et moyenne dans le domaine des impulsions brèves (inférieures à quelques nanosecondes). Ce besoin est difficilement couvert aujourd'hui par les cristaux laser massifs [5]. Pour ces raisons les fibres cristallines sont les nouveaux milieux qui combinent des propriétés thermiques et optiques suprêmes avec la plus large gamme de laser.

I.2-Le saphir

Le mot saphir dérive du grec sappheiros qui signifie bleu. Ce terme est attribué à la pierre précieuse corindon de couleur bleue, rose vert, jaune et blanc avec un éclat vitreux. Les saphirs sont des cristaux d'oxyde d'aluminium Al_2O_3 contenant des impuretés qui leurs confèrent différents couleur [6]. Le saphir est incolore s'il est chimiquement pur. Le tableau ci-dessous montre quelques couleurs pour différent impuretés.

Tableau I.1 : Exemples des couleurs du saphir

Impuretés	Couleur	Image
Titane	Rose	
Fer	Blue	
Vanadium	Violet	
Chrome	Rose	

Le saphir est le matériau préféré pour des conceptions de systèmes et de composants à haut rendement, pour différentes applications. Lorsqu'il est dopé avec le titane ou le chrome, ce milieu est souvent utilisé pour des lasers infrarouges à forte capacité d'ajustage, et dans des systèmes d'amplification de lasers pour la production d'impulsions ultracourtes d'intensité très élevée. Ce matériau est donc

d'une grande importance technologique, il possède beaucoup d'applications que nous allons résumer dans la section suivante.

I.3- Applications du saphir

En raison de ses propriétés physicochimiques exceptionnelles. Le saphir est un matériau très important utilisé dans plusieurs applications, médicales, industrielles, militaires. Sa résistance mécanique et ses propriétés optiques sont exploitées pour la conception de dispositifs optiques et pour le développement de divers systèmes, en particulier les systèmes lasers. Grâce à sa température de fusion élevée, sa résistance chimique et son large domaine de transparence (0.24-4 μ m), le saphir est employé notamment dans les domaines de thermométrie (procédés à haute température et environnements hostiles) [7, 8].

Le saphir est utilisé comme matériau diélectrique isolants (à température ambiante) mais à des températures cryogéniques, celui-ci est un bon conducteur thermique [9, 47]. La transparence et le haut point de fusion du saphir (2050°C) font de lui un matériau intéressant pour des fenêtres dans l'infrarouge et l'ultra-violet [10]. Il peut aussi servir pour les IR dômes qui protègent les systèmes militaires de détection et de guidage. Le tableau suivant montre quelques exemples sur les applications du saphir.

Tableau I.2 : Quelques applications du saphir

Type d'application	Application
Militaire	protection des systèmes militaires de détection et de guidage (les IR dômes).
Médicale	Implantation dans le corps humain (il peut être utilisé comme prothèses implantées dans différentes parties du corps). Vertèbre saphir, les implants et les vis chirurgicales en saphir.
Industrielle	Thermométrie : les sondes
Ornement	Bijouterie (Pierre précieuses) : le saphir est présent en bijouterie car il a la possibilité d'obtenir de nombreuses couleurs.
Optique photonique	Laser à impulsion ultra courte et ultra intense.

I.4- Propriétés du saphir

I.4-1- Propriétés physiques et thermiques

L'amplification des impulsions ultracourtes, demande un milieu amplificateur très efficace qui possède des propriétés physiques et thermiques excellentes. Le saphir dopé titane est le plus pratique, et le plus utilisé pour ces applications [11]. Ce laser (lasers saphir dopé titane) permet d'obtenir des puissances de l'ordre du kW en continu et du GW en pulsé [1]. Dans le tableau ci-dessous, nous citons quelques propriétés physiques du saphir.

Tableau I.3 : Les propriétés physiques et thermiques du Saphir [1,12] :

Masse volumique de liquide ρ_m	3500 kg/m^3
Masse volumique de solide ρ_c	3960 kg/m^3
Chaleur spécifique du liquide Cp_m	765 $J/kg K$
Chaleur spécifique du solide Cp_c	1300 $J/kg K$
Conductivité thermique du liquide k_m	3.5 $W/m K$
Conductivité thermique du solide k_c	17.5 $W/m K$
Coefficient de dilatation thermique β_T	$1.8 \times 10^{-5} K^{-1}$
Viscosité dynamique μ_m	0.0475 $kg/m s$
Coefficient de ségrégation k	1
Chaleur de la fusion ΔH	$1.1 \times 10^6 J/kg$
Température de fusion T_m	2323 K
Diffusivité thermique α_m	$6.4 \times 10^{-7} m^2/s$
Viscosité cinématique ν	$1.36 \times 10^{-5} m^2/s$
Coefficient de tension superficielle thermique $\partial\gamma/\partial T$	$(-3.5) \times 10^{-5} N m^{-1}K^{-1}$
Coefficient de tension superficielle γ	0.3 N/m

I.4-2- Propriété optique

Tableau I.4 : Propriété optique du saphir [16] :

Gamme de transition	0.2 – 5.5 microns
Perte de réflexion	14 % at 1 microns(2 surfaces)
dn/dT	$286 \times 10^{-6} K$

dn/dT Représente la variation de l'indice de réfraction avec la température.

La figure suivante montre la variation de l'indice de réfraction du saphir en fonction de la longueur d'onde en microns. Ces valeurs sont observées à 24°C.

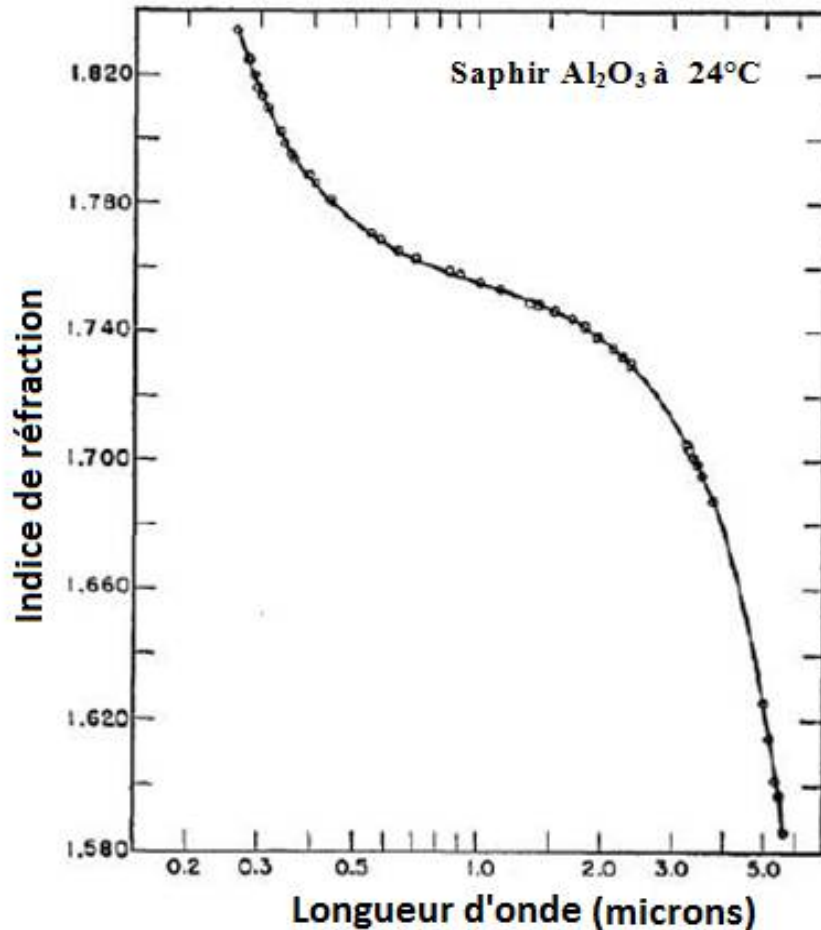


Figure I.1 : Valeurs observées de l'indice de réfraction du saphir à 24°C [113].

La figure ci-dessous montre le spectre de transmission du saphir ce qui montre les propriétés optiques excellentes de ce matériau sur toute la gamme proche ultra violet UV, visible V et infrarouge IR.

Du fait de sa température de fusion élevée (2050°C) et son large domaine de transparence (0,24 - 4 μm) (Figure I.2), les fibres de saphir sont bien adaptées pour divers applications (médicales, militaires, industrielles et optique photonique) qui nous présenterons dans les sections prochaines.

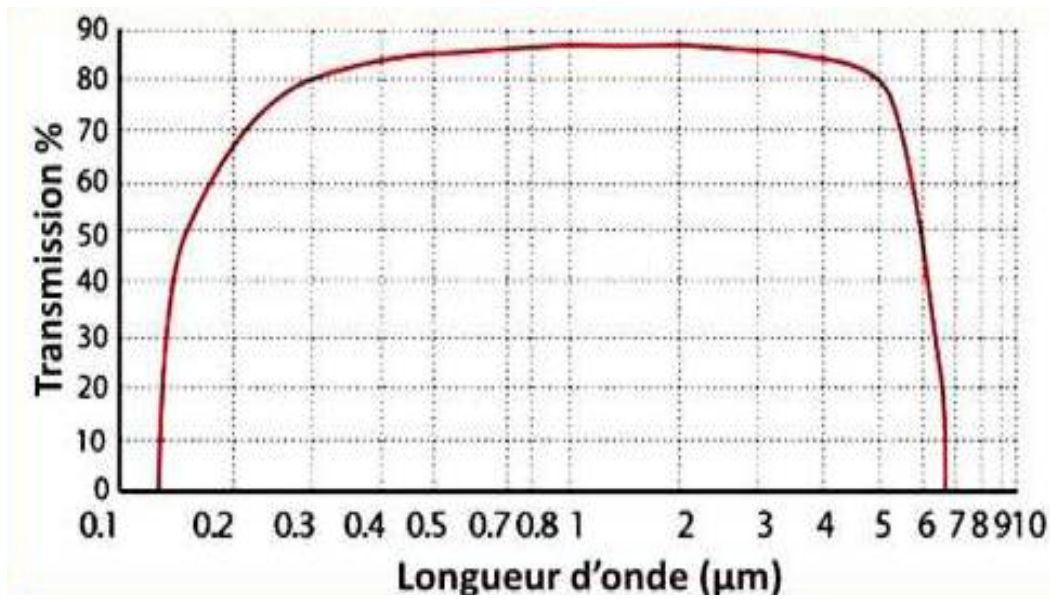


Figure I.2 : Spectre de transmission du saphir (épaisseur 0.8 mm) [13].

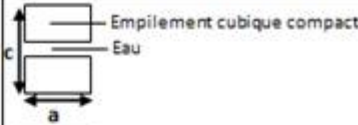




I.4-3- Propriété cristallographique

Le saphir cristallise dans différentes phases cristallines :

- L'alumine η .
- L'alumine γ .
- L'alumine δ .
- L'alumine θ .
- L'alumine α ($Al_2O_3 - \alpha$).

Le tableau ci-dessous résume les propriétés de symétrie de ces différentes phases ainsi que les réseaux des cations et anions.

Tableau I.5 : Différentes phases d'alumine et leurs formes cristallographiques [14].

Phase	Symétrie	Réseau des cations	Réseau des anions O
Boehmite	Orthorhombique $c \gg a$		 Empilement cubique compact Eau
$\gamma - Al_2O_3$	Speudo-cubique spinelle $c = a$	Répartition désordonnée des cations	 Empilement sensiblement cubique compact spinelle
$\delta - Al_2O_3$	Quadratique $a > c$	Répartition dans les sites tétraédriques et octaédriques	 Réseau cubique compact déformé dérivé du spinelle
$\theta - Al_2O_3$	Monoclinique $a > c$		
$\alpha - Al_2O_3$	Rhomboédrique	Répartition des cations dans les sites octaédriques	 Réseau hexagonal compact

Les fibres que nous allons modéliser sont tirées dans L'institut Lumière Matière (ILM) de l'université de Lyon 1-France. L'analyse par diffraction rayon X (RX) montre qu'elles cristallisent dans la phase $\alpha - Al_2O_3$. Le saphir $\alpha - Al_2O_3$ appartient au groupe d'espace R3c [15] cristallise dans une maille élémentaire hexagonale – rhomboédrique et possède la symétrie maximale du réseau dont les paramètres de maille sont présentés dans le tableau ci-dessous [16].

Tableau I.6 : Les paramètres de maille élémentaire hexagonale – rhomboédrique du saphir:

Formule chimique	Al_2O_3
Structure	hexagonal- rhomboédrique
paramètres de maille	$a = 4.765, c = 13,000$
Angle de croissance (θ_0)	17°

Le saphir est un matériau très simple qui a une formule chimique connue sous le nom d' Al_2O_3 . La structure cristallographique de ce matériau est appartient au système

trigonal avec une maille hexagonale rhomboédrique dont les paramètres de maille sont : $a= 4.76 \text{ \AA}$ et $c=13.00 \text{ \AA}$ [16].

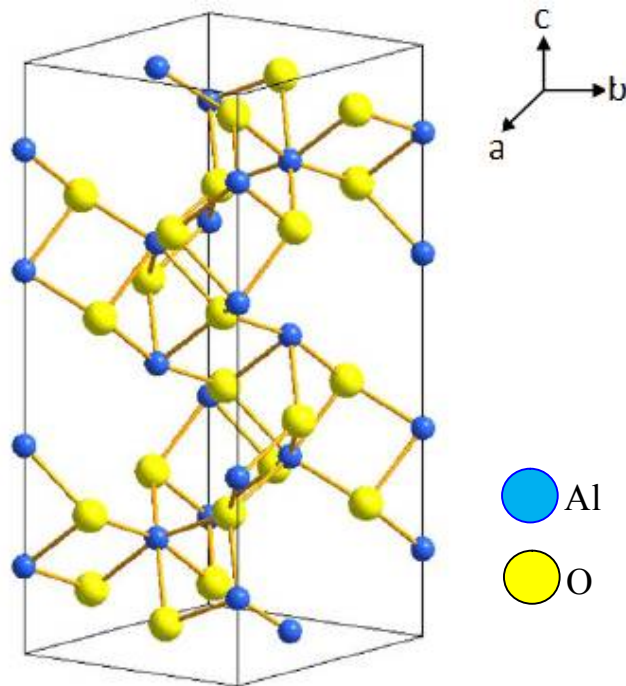


Figure I.3 : Structure et la maille élémentaire d' Al_2O_3 .

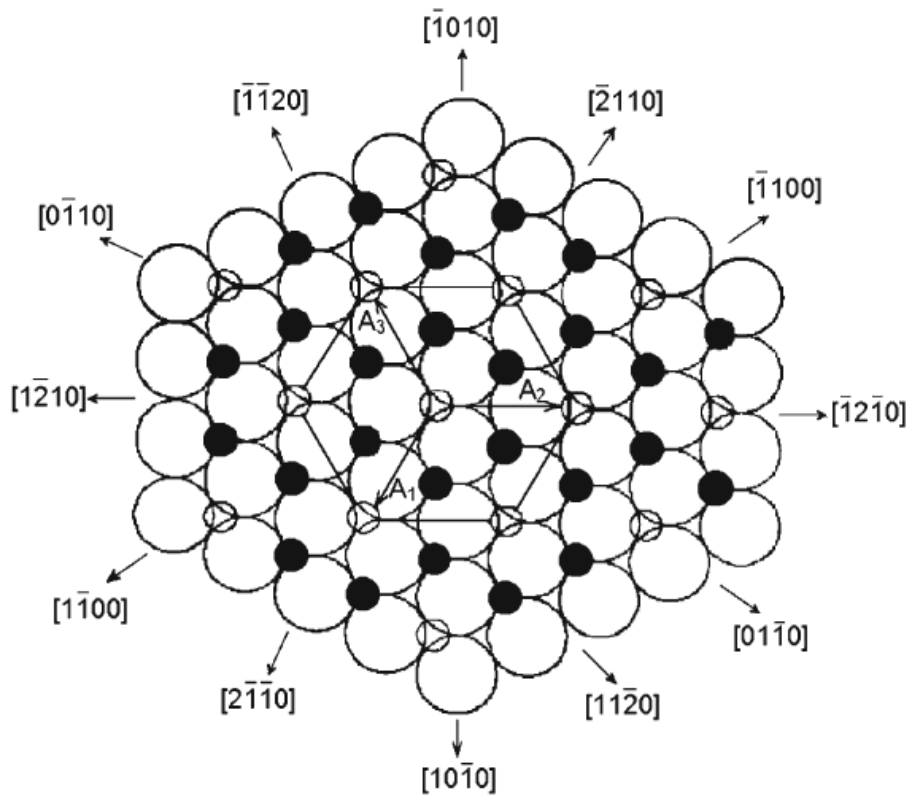


Figure I.4 : Schéma d'emballage des ions O_2 dans la cellule saphir [78].

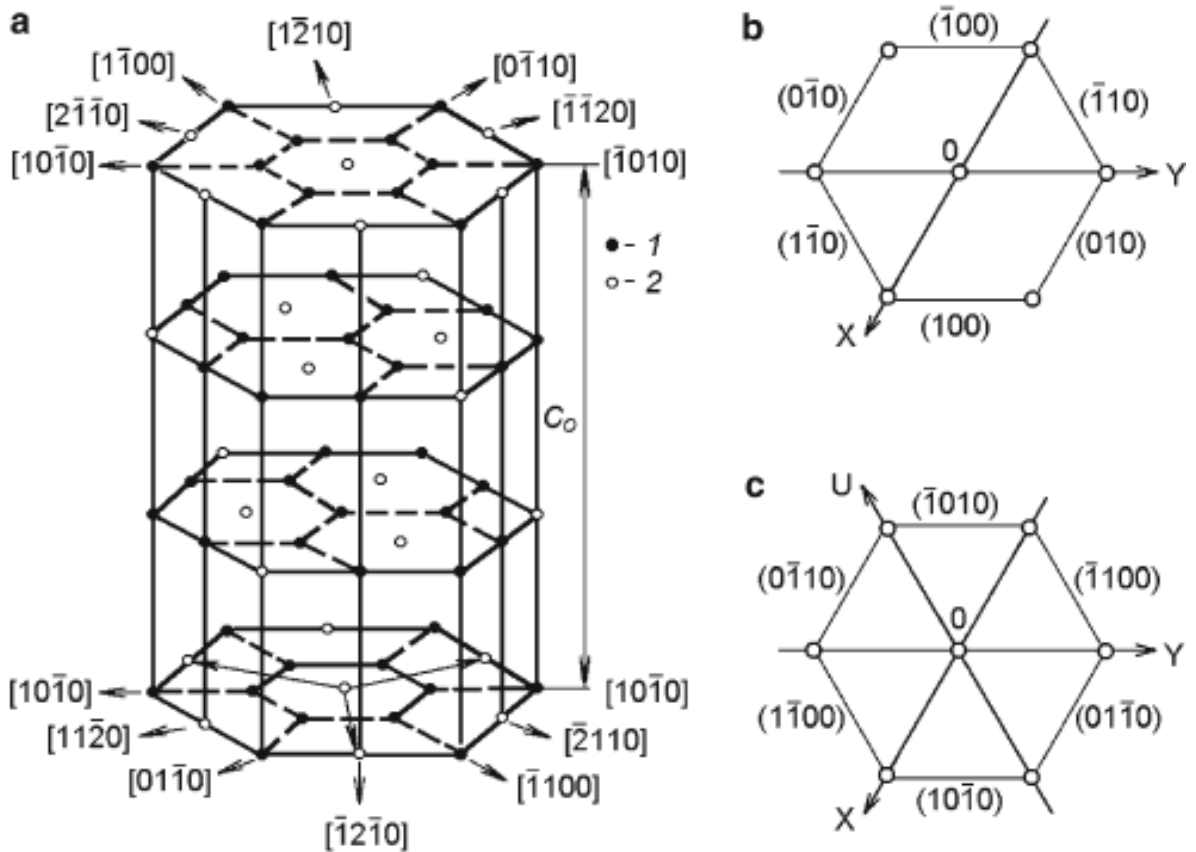


Figure I.5 : (a) Cellule hexagonale. (\bullet - 1) ions d'aluminium; (\circ - 2) creux octaédriques. Indexation des facettes des cellules hexagonales dans un système de coordonnées à trois axes (b) à quatre axes (c) [17].

I.5- Le saphir comme matrice hôte :

L'oxyde d'aluminium Al_2O_3 est un matériau souvent être employé pour des applications laser lorsqu'il est dopé avec le titane (Ti^{+3}) ou le chrome (Cr^{+3}). Les barreaux de rubis ($Al_2O_3:Cr^{+3}$) sont encore utilisés aujourd'hui pour fabriquer des lasers pour l'épilation. D'autre part les barreaux d' $Al_2O_3:Ti^{+3}$ connaissent actuellement plus de succès avec des systèmes très compacts pompés optiquement par d'autres sources laser du commerce *YAG:Nd*. Ces systèmes laser peuvent fonctionner soit en mode continu, soit en mode impulsif avec des impulsions de l'ordre de quelques femtosecondes, ce qui conduit à un grand nombre d'applications, nous citons les lasers femtosecondes dans la biologie, les lasers accordables pour l'environnement et même dans des domaines scientifiques (spectroscopiques).

Le saphir est présent également en bijouterie car il a la possibilité d'obtenir de nombreuses couleurs pour les pierres synthétiques [1,7].

I.5-1 -Différents type de la matière première du saphir



Figure I.6 : Matières premières d' Al_2O_3 : (a) poudre, (b) charge frittée, (c) cristal fissuré, (d) lingot polycristallin [7].

La matière première d' Al_2O_3 utilisée pour le tirage des fibres et des cristaux de saphir est divisée en quatre types, comme il est montré dans la figure ci-dessus :

- Saphir poudre.
- Saphir frites.
- Saphir sous forme des cristaux craqués.
- Saphir sous forme des lingots polycristallins.

I.6- Dopage du saphir

Le dopage de saphir peut changer ses propriétés, même sa couleur. Les dopants peuvent agir individuellement ou par interférence entre eux en formant des paires qui peuvent modifier l'intensité et la saturation de la coloration.

I.6-1- Les impuretés introduites dans le réseau cristallin du saphir

Généralement il y a deux classes d'impuretés qui peuvent introduire dans le réseau cristallin du saphir :

- Le Cr^{3+} qui ayant la même valence que Al^{3+} (isovalent)
- Le Mg^{2+} ou le Ti^{4+} avec une valence différente de celle de Al^{3+} .

Des ions de charge supérieure ou inférieure à la charge de l'aluminium peuvent se trouver dans le réseau cristallin du saphir. Ils sont des impuretés principales susceptibles d'être présentes dans le saphir, Nous citons l'hydrogène (H^{1+}), le fer (Fe^{2+} , Fe^{3+}), le silicium (Si^{4+}).

- ❖ Fe^{2+} a une charge en moins que Al^{3+} et il peut entrer dans le réseau cristallin du saphir. Dans ce cas le fer est un accepteur quand il n'est pas associé à un autre ion d'impureté, il ne donne pratiquement pas de coloration. [18].
- ❖ Si^{4+} a une charge supplémentaire que l'ion Al^{3+} et peut se substituer à l'Aluminium. Le silicium dans le saphir est un donneur [19].

Les ions avec un excès de charge positive (Ti^{4+} a une charge supplémentaire que l'ion Al^{3+} et peut se substituer à l'Aluminium), il doit abandonner un électron pour entrer dans le réseau du saphir. Dans ce cas ces ions sont des donneurs.

De la même façon, les ions avec une défiance de charge de -1 que Al^{3+} sont des accepteurs, ils doivent accepter un électron d'un autre ion dans le réseau.

- Ti^{4+} a une charge supplémentaire que l'ion Al^{3+} .

- Mg^{2+} a une charge en moins que l'ion Al^{3+} .

Comme ces deux ions (Ti^{4+} et Mg^{2+}) ont une charge de plus ou des moins (-1) et (+1) par rapport à

Al^{3+} , il va y avoir attraction entre ces deux ions et ils vont occuper des sites voisins afin d'avoir un équilibre de charge. Donc ils peuvent incorporer ensemble dans le réseau du saphir [20]. Les impuretés que nous avons déjà mentionné, incorporées dans le saphir occupent les sites octaédriques (chaque site est entouré par six atomes d'oxygène). Par contre le Si occupe un site tétraédrique (entouré par quatre atomes d'oxygènes).

I.6-2- Dopage du saphir par les ions du titane (Ti^{+3})

I.6-2-1- Le Titane

L'ion Ti^{+3} utilisé comme dopant dans la matrice du saphir est particulièrement important. L'ion titane est un ion trivalent ($3d^1Ti^{+3}$), il est actif dans les lasers accordables $Al_2O_3:Ti^{+3}$. Comme la structure électronique du Ti^{+3} présente une couche électronique complète plus un seul électron dans la couche $3d$, le diagramme d'énergie et les propriétés spectrales de cet ion sont montrés ci-dessous.

I.6-2-1-1- Propriétés spectroscopique du titane :

Tableau I.7 : Propriétés spectroscopique du titane [1].

le nombre atomique Z	22
Structure électronique	$1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 4s^2 3d^2$
Catégorie	Métal de transition
Masse volumique du titane ρ	4327 kg m^{-3}
Rayon métallique R	60.5 pm

La Figure I.7 résume le diagramme des niveaux d'énergies du titane incorporé dans la matrice du saphir. Ce qui montre que cet ion possède une structure spectroscopique d'un système laser à quatre niveaux avec une transition de pompage Δ et transitions laser Δ' .

Dans la maille Al_2O_3 , les ions Ti^{3+} se substituent en Al^{3+} et sont entourés par les oxygènes octaédriques. L'inconvénient du saphir-titane est la présence de deux états d'oxydation du titane (Ti^{3+} , Ti^{4+}), ce qui induit l'absorption et la formation de paires. Le rayon de Shannon du titane est ($R_{Ti} = 60.5 \text{ pm}$), celui de l'aluminium est ($R_{Al} = 53.3 \text{ pm}$). Souvent on est en face du problème de ségrégation difficile à surmonter. Une amélioration est obtenue en augmentant la vitesse de tirage. Le fait d'introduire du titane impose de trouver un compromis entre la qualité cristalline et l'homogénéité du dopant, et les performances des applications recherchées.

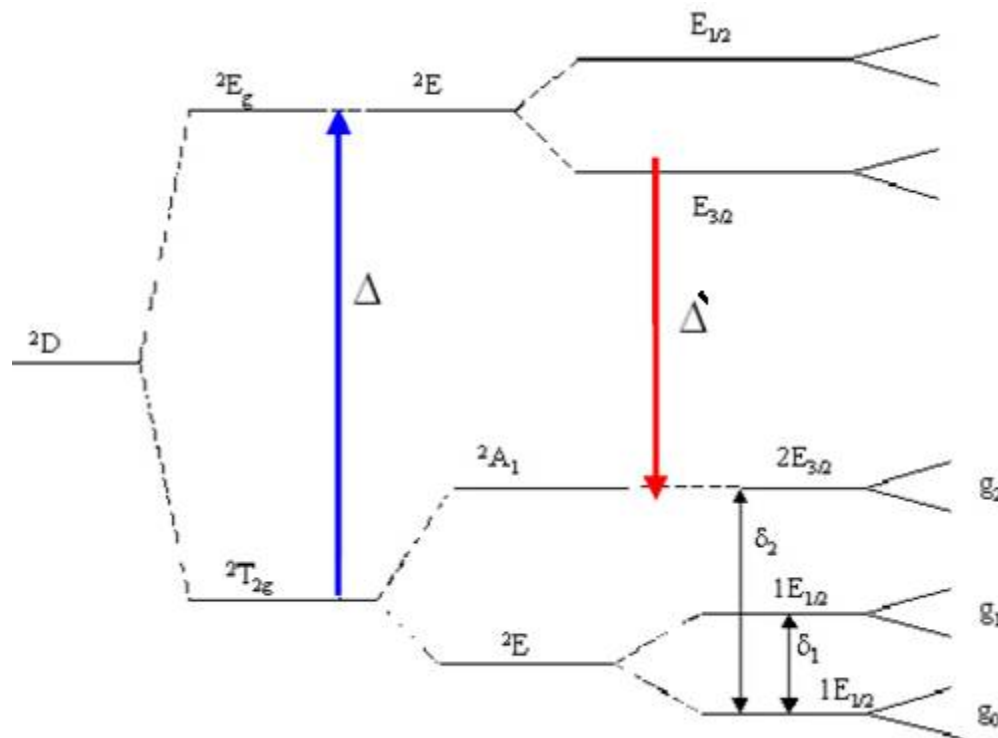


Figure I.7 : Diagramme des niveaux d'énergie de l'ion Ti^{3+} [1].

I.6-2-1-2- L'intérêt du titane pour la formation des milieux actifs

L'ion Ti^{3+} est inséré dans un cristal d'oxyde d'aluminium Al_2O_3 dopé Ti^{3+} pour former le milieu amplificateur. En effet, les propriétés spectroscopiques confèrent à ce matériau de diverses applications dans le domaine des lasers. Le laser (Ti^{3+} , Al_2O_3) est l'un des lasers les plus utilisés en raison des caractéristiques spécifiques de l'ion titane Ti^{3+} , caractérisé par, un seul niveau excité (2E) comme il est illustré dans la figure ci dessous, avec notamment une bande d'absorption recouvrant presque tout le visible [21].

Le titane a une bande d'émission suffisamment large pour générer des impulsions ultra-courtes (de l'ordre de 6 femto secondes [1]). Les électrons pompés du niveau fondamentale vers la bande E et passent à travers le milieu de la bande 2E en se désexcitant rapidement avec l'émission de phonons au fond de la bande. L'émission du rayonnement laser se fait grâce à l'émission stimulée lors de la transition des électrons du fond de la bande 2E vers n'importe quel niveau se trouvant dans la bande 2T .

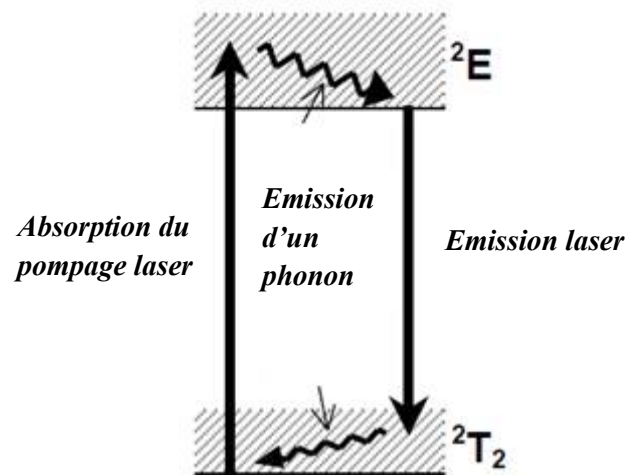


Figure I.8: Diagramme du niveau de l'ion Ti^{3+} .

Les électrons transitent finalement vers le fond de la bande 2T avec l'émission rapide de phonons. Le Ti^{3+} possède une bande d'absorption dans la gamme longueurs d'ondes comprises entre 400 à 600 nm, correspondant aux couleurs bleue et verte du spectre visible. La bande d'émission est dans la gamme 650 à et 1200 nm, du rouge au proche infrarouge [22].

Le cristal du saphir dopé au titane ($Al_2O_3: Ti^{3+}$) est un cristal utilisé pour fabriquer des lasers à impulsions ultra-courtes accordables. Ces cristaux combinent des propriétés thermiques et optiques suprêmes avec la plus large gamme de laser entre autres matériaux. Il émet dans la bande 660 à 1050 nm, et rendent les lasers Ti: saphir adaptés à diverses applications allant du traitement des matériaux à la spectroscopie multi-photons. Des études récentes ont montré que le pompage de diodes utilisant une diode bleue (445 nm) peut également être utilisé pour fabriquer des oscillateurs Ti: Saphir.

Nous présentons un exemple de coloration du saphir, où la figure ci-dessous montre le monocristal de saphir dopé au titane tiré par la méthode de Bridgman. La couleur rose du cristal est due à la présence du dopage par les ions Ti^{3+} .

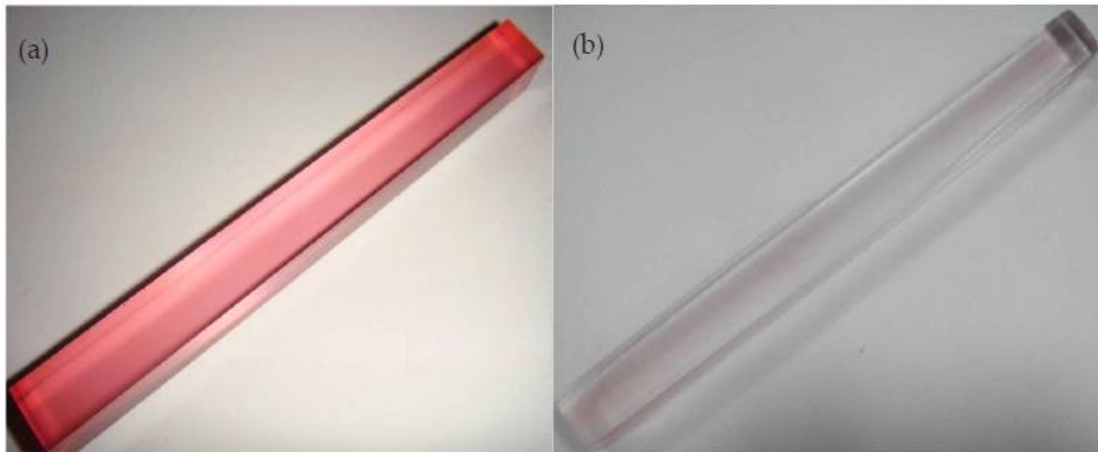


Figure I.9 : (a) Monocristal de saphir dopé au Ti^{3+} tiré par la méthode de Bridgman, (b) Monocristal de Saphir dopé au Ti^{4+} .

Un deuxième exemple représente un cristal optique de saphir dopé au titane pour l'application laser.



Figure 1.10 : Cristal optique de saphir dopé au titane pour application laser.

I.7- Le laser Titane Saphir (Ti^{3+} , Al_2O_3) :

Parmi les structures lasers développées ces dernières années pour dépasser les limites thermiques des cristaux, nous rencontrons les lasers à fibre en saphir dopée au titane. Ils ont largement montré leur grand potentiel. Le laser Titane Saphir est relativement récent puisqu'il a été découvert en 1986 (pour le fonctionnement en continu). Il est très pratique pour générer des impulsions ultracourtes (pour quelques femto secondes, $P \sim 1015$ W) [21]. De part ses propriétés typiques, ce laser est considéré parmi ceux les plus efficaces avec une puissance laser de plusieurs kilowatts en régime continu a été obtenue avec des excellentes efficacités [22, 1]. Ce

laser (saphir : titane) connaît actuellement un grand succès avec des systèmes très compacts pompés optiquement par d'autres sources lasers commerciaux (par exemple YAG: Nd³⁺ (à 532 nm) doublé en fréquence, ou par un laser argon alternativement doublé en fréquence (488 nm-514 nm)). Les spectres d'absorption et d'émission d' (Al₂O₃: Ti³⁺) sont représentés sur la figure ci-dessous [22] :

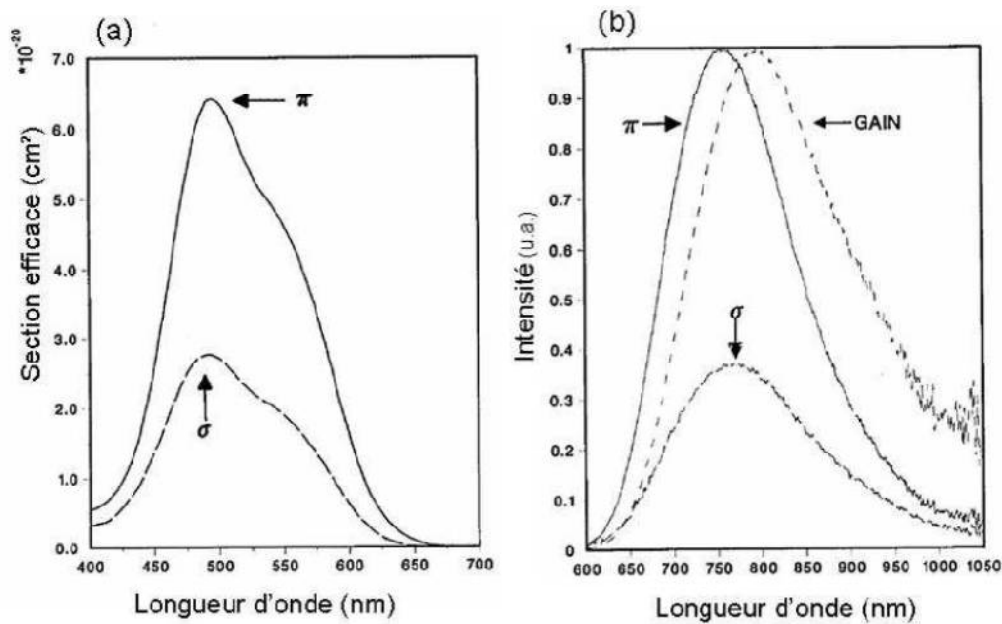


Figure I.11 : (a) Spectre d'absorption, (b) spectre d'émission d' Al₂O₃ dopé titane (Ti³⁺) suivant les deux directions de polarisation π et σ [22].

I.7-1- Caractéristique du laser titane saphir

Le laser titane saphir est un milieu laser à 4 niveaux, possède des propriétés spectrales exceptionnelles, nous citons [22] :

- Très large bande spectrale de fluorescence centrée à 800 nm.
- D'environ 180 nm de largeur à mi hauteur,
- Une large bande d'absorption autour de 490 nm.
- Facilement accessible par des lasers Argon, ou Nd:YAG doublés en fréquence.

Le diagramme des transitions radiatives de l'ion Ti³⁺ dans la maille Al₂O₃ est représenté dans la Figure I.12.

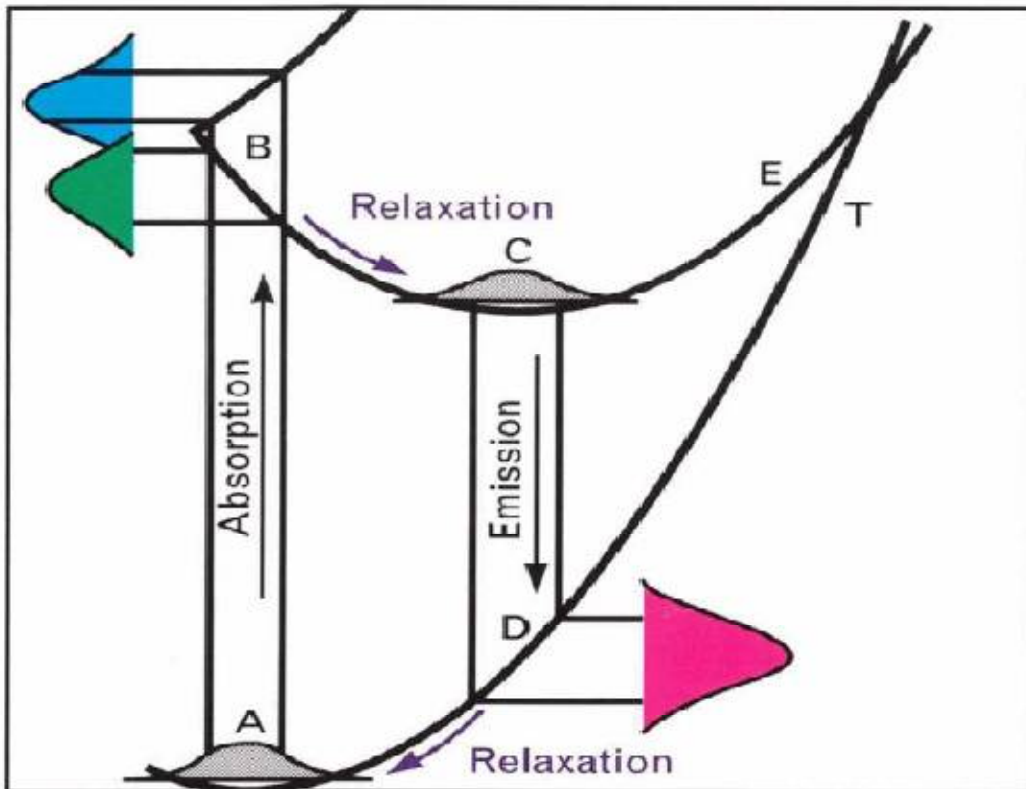


Figure I.12 : Diagramme des transitions radiatives de l'ion Ti^{3+} dans la maille Al_2O_3 [7].

I.7-2- Diagramme de phase d' $Al_2O_3 - TiO_2$

En effet, la connaissance du diagramme d'équilibre des phases du système considéré est insuffisante pour contrôler les phénomènes de ségrégation chimique et nous verrons que la compréhension des mécanismes de transport de masse est également nécessaire. L'incorporation de l'ion Ti^{3+} au sein de la matrice de saphir se fait à travers la substitution de l'ion Al^{3+} . Le site d'aluminium offre la meilleure position. Cependant le diagramme de phase $Al_2O_3 - TiO_2$ ne montre pas de possibilité de solution solide entre ces deux oxydes ce qui complique la substitution d' Al^{3+} par Ti^{3+} dans ce système conduisant à une concentration réelle en titane inférieure à celle souhaitée [23, 7].

Comme nous sommes intéressés dans notre étude par le dopage du saphir avec le titane nous présentons dans la figure suivante le diagramme de phase correspondant.

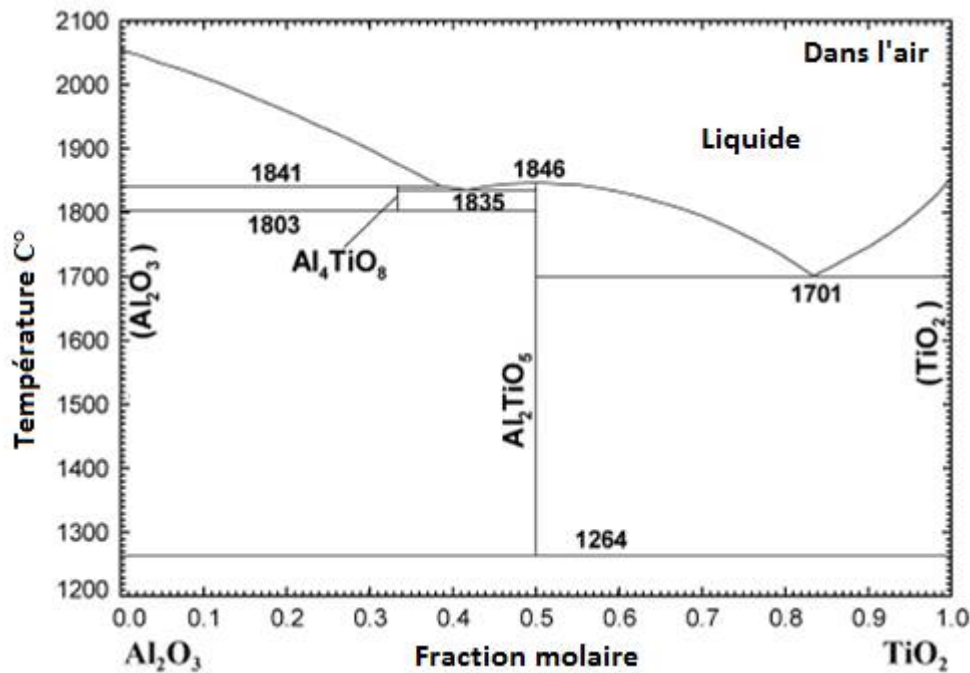


Figure I.13 : Diagramme de phase $Al_2O_3 - TiO_2$ optimisé (calculé) [24].

I.8- Les fibres de saphir

Les fibres du saphir présentent des avantages particuliers en comparaison avec d'autres. Elles ont une grande importance en particulier dans le domaine de la chirurgie, car elles ne sont pas rejetées par l'organisme. Les fibres de saphir ont des diamètres qui peuvent atteindre 200 μm , sont bien flexibles et maniables et peuvent avoir un large domaine d'applications [25]. Nous citons ci-dessous quelques applications de ces fibres.

I.8-1-Applications des fibres de saphir

Dans le monde des fibres monocristallines, pionnières les fibres du saphir sont utilisées industriellement et commercialement pour leur fenêtre de transmission dans l'IR, jusqu'à des longueurs d'onde de 3.5 μm . Comme on a précité les fibres d' Al_2O_3 sont bien adaptées pour différentes application, nous citons [7] :

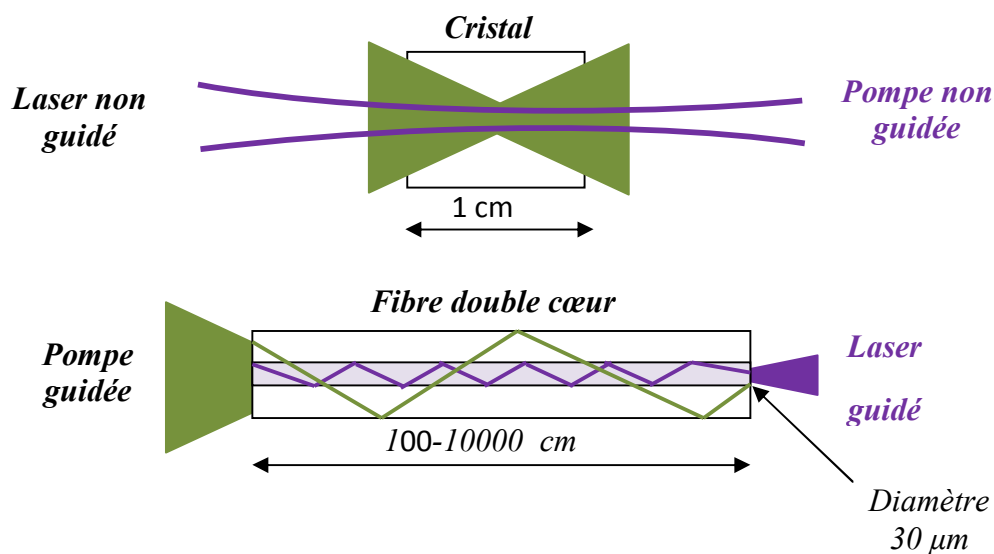
- ✓ les sondes de mesure dans les capteurs de température, à des températures élevées et des environnements chimiquement hostiles.
- ✓ Dans des équipements de chirurgie qui doivent utiliser le rayonnement de lasers à 2,94 μm dans des zones d'accès difficile.

- ✓ L'utilisation de fibres monocristallines en saphir est utile pour des capteurs travaillant dans des environnements difficiles :
- ✓ Dans les chambres de combustion où les températures élevées sont supérieures à 1800 °C.
- ✓ Dans des réacteurs chimiques utilisant des acides forts (Agressivité chimique).
- ✓ Le saphir est également inerte d'un point de vue biochimique, et cette propriété est utilisée dans le domaine médical pour des sondes ou des implants.
- ✓ Les fibres du Al_2O_3 dopés au Cr^{3+} ou au Ti^{3+} peuvent être utilisées dans des micro-lasers opérant en continu à la température ambiante sans aucun système de refroidissement.

N'oublions pas l'importance du saphir dans l'industrie semi-conductrice. Sa perfection cristalline, sa faible réactivité et ses paramètres de mailles appropriés font de lui un excellent substrat pour les diodes émettant la lumière bleue et les diodes lasers [26]. Le saphir est exploité comme substrat pour l'épitaxie, comme un exemple SiC, GaN et ZnO [27].

I.8-2-Les lasers à fibre

Pour la puissance et la génération d'impulsions de forte puissance crête, la fibre cristalline peut être considérée comme un milieu laser efficace particulièrement bien adapté [28]. Dans les figures ci-dessous, nous donnons des exemples pour comprendre le concept de base pour les fibres cristallines laser.



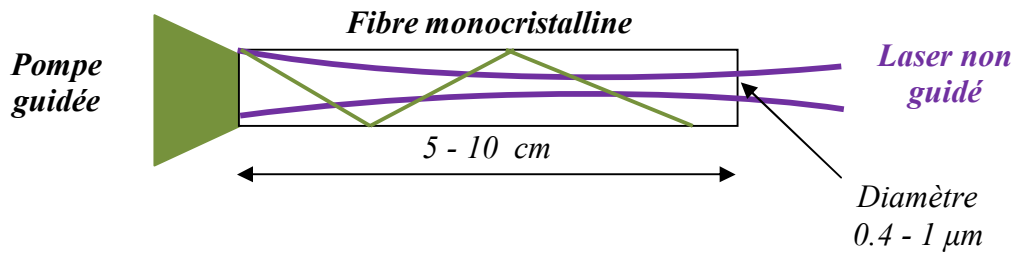


Figure I.14 : Concept de base pour les fibres cristallines laser

La fibre cristalline se présente comme un milieu laser monocristallin de grande longueur et de petit diamètre avec un potentiel important. Dans ces lasers à fibre, la pompe est guidée dans une gaine d'un diamètre de l'ordre de $100\ \mu\text{m}$, et le signal laser est guidé dans un cœur généralement monomode. Le concept d'un laser à fibre monocristalline est présenté dans la figure ci-dessus. La pompe, issue d'une diode est guidée au sein de la fibre. Ceci permet de répartir l'absorption sur une grande longueur, et améliore la gestion thermique [28].

I. 9- Méthodes de croissance du saphir

La solidification se fait en général par précipitation : il y a formation de germes du saphir de phase solide au sein du saphir liquide, ce que l'on appelle la germination, puis une croissance de ces germes avec divers méthodes de croissance.

Il y a donc deux étapes pour fabriquer les fibres cristallines pendant la transition liquide-solide [29] :

- *La germination* : la formation des germes de la nouvelle phase (La nucléation des atomes du saphir).
- *La croissance* des germes (pour le saphir il faut tirer selon la direction qui donne des fibres bien cristallisées, généralement c'est la direction (0001) [1]).

La création de l'interface pour réaliser la germination et la croissance se produit par l'adjonction de particules sur l'interface entre les deux phases (saphir germe et saphir liquide). La connaissance du comportement de la création et de la croissance des germes nous informe également sur les propriétés mécaniques du matériau solidifié [30, 31]. Dans le cas du saphir il faut bien régler la position de zone fondue où l'angle de croissance prend sa valeur (17°) [1] et le ménisque a une hauteur bien déterminée.

I.9-1- La germination

Pour la compréhension du phénomène de solidification, l'étude de la germination est un élément essentiel pour comprendre cette opération. La germination peut être définie comme la formation d'une nouvelle phase dans une région distincte [32]. Dans le cas de la solidification, la germination implique la formation d'une petite particule de solide entourée de liquide [29]. La nucléation c'est la première étape de la solidification ; il s'agit de l'apparition des germes solides autour desquels commence le changement d'état, on dit que la solidification se produit lorsque la goutte atteint une température inférieure à la température de solidification qui correspond à la formation d'un nucleus stable.

I.9-1-1-L'importance de la germination

Puisque la structure finale du matériau solidifié dépend de la germination, elle a donc une grande importance et une influence sur la microstructure finale de fibre cristalline ou du monocristal tiré. En effet, le nombre de germes qui se forment et grossissent détermine la taille finale des grains [32].

I.9-1-2-Les types de germination

Il existe deux types de germination:

- la germination homogène.
- la germination hétérogène.

Dans le cas où la germination est homogène, les germes solides se forment au sein de la phase liquide. Alors que, dans le cas de la germination hétérogène, ils se créent au contact de la paroi froide de la lingotière ou de particules étrangères baignent dans le liquide.

Si un matériau doit se solidifier à partir d'une substance étrangère, que ce soit le moule ou les impuretés insolubles, il est indispensable que la surface de cette substance, soit mouillée par le matériau liquide [29]. Une fois cette condition satisfaite, il faut encore que le liquide se solidifie facilement au contact de substance. Pour cette raison, l'angle de contact entre la substance et le matériau qui se solidifie est un concept théorique important en germination. Lorsque l'angle de contact est petit, l'interface entre le solide et la substance a une faible énergie de surface [32].

I.9-2- La croissance

Le saphir a été développé en utilisant une grande variété de techniques de cristallisation. La géométrie, les grandeurs, le format et la qualité du cristal ; tous ces facteurs jouent un rôle prépondérant dans le choix de la méthode de croissance [33]. Dès que la germination se produit, la croissance cristalline commence; les structures qui se développent peuvent être reliées aux conditions des procédés de croissance. Dans cette partie nous décrivons quelques techniques de croissance qui dépendent de la transformation liquide-solide. Ces techniques classées en deux grands types, les méthodes à croissance rapide et les méthodes à croissance lente :

I.9-2-1- Les méthodes à croissance rapide

- ❖ La méthode Verneuil.
- ❖ La méthode Bridgman.
- ❖ La méthode de l'échangeur thermique (HEM).
- ❖ La technique LHPG.
- ❖ La méthode EFG (Edge Defined Film Fed Growth)
- ❖ La méthode de Stépanov
- ❖ La méthode de Czochralski.
- ❖ La méthode de micro pulling-down.

La présentation de ces deux dernières méthodes de croissance (Czochralski et micro pulling-down) qui sont l'objectif de notre travail, sera détaillé dans le chapitre suivant avec une explication et illustration des montages et des principes de ces deux techniques.

I.9-2-2- Les méthodes à croissance lente [1].

- ❖ La croissance en solution aqueuse [79].
- ❖ La croissance en solvant (flux) [80, 81, 82].
- ❖ La croissance hydrothermale) [83].

I.10- Les méthodes à croissance rapide :

Généralement, l'opération dans ces mécanismes de croissance rapide, se fait à des températures élevées avec des vitesses de tirage de l'ordre de (mm/h) ou (mm/min), la croissance se fait à partir d'un bain fondu pour tirer des gros monocristaux ou des fibres monocristallines.

I.10-1 La méthode Verneuil :

Au début du 20^{ème} siècle, exactement en 1904 à l'Académie des Sciences (USA), le fondateur de la cristallogénèse scientifique le professeur A. Verneuil décrit dans un compte-rendu une technique de croissance par fusion à la flamme qui lui permet d'obtenir les premiers monocristaux du saphir et du rubis [34].

Ce procédé de fusion à la flamme est resté pratiquement inchangé jusqu'à ce jour surtout les cristaux de bijoux qui sont largement fabriqués par cette méthode.

I.10-1-1- La découverte du premier cristal laser par la croissance Verneuil

Le premier cristal laser a été découvert en 1960 (le rubis ou alumine dopée chrome), $\text{Al}_2\text{O}_3 : \text{Cr}^{3+}$ est obtenu par la croissance Verneuil.

Le développement de la cristallogénèse des cristaux pour l'optique est lancé par la croissance Verneuil et c'est grâce au rubis que fut mis en évidence expérimentalement l'effet laser [35].

En 1886, le professeur A. Verneuil annonça l'utilisation d'une torche oxygène/hydrogène pour une fusion d'alumine (matière première sous forme de poudre) avec l'addition des impuretés de chrome.

A partir de cette date, Verneuil a commencé le développement de la croissance du rubis par fusion par flamme et il ne publia ces résultats en détail qu'en 1904 [34].

La figure ci-dessous représente les photos du fondateur de la cristallogénèse scientifique : le professeur Auguste V. L. Verneuil (1856- 1913) :

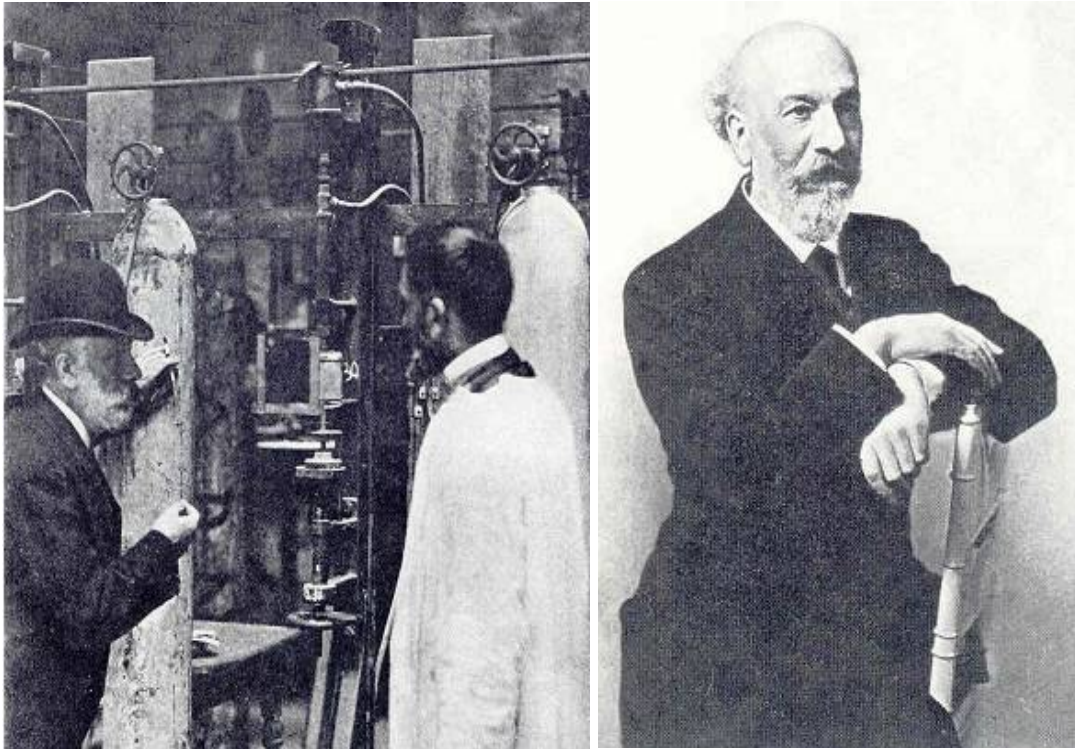


Figure I.15 : Fondateur de la cristallogénèse scientifique le professeur Auguste V. L. Verneuil (1856- 1913) [36].

I.10-1-2- Les projets et les applications de la méthode Verneuil :

-En 1904 (USA): Après la publication de Verneuil aux USA ; Hoquiam et Washington ont démarré la production industrielle du rubis par le procédé Verneuil.

-En 1909 (France): Verneuil avait un projet de développement du saphir bleu pour la bijouterie ; tel que l'origine de cette couleur bleu a été connue par Verneuil et son équipe après des analyses chimiques [7].

-En 1910 (France) : Projets du laboratoire Heller à Paris avec les torches Verneuil comme il est montré dans la figure ci-dessus.

-En 1920 (France et la Suisse): 100 torches Verneuil pour la croissance du saphir sont installé par deux sociétés Pières Scientifiques et Hrand Djevahirdjian, en France et en Suisse [37]. .

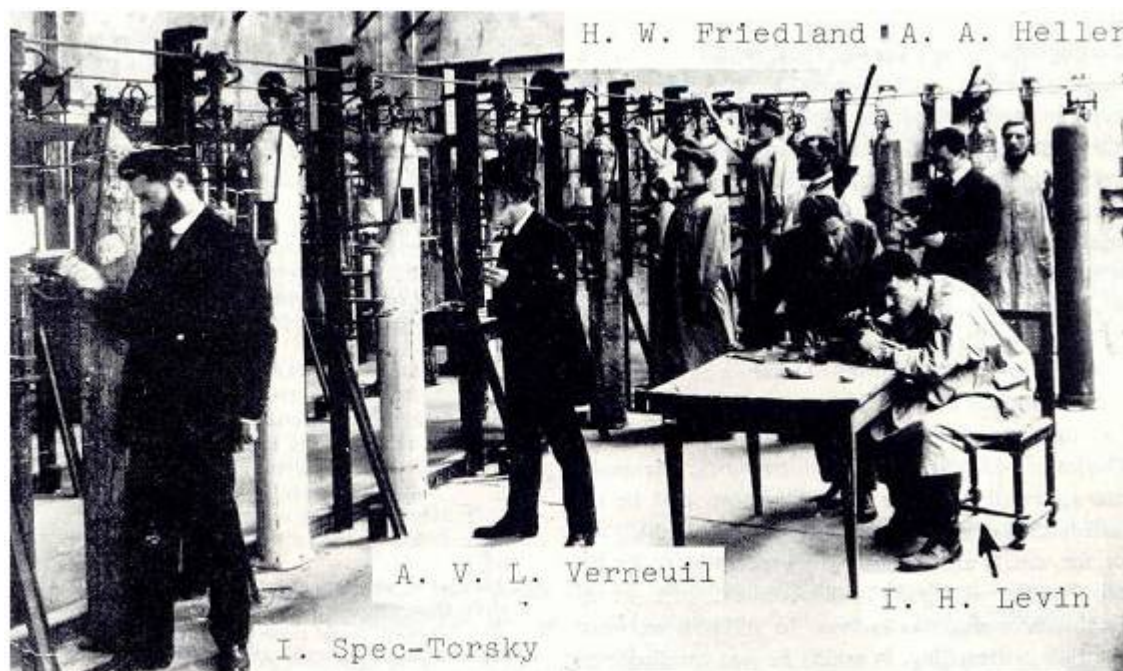


Figure I.16 : Laboratoire Heller à Paris (1910) avec les torches Verneuil [36].

-En 1913 (en France) : Les frères Baikovsky avait 3 torches Verneuil qui ont fabriqué du saphir bleu pour la société Heller.

-En 1914 : Baikovsky avait 80 torches Verneuil (France).

-En 1919 : Baikovsky avait 400 torches Verneuil (France).

-En 1932 (Union Soviétique) : L'utilisation de la méthode Verneuil par S.K.Popov [38].



Figure I.17 :S.K. Popov (1903-1953) [39].

-En 1938 :S.K.Popov a fait une amélioration sur le procédé Verneuil en le rendant semi automatique ce qui lui a permis d'augmenter la production et le rendement de cristallisation ainsi que la qualité du saphir [37]. La figure suivante montre la modification du Popov en 1939 ainsi que 1950 :

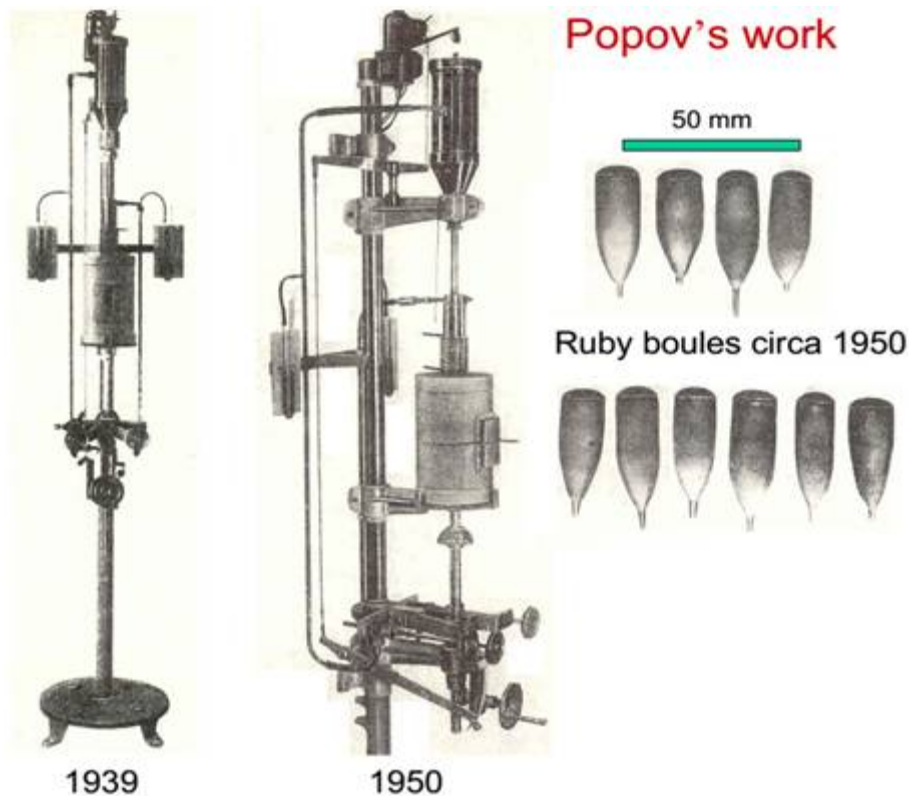


Figure I.18 : Modifications apportés à la méthode de Verneuil par Popov en 1939 ainsi que 1950 [39].

-En 1942 : un projet du développement du saphir par flamme a été lancé par le gouvernement américain dans le cadre d'un contrat avec la société Lind qu'est un grand producteur du gaz ce qui présente un avantage considérable pour la suite de croissance et du développement du saphir.

-En 1960 (Linde): Développement de la croissance Verneuil par Linde qui a développé. Un processus automatisé pour la fabrication de 81 cm x 5 mm tiges qui pourraient être efficacement coupées en roulements à bijoux.

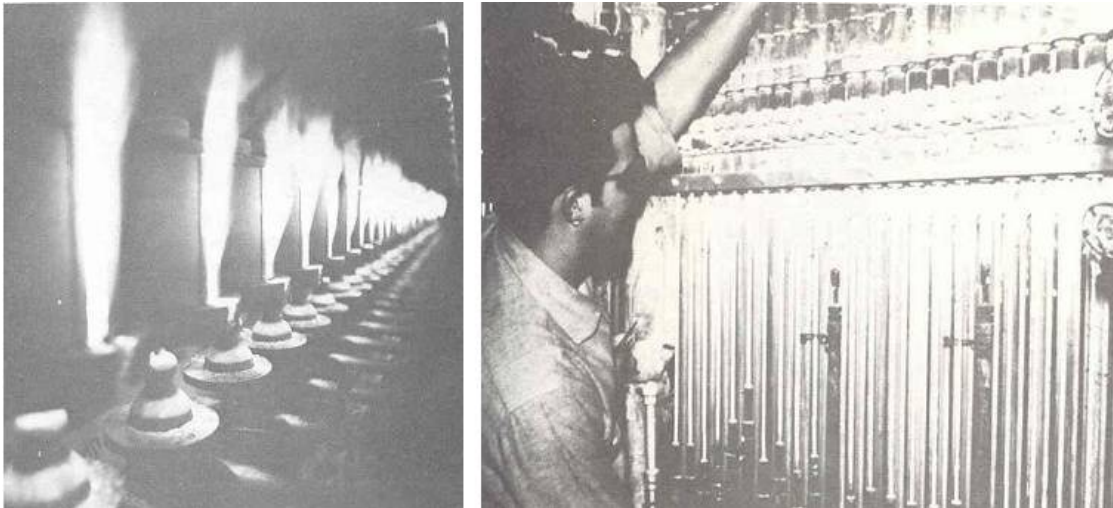


Figure I.19 : Développement de la croissance Verneuil par Linde [36].

-En 1970 : Chambres de croissance Verneuil des Djvahirdjian planté à 270 torches.

-En 1980 (France) : Les frères Baikovsky avait 1600 torches Verneuil.

I.10-1-3 -L'appareillage et le principe de la méthode Verneuil

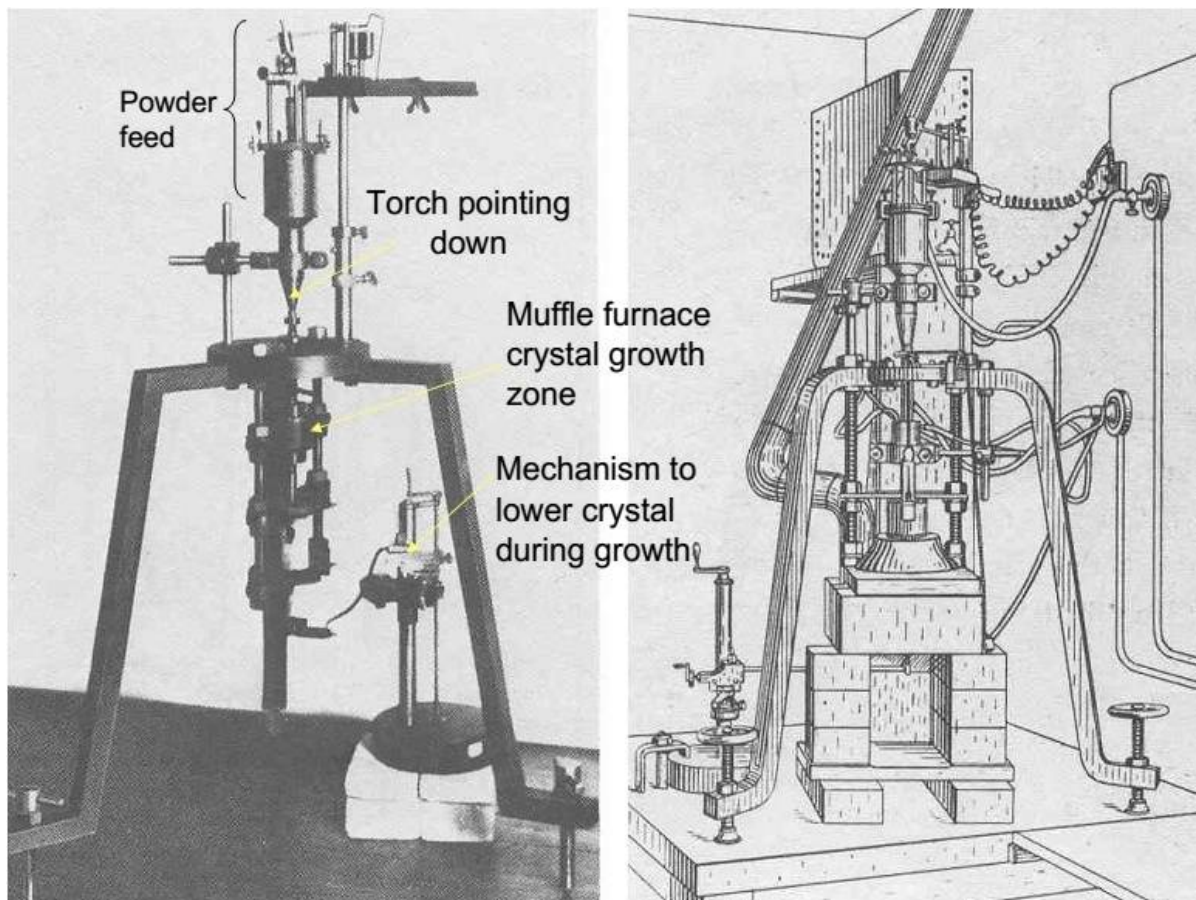


Figure I.20 : Appareillage de Verneuil : Fusion par Flamme [36].

Les composantes principales de la méthode Verneuil :

- Dispositif de déplacement du cristal.
- Un moufle réfractaire.
- Deux sources, l'un de l'oxygène et l'autre d'hydrogène.
- Un réservoir de poudre du matériau à cristalliser, avec un mécanisme d'alimentation de ce dernier.

Ces dispositifs sont montrés dans la figure ci-dessus :

I.10-1-4-Principe de la méthode de Verneuil

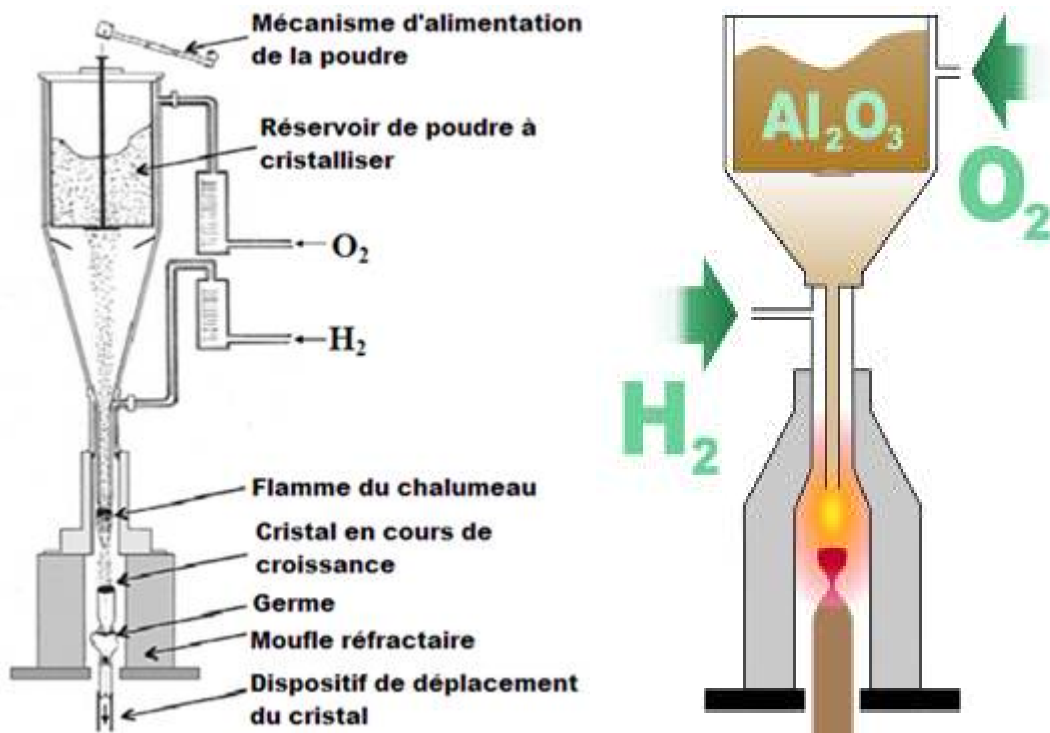


Figure I.21 : Principe de la méthode Verneuil [37].

Avant la cristallisation du matériau, il faut passer par l'étape de fusion de la poudre de ce matériau à cristalliser, cela se fait au moyen de la flamme d'un chalumeau oxyhydrique, après le passage dans le chalumeau, la cristallisation de la poudre fondue se fait sur le germe qui est placé sur un support mobile. Le rôle du moufle réfractaire cité ci-dessus c'est la protection de ce support [1]. Le principe de la méthode de Verneuil est représenté sur la Figure I. 21.

Parmi les avantages et es inconvénients de la méthode Verneuil, nous citons [1,40] :

I.10-1-5- Les avantages

- L'absence de creuset.
- La possibilité d'obtenir de très hautes températures ($> 2000^{\circ}\text{C}$).
- Sa simplicité qui lui a conféré un développement industriel exceptionnel.

I.10-1-6- Les inconvénients

- La vitesse de croissance est de l'ordre du cm/h, ce qui génère des contraintes, c.-à-d. qu'à cause de la grande vitesse il y a un entraînement important des contraintes dans le cristal, ce qui donne une qualité cristalline pas toujours excellente.
- les forts gradients thermiques générant des contraintes et les inclusions de gaz expliquent la mauvaise qualité cristalline.

I.10-2- Technique de Bridgman

La méthode verticale de Bridgman (VBM) a été premièrement développée en 1923 [41]. Maintenant elle est l'une des meilleures et usuelles techniques pour la croissance des cristaux de semi-conducteur [42].

Cette méthode d'élaboration de monocristaux, est basée sur le principe du forçage de la solidification progressive à partir d'un germe unique ; elle permet d'obtenir des cristaux de très bonne qualité ; et consiste à placer un creuset dans un four et à solidifier le matériau du bas jusqu'en haut ; cela dans le cas d'un procédé vertical. [43]. On peut dire qu'il y a trois possibilités pour réaliser cette technique :

- La première (Le four est fixe) : c.-à-d qu'on réalise un déplacement d'échantillon du haut vers le bas, et on fixe le four.
- La deuxième (l'échantillon est fixe) : dans ce cas il y a un déplacement du four du bas vers le haut.
- La troisième (four et échantillon sont les deux fixes) : et ça cela se fait par une modification de la température du four.

Pour minimiser les vibrations au niveau de l'interface de cristallisation, il est préférable de déplacer le four. Les vitesses de déplacement se situent entre 1 et 30 mm/h [44].

L'avantage de cette méthode est que la section de l'échantillon peut être carrée, rectangulaire, ou circulaire [29] puisqu'elle correspond à la forme du moule ou du

creuset; cette technique permet d'une part de faciliter la germination des monocristaux et d'autre part d'obtenir des monocristaux d'orientation déterminée. On peut citer quelques précautions qui doivent être prises lors de l'utilisation de cette méthode [43] :

- ❖ Evitement de la contamination du matériau, en utilisant un creuset de matériau compatible avec le cristal élaboré.
- ❖ La densité du matériau liquide ne doit pas être très différente de celle du solide.
- ❖ Les matériaux et les conditions de croissance nécessaires doivent présider au choix du mode du chauffage ; utilisation de chauffages résistifs ou de chauffages inductifs.

Le principe de la méthode Bridgman [45] est l'emploi d'un creuset qui contient la matière première (la charge) et un germe monocristallin. Cette charge est fondue ainsi qu'une partie du germe. L'étape suivante est le déplacement du creuset dans un gradient de température (Figure I.22) à une vitesse contrôlée qui varie de 0.1 à 200 mm/h. Mais le plus souvent de 1 à 30 mm/h.

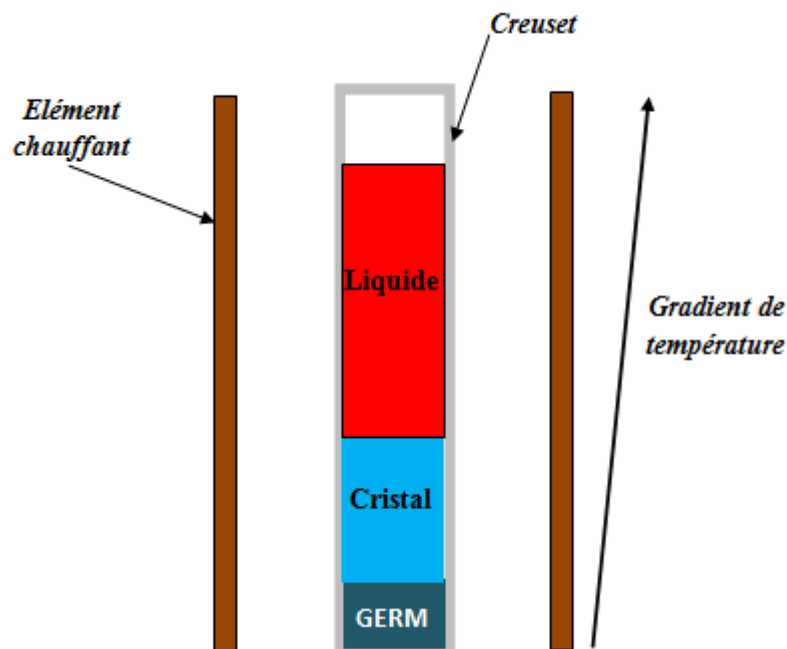


Figure I.22 : Principe de la méthode Bridgman vertical.

L'utilisation d'un chauffage par induction permet de bien délimiter les deux zones, la zone de chauffe et la zone de refroidissement. Ceci assure un bon gradient de température et une interface solide-liquide la plus homogène possible. Le matériau à

crystalliser placé dans un creuset est chauffé à une température supérieure à la température de fusion (T_f) ; ceci à l'aide d'un inducteur couplé à un générateur de haute fréquence. La figure ci-dessous montre un schéma illustratif de la technique Bridgman.

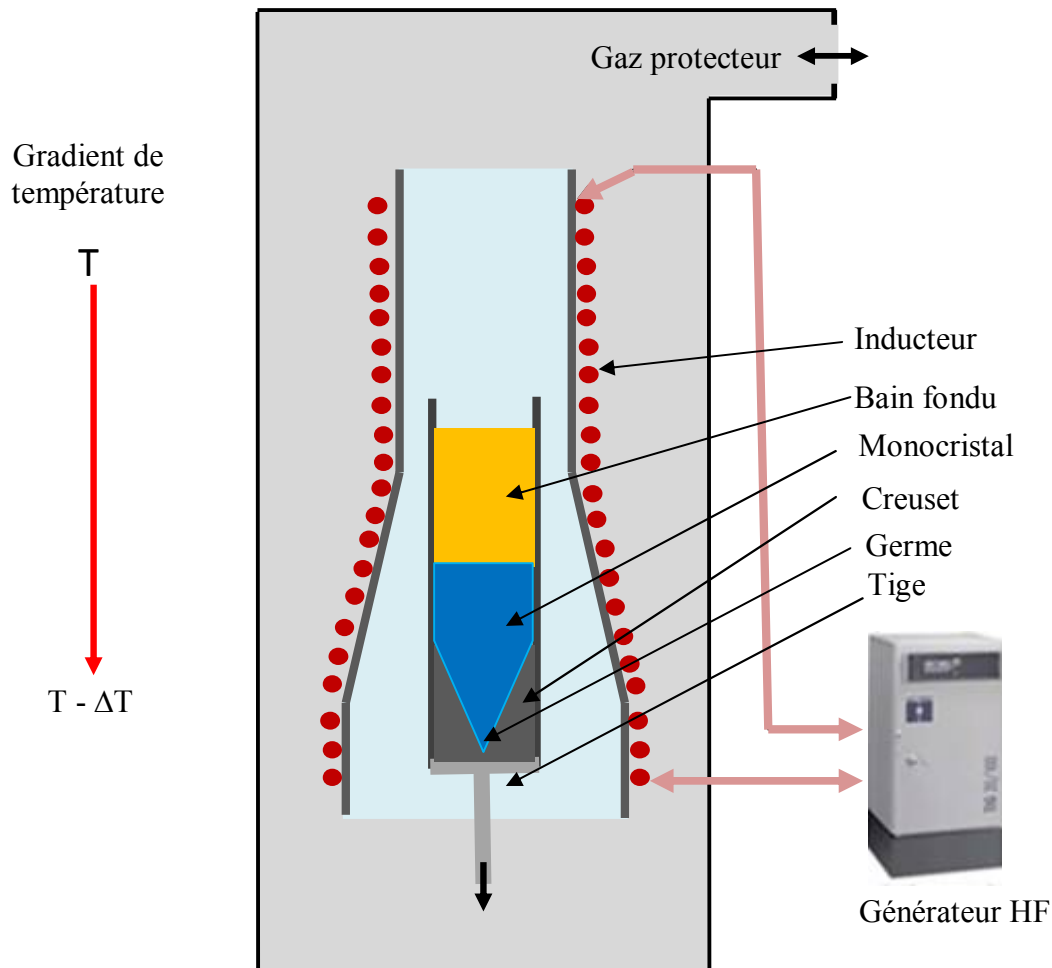


Figure I.23 : Illustration schématique de la méthode Bridgman vertical [46].

I.10-2-1- L'utilisation de La méthode Bridgman

La méthode Bridgman est particulièrement adaptée à une cristallisation industrielle : gros cristaux, cristaux en forme ou plusieurs cristaux simultanément. Parmi les cristaux pour l'optique, tels que les fluorures ($LiYF_4$, MgF_2 , CaF_2 , BaF_2 , ...), quelques monocristaux d'oxydes peuvent également être obtenus par la méthode Bridgman ($YAlO_3$, $Bi_4Ge_3O_{12}$, Y_2O_3 , ...). La croissance de monocristaux d'oxydes se heurte néanmoins à la problématique du creuset et en particulier souvent au démoulage difficile des cristaux [46].

Il est possible d'obtenir par la méthode de Bridgman des monocristaux préformés de forme simple donnés par la forme du creuset (cylindres, parallélépipèdes).

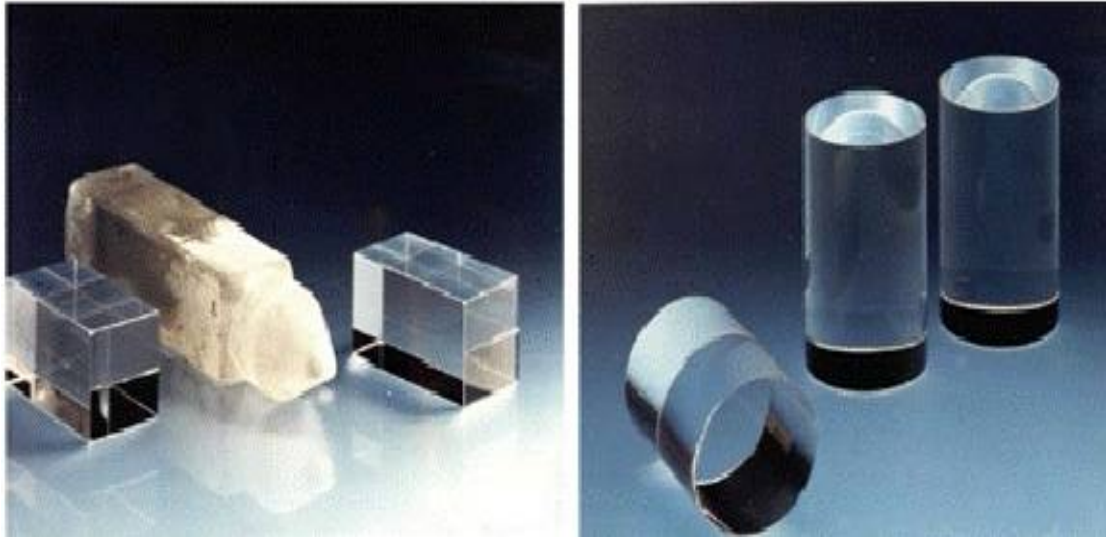


Figure I.24 : Monocristaux obtenus par la méthode de Bridgman [46].

I.10-3- La méthode de l'échangeur thermique (HEM)

C'est une technique dérivée de la méthode de Bridgman avec des modifications qui ont été apportées à cette méthode. Dans ce cas, les gradients de température dans le liquide et dans le solide sont contrôlés indépendamment [47]. La méthode de l'échangeur thermique associe un germe placé au fond du creuset et basée sur la présence d'échangeur de chaleur qui permet d'extraire à la partie inférieure du lingot la chaleur latente de solidification voir la figure ci-dessous. Les premiers travaux ont porté sur le saphir pur et dopé ont abouti à la production de monocristaux de 50-70 mm de diamètre et de 10 mm d'épaisseur [48], pour applications lasers en électro-optique [49]. D'autres matrices monocristallines ont alors été envisagées à des fins commerciales, telles que $Y_3Al_5O_{12}$ dopé au néodyme (YAG: Nd) et MgF_2 dopé au cobalt pour les matériaux lasers. Certains matériaux se sont développés industriellement et présentent une meilleure qualité cristalline lorsqu'ils sont produits par HEM (Al_2O_3 , $Bi_4Ge_3O_{12}$...) [50].

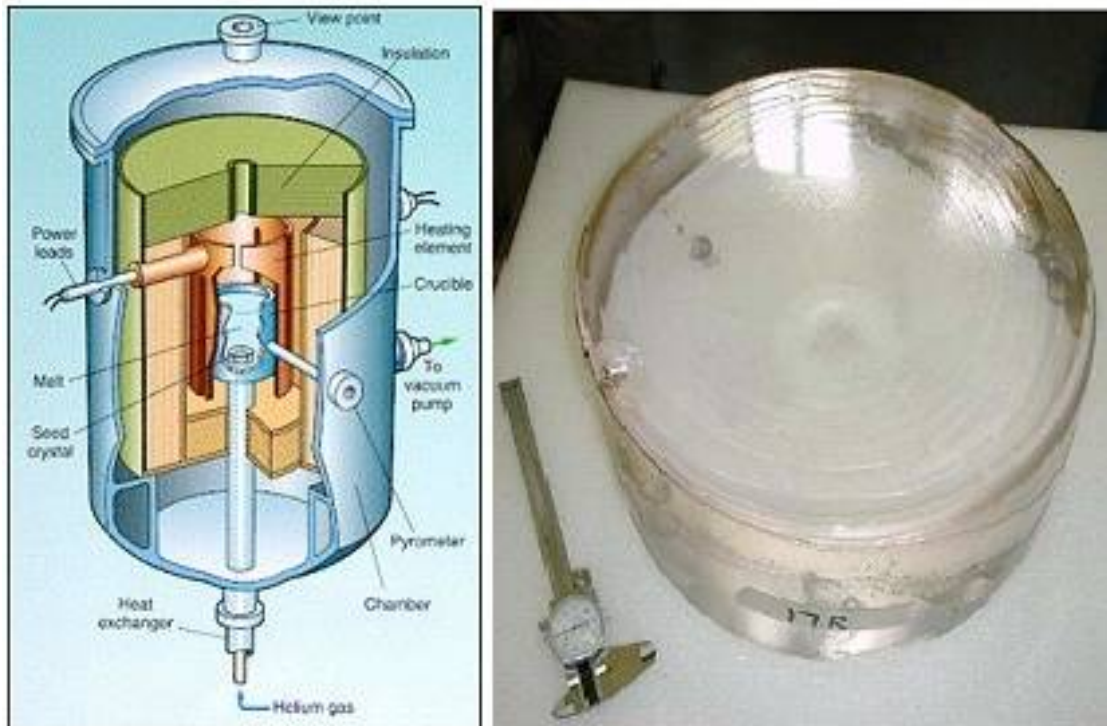


Figure I.25: Schema d'un four HEM [9].

I.10-4- La technique LHPG :

LHPG : technique de la zone flottante par un chauffage laser, est une technique qu'a été mise au point par Feigelson au début des années 80. Cette méthode est un procédé sans creuset [51], elle est dérivée de la méthode de la zone flottante de la croissance des cristaux. LHPG est conçue pour la croissance de fibres de diamètre $\leq 1\text{mm}$; en générale elle permet d'élaborer des matériaux fibrés, cristallins, ou céramiques sur lesquels il est possible de contrôler les compositions, les propriétés physico-chimique et mécanique [52]. Dans cette technique, la zone fondue est créée entre un barreau source de composition proche de celle du matériau ; elle est maintenue en équilibre par les forces de tensions superficielles. Dans ce procédé on a la possibilité de travailler dans un domaine de température élevée (jusqu'à 4000°C) [1]. Les avantages de cette technique :

- La possibilité de réaliser la croissance de matériau à fusion non congruente.
- Une très faible quantité de matière à l'état liquide à un instant donné, limitant les problèmes de volatilité ou de décomposition de certains éléments.
- L'absence de contamination du cristal par un creuset éventuel.
- La limitation des problèmes de ségrégation.

- Les faibles tailles de ces matériaux élaborés et donc le faible coût en matière première.

La figure suivante est une illustration schématique de la technique (LHPG).

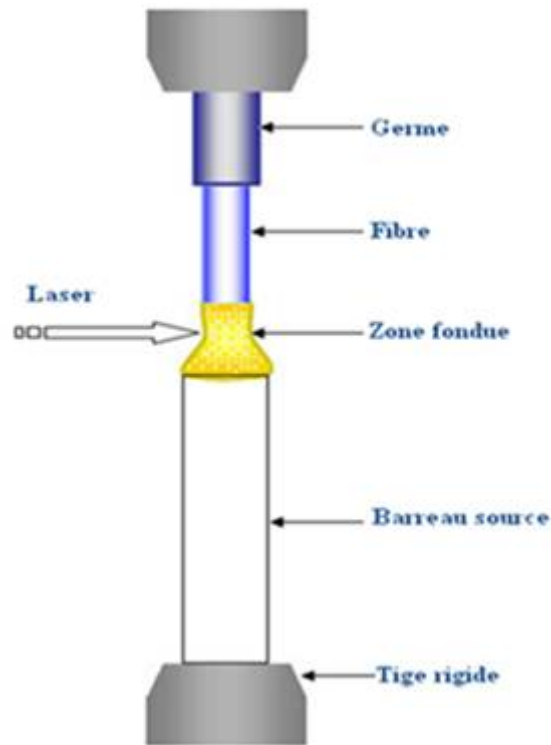


Figure I.26 : Schéma de la technique LHPG.

Par ailleurs, un faisceau laser CO₂ fournit une source uniforme de chaleur ultra-propre est utilisé pour faire fondre le barreau de matière première [53]. Le principe de cette technique est montré sur la Fig I.26. A l'aide d'une série de miroirs réfléchissants ce faisceau laser est focalisé en un point chaud. Ce procédé a été installé à l'institut Lumière Matière (ILM) Université Lyon 1-France, en 1995 [54].

Le tirage d'une fibre on réalise une translation des deux barreaux germe et nourricier vers le haut, dans la même direction avec des vitesses de tirage comprises entre quelques mm/h et quelques mm/min. On peut suivre la croissance du cristal par caméra et microscope (binoculaire) pour contrôler latéralement et transversalement l'alignement des barreaux [52].

La présence de gradient thermique élevé dans la zone fondue permet donc d'accéder à des vitesses de tirage supérieures à celles couramment rencontrées en tirage Czochralski [55]. A cause des forts gradients thermiques dans la zone fondue, il

apparaît des contraintes importantes proches de l'interface et ça qui se présente un inconvénient de cette méthode.

I.10-5- Méthode EFG (Edge Defined Film Fed Growth)

Cette méthode de croissance cristalline à partir du bain fondu a été mise au point par Harold Labelle en 1962 [56]. La méthode EFG (Edge-defined Film fed Growth) est une méthode qui est dérivée de la technique de Czochralski (Cz) [57] avec un tirage des monocristaux vers le haut en utilisant des filières (par exemple le en Molybdène (Mo)). Elle se différencie du procédé Czochralski par l'ajout d'une filière dans le bain fondu, cette filière peut contenir plusieurs capillaires permettant le tirage de plaques simultanément. Cette technique de croissance permet l'élaboration de formes simples (tubes, plaques, barreaux), des adaptations de cette technique ont permis l'élaboration de formes plus complexes (tubes etc...)[58].

I.10-5-1- Tirage de cristaux de saphir par la technique EFG

Dans le cas de tirage des cristaux du saphir par la méthode de EFG, le liquide d'alumine fondu remonte au sommet des filières.

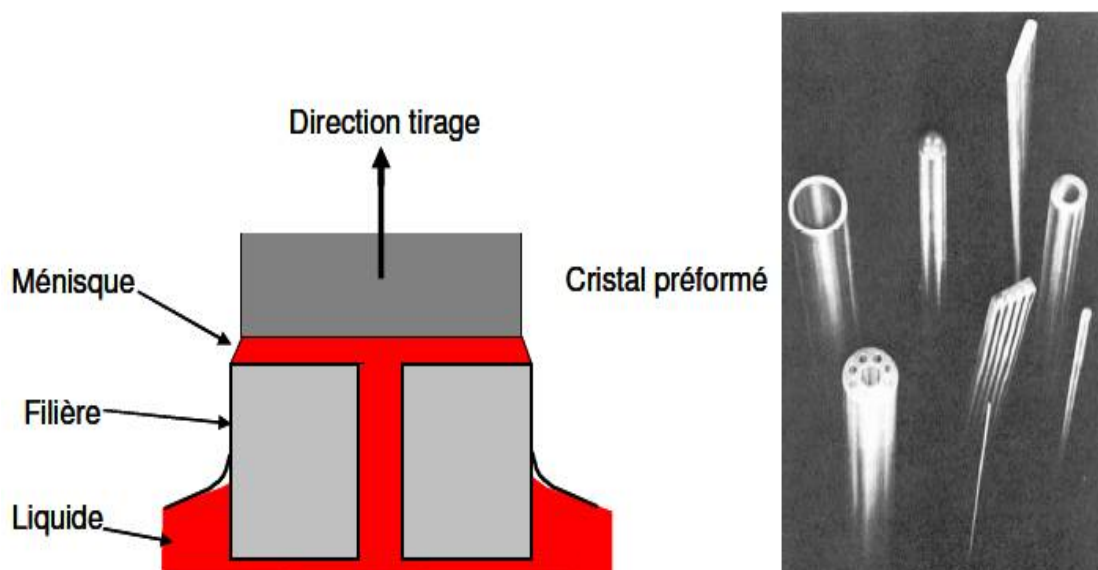


Figure I.27 : Principe de la méthode EFG et quelques formes de saphir élaborés [7]. Après connexion du germe monocristallin avec le liquide présent au sommet de la filière, il se forme un ménisque liquide qui met en jeu les conditions de mouillage et de tension superficielle du couple matériau de la filière (Mo) / germe monocristallin. La géométrie de la filière imposée au liquide refroidi lors du déplacement du germe dans le gradient thermique de l'installation donne une forme de plaque.

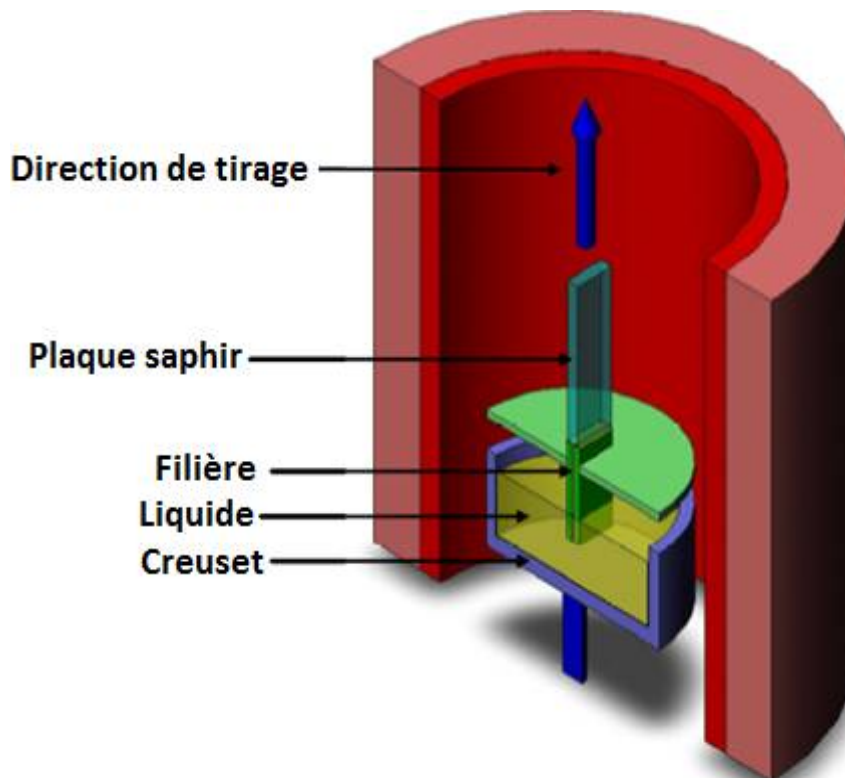


Figure I.28 : Illustration schématique du principe de méthode EFG pour une seule plaque [7].

I.10-6- Méthode Stépanov

Pour tirer des cristaux avec des formes préformées, il faut mettre en jeu une technique de filière. Czochralski est la méthode de base qu'est utilisée par les expérimentateurs pour dériver et créer d'autres méthodes de croissance cristalline des cristaux préformés par un tirage vers le haut.

La méthode de Stepanov est la première qui montre l'instabilité de la méthode Czochralski en utilisant une filière flottant sur le bain qui fixe les dimensions du cristal et rend évanescentes les perturbations au cours du tirage [59, 1]. En 1965 A.V.Stepanov et S.V.Tsivinskii en URSS [60], ont mis le liquide à cristalliser dans un conduit capillaire de section rectangulaire de telle façon que liquide affleure au sommet du capillaire (Figure ci-dessous). Un germe cristallin est mis en contact avec le sommet du ménisque de telle façon qu'un gradient thermique suffisant provoque la cristallisation à l'interface solide-liquide.

Cette cristallisation est continue si d'une part on tire régulièrement le germe vers le haut et si d'autre part on alimente le capillaire en liquide; le cristal obtenu a la forme de la filière.

Cette méthode rend impossible l'observation du ménisque qui se forme au niveau de l'interface liquide – solide [7].

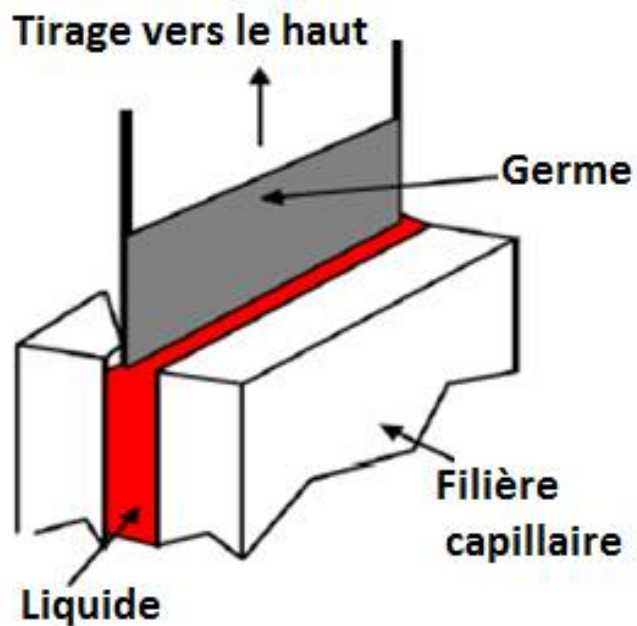


Figure I.29 : Principe de la méthode de Stépanov [7].

La figure suivante représente quelques formes des cristaux et monocristaux tirés par la méthode de Stépanov.

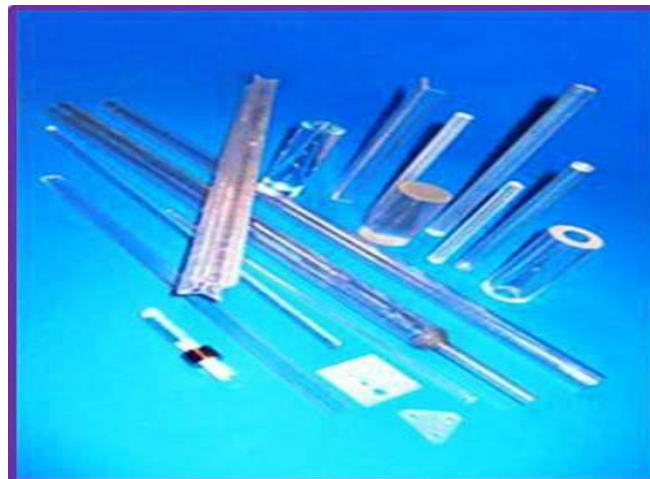


Figure I.30 : Quelques formes des cristaux et monocristaux tirés par la méthode de Stépanov [13].

Chapitre II

Méthodes de croissances étudiées : μ PD et Cz

Ce chapitre se concentre sur la présentation des deux méthodes de croissance étudiées, la méthode de micro pulling down et celle de Czochralski, ainsi que tous les éléments importants pour comprendre le mécanisme de la croissance cristalline de ces techniques. Nous avons donné les principes fondamentaux qui sont importants pour le tirage des fibres et des cristaux monocristallins. Les types de convection, le transport thermique et massique au cours du tirage sont aussi cités. D'un autre côté nous présentons les avantages, les inconvénients de ces procédés et quelques travaux numériques et expérimentaux réalisés par ces deux techniques de croissance.

II.1-Historique

La technique micro-Pulling Down (μ -PD) est une technique relativement récente utilisée pour tirer vers le bas des cristaux et des fibres monocristallines préformées [33]. Elle est devenue l'une des méthodes principales pour la croissance des fibres cristallines de bonne qualité [61]. Dans cette technique la forme des fibres cristallines tirées dépend de la géométrie du capillaire au fond du creuset (le tirage se fait avec des formats contrôlés imposés par la géométrie du capillaire) [3, 28]. Le tirage des fibres monocristallines se fait à partir d'un germe orienté, qui est en connexion avec une goutte pendante. C'est pour cela qu'on dit que cette méthode est dérivée de la goutte pendante. Elle a été inventée par Ricard et *al* à la fin des années 60 [1]. A l'Université Tohoku de Sendai (Japon), le Professeur Fukuda [62] l'a répétée, réformée, et l'a aussi améliorée. La technique micro-pulling down implantée à l'institut Lumière Matière (ILM) à l'université de Lyon en France par le Docteur K. Lebbou [63]. Plusieurs types de nouvelles fibres et de monocristaux ont été cristallisés en utilisant cette méthode avec un excellent control du diamètre et une homogénéité de concentration [64].

II.2-La méthode micro-pulling down (μ -PD)

En raison de la faible quantité de matière première et des puissances de chauffage qui sont plus faibles que dans les autres méthodes de fabrication des monocristaux. La technique « micro-Pulling-Down » est utilisée pour la recherche dans les laboratoires notamment pour la recherche de nouveaux matériaux. La technique μ -PD est une technique qui a la possibilité de tirage des fibres et des cristaux avec des formes préformées de section bien définies (circulaire, carrée, plaques,...) de 300 μ m à 1 mm de diamètre, avec des longueurs pouvant atteindre un mètre. Les milieux actifs développés par cette technique présentent l'avantage d'être des milieux lasers performants bien connus et très utilisés dans les applications médicales, industrielles et militaires [28].

II.3-Illustration schématique et l'appareillage de la technique de μ -PD

Dans les figures ci dessous nous représentons un schéma illustratif ainsi que l'appareillage de la technique de micro-pulling down :

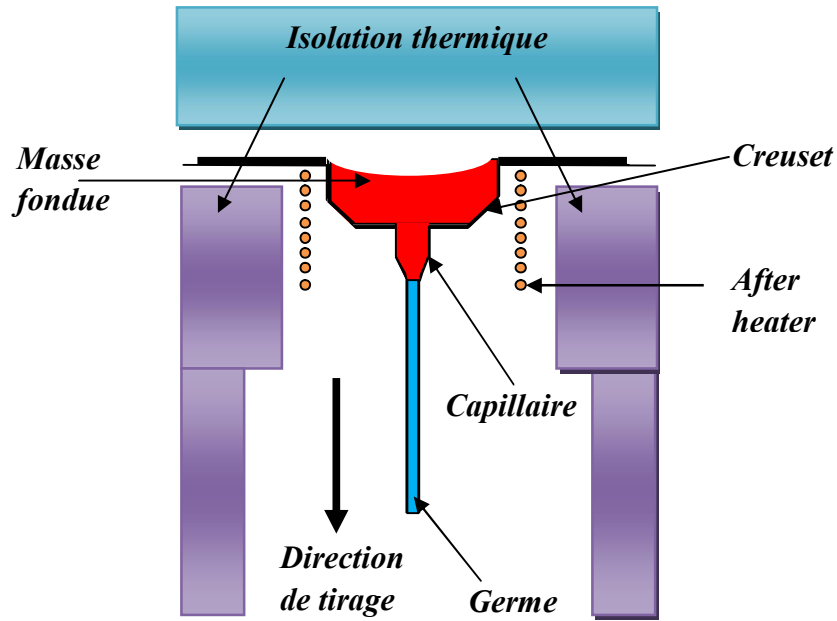


Figure II.1: Illustration schématique de la technique de micro-pulling down.

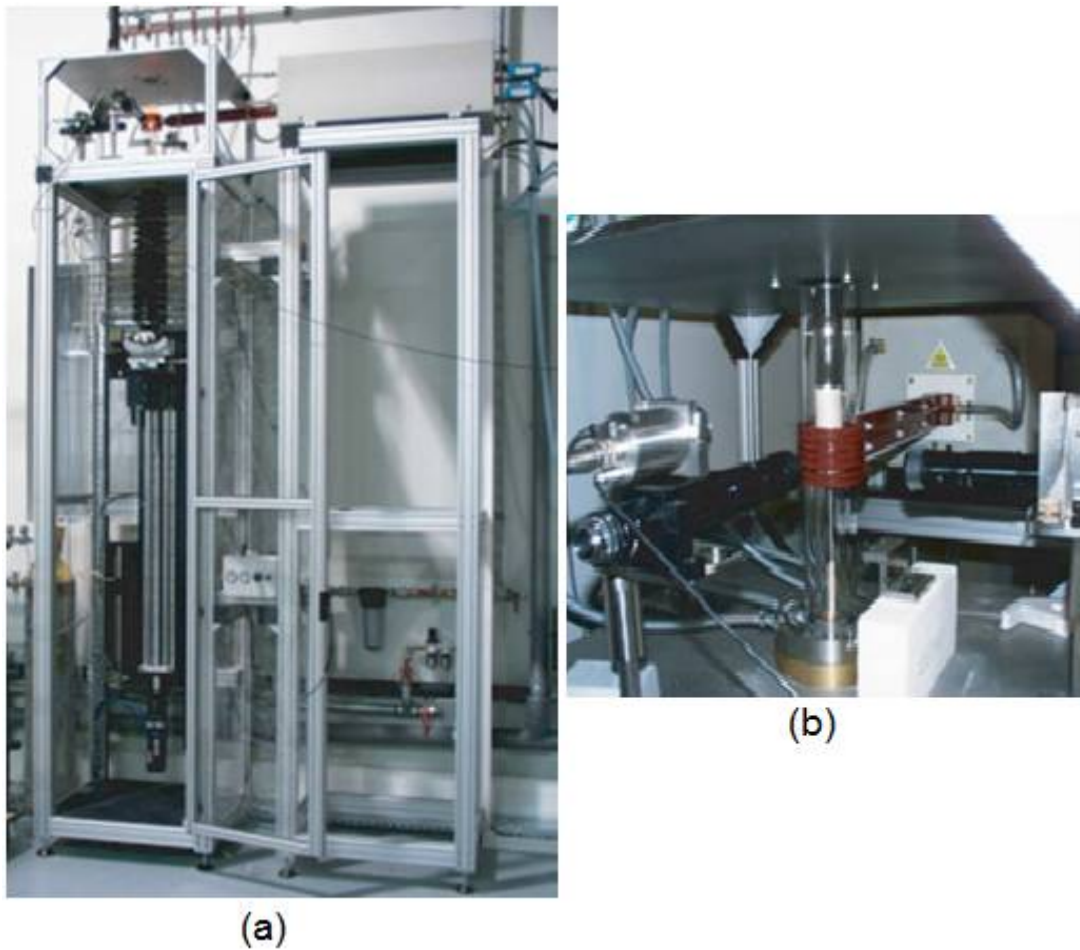


Figure II.2: (a) machine de tirage μ -PD à chauffage inductif.
(b) : creuset à l'intérieur de la spire inductive [28].

II.4-Les principaux avantages de la technique μ -PD

La technique μ -PD présente les avantages suivants :

- ❖ Les gradients de température sont contrôlés au niveau de l'interface solide-liquide ce qui minimise la propagation de défauts, (Contrôle de la forme de l'interface liquide-solide).
- ❖ Les coefficients de ségrégation (k) sont pratiquement égaux à l'unité si les vitesses de tirage sont suffisamment élevées [1].
- ❖ La méthode μ -PD permet l'obtention de fibres cristallines avec une bonne homogénéité chimique [28].
- ❖ Il est difficile d'avoir une bonne homogénéité du liquide et une parfaite distribution des dopants dans les fibres et les cristaux, en particulier au cours du tirage par les techniques Czochralski et Bridgman. Alors qu'avec la méthode μ -PD il est possible d'améliorer l'homogénéité du cristal surtout pour les applications optiques et lasers,
- ❖ Possibilité d'utiliser des concentrations très élevées en dopants dans le cristal. Les cations peuvent être figés dans le solide en raison des vitesses de tirage élevées ce qui permet d'élaborer des cristaux non congruents.
- ❖ Procédé rapide et flexible, il peut être adapté au tirage des matériaux à fusion congruente et non congruente [28].
- ❖ Possibilité de faire croître des fibres de grande longueur.
- ❖ Rapidité de la croissance, ce qui réduit le coût des cristaux par rapport à d'autres techniques (Czochralski, Bridgman).
- ❖ Stabilité du diamètre des fibres.
- ❖ Excellente qualité cristalline [65].
- ❖ Les puissances de chauffe sont plus faibles que dans les autres méthodes de fabrication des monocristaux [28].
- ❖ Faible coût de la matière première.
- ❖ Possibilité de cristaux préformés.

L'inconvénient le plus connu de la technique de micro pulling-down est l'impossibilité de tirage des cristaux de grands diamètres (grandes tailles).

II.5-Le principe de la méthode de micro-pulling down

A cause de la température de fusion élevée du saphir, la fusion de la matière première (L'alumine) se fait dans un creuset en platine ou en iridium. La fibre formée par le contact du germe avec le liquide se trouvant dans ce creuset, et passant par capillarité vers le bas à travers le canal micrométrique. Le tirage s'exécute vers le bas avec des vitesses bien contrôlées [28].

Pour suivre la procédure de tirage par la micro pulling down, on utilise une caméra CCD [61]. Pendant le tirage il faut conserver l'équilibre du liquide (goutte) qui à l'intérieur du creuset est déjà fondu par chauffage inductif ou résistif. Dans cette technique (μ PD), le contrôle de la géométrie et de l'interface de cristallisation et l'épaisseur de la zone fondue est possible. D'une autre part le contrôle de la position verticale du germe cristallin est nécessaire pour conserver la hauteur du ménisque demandée [62]. La figure suivante illustre le principe de la goutte pendante, et un exemple de connexion réelle (goutte-germe) [1]:

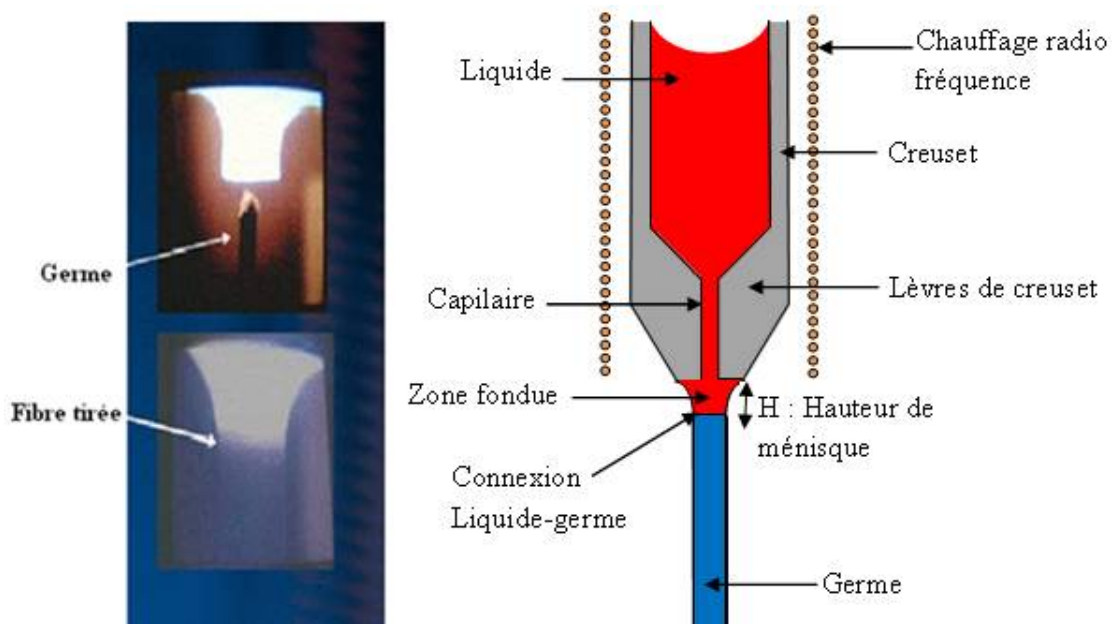


Figure II.3 : Principe de la goutte pendante avec un exemple de connexion réelle.

II.6-Dispositif expérimental de la technique μ -PD

Dans cette partie, nous donnons une description des dispositifs de l'appareil μ -PD qui nécessite différents accessoires [66] nous citons :

- Un creuset.
- Un matériau source.
- Un support autour du creuset du même type que le creuset (After heater).

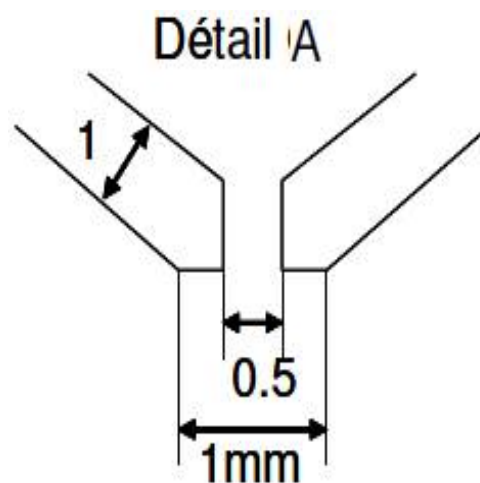
- Une construction céramique autour de creuset et de l'after heater pour minimiser et contrôler les gradients et les pertes de température.
- Un générateur radio fréquence pour le chauffage.
- Un moteur de translation pour l'opération du tirage.
- Une caméra CCD pour suivre la procédure de croissance.

II.6-1-Le creuset

II.6-1-1-Le choix du creuset

Dans la méthode de micro pulling down, le choix et le type du creuset joue un rôle dans le processus dans la croissance cristalline. Dans le cas du saphir où la température de fusion est très élevée, la matière première (l'alumine) est fondue dans un creuset soit en platine ou en iridium [28, 1, 7]. Les fibres peuvent être tirées sous atmosphère contrôlée pour éviter l'oxydation et la détérioration des creusets. Le creuset doit être compatible avec le liquide (pas de réactions chimiques charge-creuset [1]). Donc le choix du creuset est basé en particulier sur [7]:

- a- Sa compatibilité avec le liquide,
- b- La température de fusion du creuset en fonction de la matière à fondre,
- c- Le type de chauffage,
- d- La stabilité chimique,



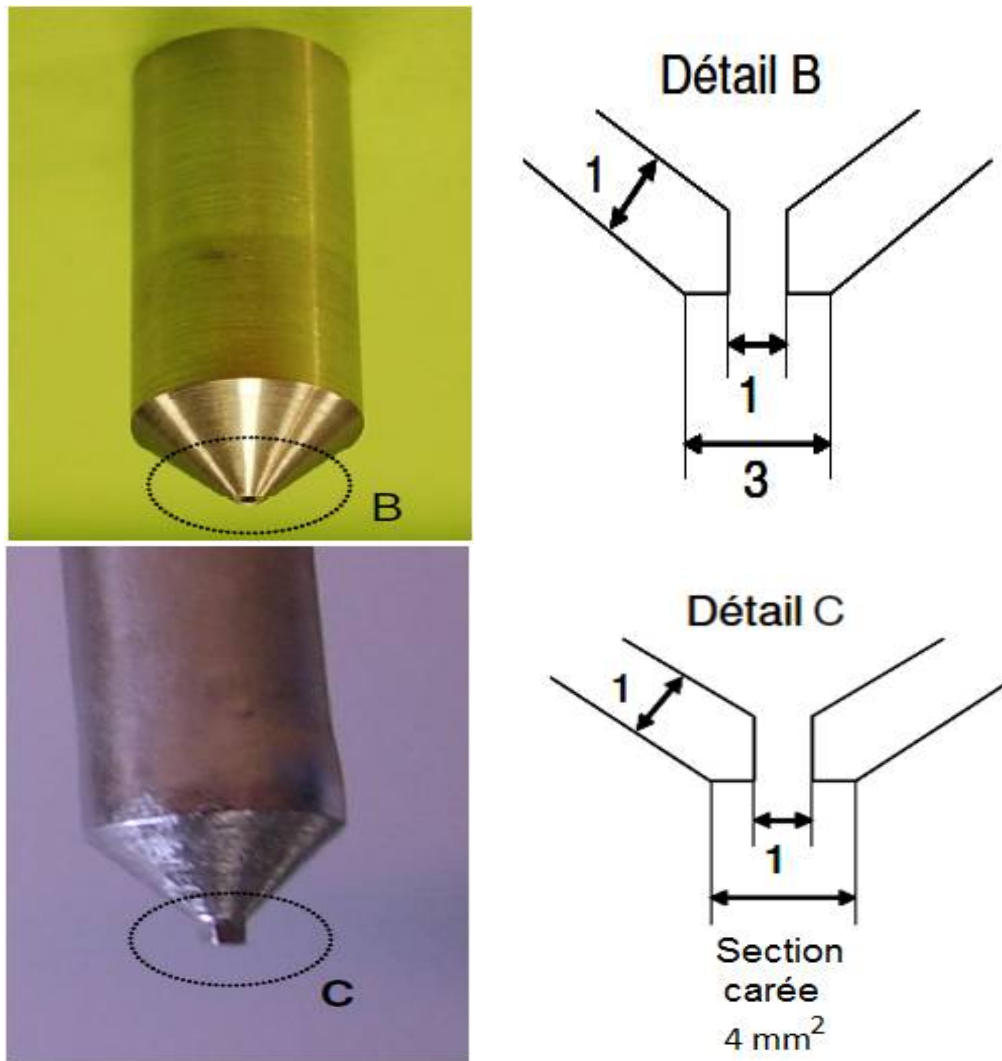


Figure II.4 : Exemples des creusets d'iridium utilisés pour la croissance du saphir par la technique de micro-pulling down [7].

Les figures ci-dessus montrent des exemples des creusets d'iridium utilisés dans la croissance cristalline des fibres du saphir dopé et non dopé en utilisant la méthode de micro pulling-down [7].

II.6-1-2-Protection du creuset

Pour avoir des états stationnaires de tirage il faut minimiser les pertes de chaleur due aux problèmes de convection. Dans ce but le creuset est protégé par une céramique en alumine poreuse (figure II.5) pour avoir une parfaite symétrie thermique radiale et longitudinale par rapport à l'axe de tirage et lors de processus de croissance. Cette configuration céramique aide particulièrement à contrôler et à réduire les défauts thermiques dans les fibres tirées.



Figure II.5 : Construction céramique autour du creuset [7].

II.6-2-L'After heater

Pendant la croissance cristalline par la technique de micro pulling-down, il faut utiliser un After-Heater (AH) en iridium afin de minimiser et réduire les contraintes et les gradients thermiques au cours de ce procédé. Sachant que dans le système de tirage (μ -PD) il n'y a pas de rotation du germe, dans cette configuration le cristal croît dans la direction qui correspond au minimum de chaleur. Par conséquent, si l'équipement ne présente pas une parfaite symétrie thermique le long de l'axe de croissance, le cristal est dévié par rapport à l'axe du germe. La figure suivante montre un exemple d'un After heater en Iridium [1]:

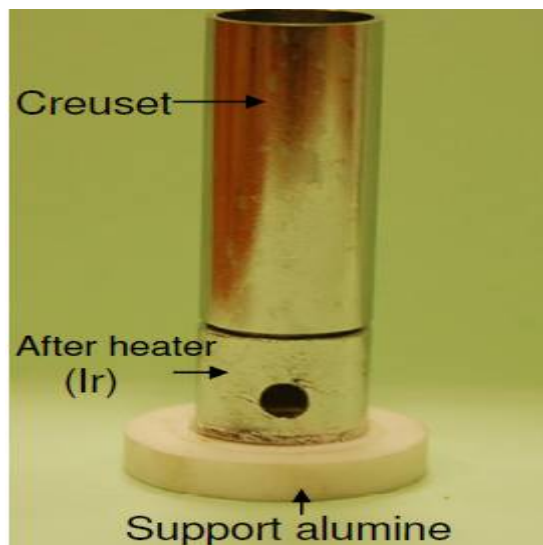


Figure II.6 : Creuset et After heater (Ir) utilisés lors du tirage par μ -PD [7].

II.6-3-Les capillaires utilisés dans le processus micro-pulling down

Si l'on place un germe à l'extrémité inférieure d'une goutte pendante et que l'on établit à ce niveau un gradient de température convenable, on peut tirer un cristal vers le bas, à condition d'alimenter, en même temps, le capillaire en liquide. Cette disposition est valable pour :

- les capillaires de section cylindrique (fibres, barreaux cylindriques).
- Les capillaires de section rectangulaire (plaques).

Les figures ci-dessous montrent deux exemples de tirage l'un d'une fibre à partir d'une goutte et l'autre d'une plaque rectangulaire.

Dans le cas du tirage à partir d'une goutte, le poids de la goutte est égal à la force verticale produite par la tension superficielle [67] :

$$P = 2pK'R_\gamma \quad (\text{II.1})$$

P : Poids de la goutte,

K' : Facteur de proportionnalité propre au capillaire,

R : Rayon d'étranglement (goutte),

γ : Tension superficielle.

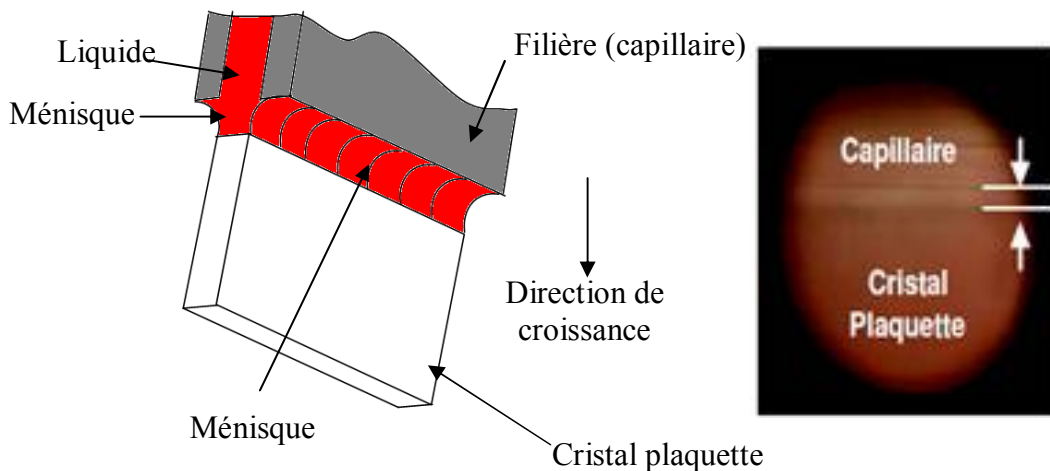


Figure II.7 : Tirage d'une plaque rectangulaire [28].

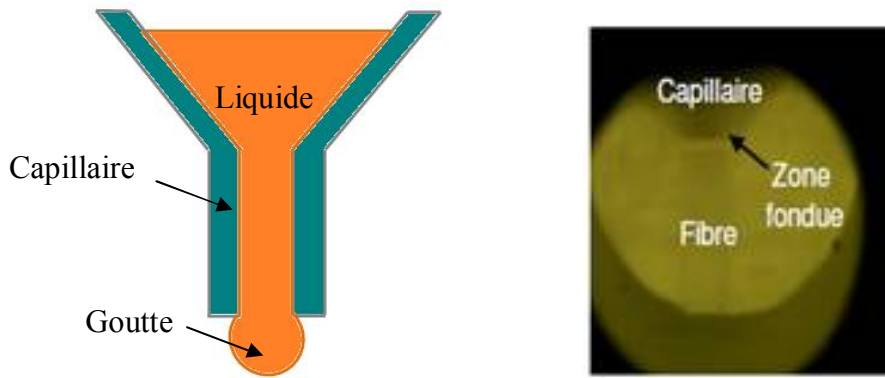


Figure II.8 : Tirage d'une fibre à partir d'une goutte

II.7-Opération de tirage du saphir par la technique de micro-pulling down

Dans cette partie nous citons les étapes suivies expérimentalement lors du tirage du saphir par la technique de micro-pulling down [1]

II.7-1-Etapes de tirage d'une fibre cristalline de saphir

Les étapes suivies pour réaliser cette croissance des fibres monocristallines de composition $Al_2O_3 : Ti^{+3}$ sont les suivantes:

- Fondre la matière première dans un creuset d'iridium.
- Chargement du creuset à froid par la matière première.
- Mise de la chambre sous vide puis remplissage de gaz d'argon.
- Chauffage du creuset jusqu'à la température de fusion du saphir (la fusion de la charge) et obtention d'une goutte pendante.
- Un germe Al_2O_3 monocristallin, orienté suivant une direction bien déterminée, est approché du centre du capillaire.
- Créer une interface solide-liquide entre le saphir liquide et le saphir germe.
- Formation d'un ménisque se fait par le contact du germe avec la goutte pendante au centre du capillaire.
- La dernière étape c'est le démarrage de l'opération du tirage vers le bas. Au cours de cette dernière, il faut contrôler les paramètres suivants :
 - ✓ Puissance de chauffage.
 - ✓ Vitesse de translation (tirage).
 - ✓ Hauteur du ménisque.

Après le tirage il vaut mieux faire la caractérisation et voir les performances lasers de ces fibres. Pour suivre la procédure du tirage on utilise une caméra. D'après la référence [68] on illustre la chambre et la caméra CCD avec un exemple d'une fibre tirée :

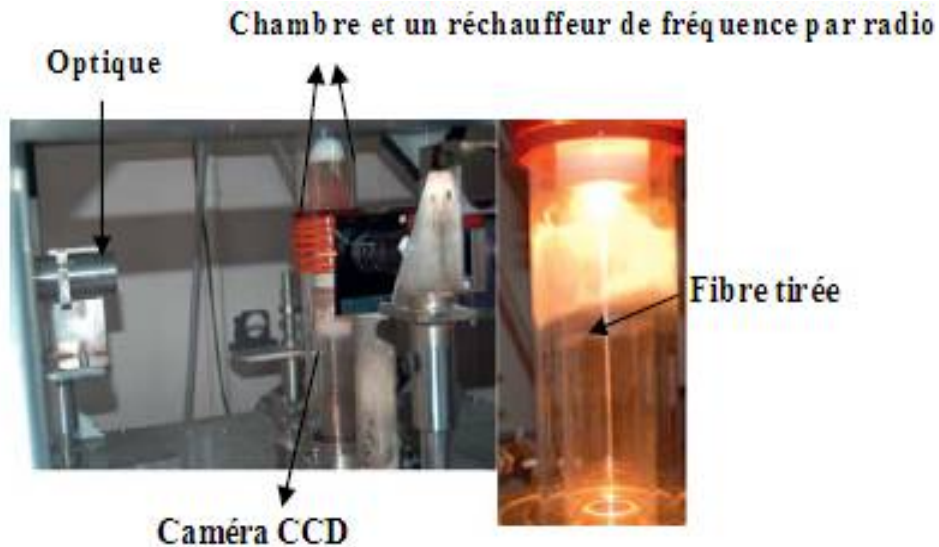
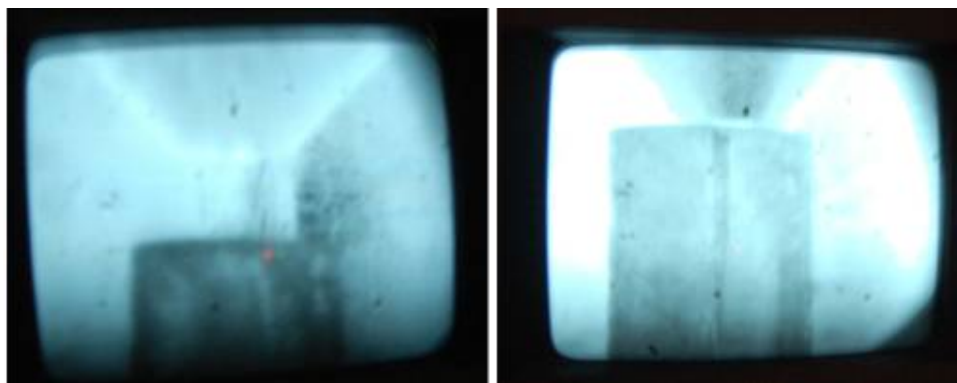


Figure II.9 : L'appareillage de la technique μ P-D à l'ILM (Institut Lumière Matière) en France [68].

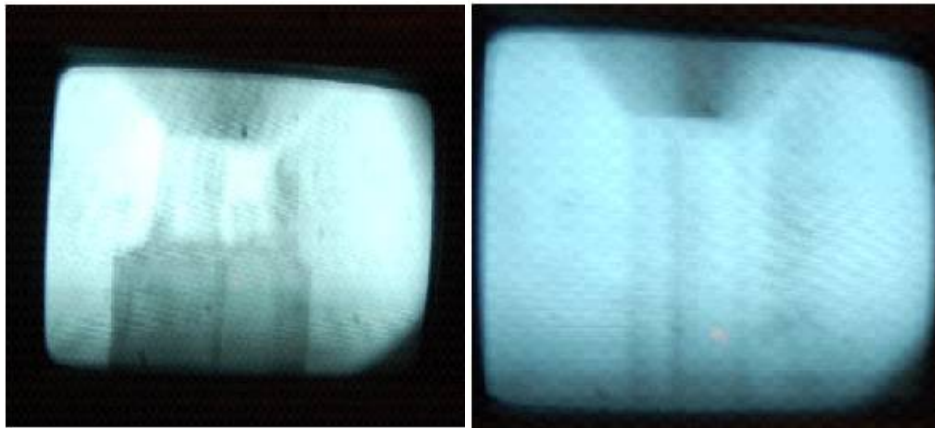
II.7-2-Différentes phases intermédiaires au cours de la cristallogénèse de saphir

Les figures ci dessous décrivent les différentes étapes de tirage d'une fibre cristalline de saphir. Ces étapes représentent les phases intermédiaires (Connexion, Début de tirage, Tirage stationnaire) au cours de la cristallogénèse des fibres cristallines d' Al_2O_3 par la méthode micro-pulling down.



Avant connexion

Connexion



Début de tirage

Tirage stationnaire

Figure II.10 : Etapes de tirage d'une fibre cristalline de saphir [1].

II.7-3-Etude de la qualité cristalline des cristaux saphir-titane

Après le tirage des cristaux de saphir dopé au titane, la caractérisation est une étape très importante pour étudier la qualité cristalline de ces cristaux. Donc dans le but de caractériser qualitativement les cristaux de saphir titane tirés par μ -PD nous avons utilisé :

- Un faisceau laser He/Ne émettant à 633 nm transmis sans guidage dans les cristaux.
- Une caméra CCD a été utilisée pour l'acquisition de son image de sortie.
Pourquoi un faisceau laser He/Ne ?
- La géométrie (la gaussienne) du faisceau He/Ne donne une indication qualitative par rapport à la qualité interne des cristaux. Il est plus confortable de travailler à une longueur d'onde visible que dans l'infrarouge, notamment pour ces mesures.

II.7-4-Conditions d'une croissance stationnaire

Dans le but de réaliser une croissance cristalline d'une fibre stable avec un diamètre constant. Il faut prendre en considération les principes fondamentaux de la croissance cristalline, pour maintenir la forme constante et le volume de la zone fondue [62]. Une croissance cristalline stationnaire correspond à un équilibre du tirage avec un ménisque de hauteur constante. La variation de la vitesse du tirage ou de la puissance de chauffage par l'opérateur provoquerait [28] :

- Variation de la longueur du ménisque,
- Déconnection de la fibre de la zone fondue.

Pour que la zone fondue soit stable avec un volume constant, les conditions de conservation suivantes doivent être respectées :

- ✓ Conservation de masse.
- ✓ Conservation d'énergie.
- ✓ Stabilité de la forme du ménisque (stabilité mécanique du système).

II.7-4-1-Conservation de la masse :

Des perturbations dans les vitesses de tirage déséquilibrent la conservation de la masse, ce qui provoquerait des variations du diamètre de la fibre et de sa composition en raison de la distribution inhomogène de quelques dopants dans la matrice du cristal. Le contact entre le germe et le liquide qui se trouve dans le creuset peut alors être réalisé par l'interface solide – liquide qui établit la croissance du cristal. Quand on néglige la différence de densité entre le liquide et le cristal. Le tirage s'effectue vers le bas avec des vitesses contrôlées reliées entre elles par la relation suivante [33, 1, 7]:

$$(d_{cri})^2 v_{cri} = (d_{cap})^2 v_{cap} \quad (II. 2)$$

d_{cri} : Diamètre du cristal (la fibre).

d_{cap} : Diamètre du capillaire.

v_{cri} : Vitesse du cristal.

v_{cap} : Vitesse d'écoulement moyenne dans le capillaire.

II.7-4-2- Conservation de l'énergie

Au cours de la croissance cristalline par la méthode « micro-Pulling Down », les gradients de température sont élevés à l'interface de cristallisation. Pour cette raison la condition de la conservation de l'énergie doit être satisfaite. La conservation de l'énergie traduit que le flux thermique traversant l'interface de cristallisation est constante et s'exprime par la relation ci dessous [33, 69] :

$$\rho_s \Delta H v_{cri} + K_l G r_l = K_s G r_s \quad (II. 3)$$

Cette équation décrit l'équilibre de transfert de chaleur à l'interface L/S.

$K_l Gr_l$ et $K_s Gr_s$: Flux de chaleur du liquide et du solide respectivement.

ρ_s : Densité du solide.

ΔH : Chaleur latente dégagée, due à la solidification.

K_l : Conductivité thermique du liquide.

K_s : Conductivité thermique du solide.

Gr_l : Gradient de la température dans le liquide.

Gr_s : Gradient de la température dans le solide.

Le premier terme du premier membre de l'équation précédente est très faible par rapport aux deux autres; ceci à cause du gradient de température élevé à l'interface.

II.7-4-3- L'équilibre de la forme de ménisque (Stabilité du format)

La stabilité des fibres et des cristaux formés est liée aussi à la forme et la nature du creuset ainsi qu'à la forme de ménisque [70]. La forme stable de la zone fondue est déterminée par l'angle de mouillage \emptyset [62]. Pour obtenir une forme stable du ménisque il faut que :

$$\emptyset = \emptyset_0$$

\emptyset : L'angle entre le ménisque et l'axe de croissance.

L'angle de mouillage dépend principalement de l'orientation cristallographique, et en particulier aux tensions superficielles entre le solide, le liquide, et le gaz. Mais indépendant des paramètres de croissance (vitesse de tirage, diamètre de la fibre et longueur du ménisque) [28].

\emptyset_0 : L'angle de croissance caractéristique du matériau.

Cet angle traduit la mouillabilité du cristal au contact de la zone fondue. Dans le cas d'une désorientation de la fibre cristalline par rapport à l'axe de croissance, cette dernière peut être ajustée vers sa position initiale par inclinaison. Pratiquement, le système de tirage doit avoir des conditions de tirage stables durant le procédé de cristallogenèse. Ces conditions peuvent être atteintes par :

- Une vitesse de tirage constante.
- Une puissance de chauffage symétrique autour du capillaire et du creuset.
- Eviter toutes les perturbations extérieures.

Pour le saphir la valeur de l'angle de croissance \emptyset_0 est égale à 17° dans la direction de croissance du cristal [0001] [1, 5]. Cet angle est indépendant des paramètres de

croissance, tel que la hauteur de la zone, le diamètre et le taux de croissance de la fibre, il se déduit des tensions superficielles d'équilibre du système entre le liquide, solide, et gaz (contact de trois phases), sa forme se donne par [62]:

$$\cos(\phi_0) = (\gamma_{SG})^2 + (\gamma_{LG})^2 - (\gamma_{SL})^2 / 2(\gamma_{SG})(\gamma_{LG}) \quad (\text{II.4})$$

γ_{ij} : Energie interfacielle entre les interfaces de trois phases (liquide - solide, liquide - gaz, solide - gaz).

II.7-4-4-Effet de l'angle de croissance sur la hauteur de la zone fondue

Les paramètres fondamentaux de la croissance cristalline par la technique μ -PD sont :

- Le diamètre du capillaire du creuset,
- Le diamètre de la fibre,
- Le volume de la zone fondue,
- La hauteur du ménisque.

Ces paramètres permettent le contrôle de la stabilité du tirage des fibres cristallines. La relation entre ces importants paramètres décrit théoriquement par l'équation ci-dessous. Le paramètre le plus important qui détermine l'uniformité de la fibre obtenue c'est la forme de la zone fondue, sa forme se donne par [71, 72] :

$$z(r) = R_c \cos \phi_0 \left[\csc \left(\frac{R_d}{R_c \cos \phi_0} \right) - \csc \left(\frac{r}{R_c \cos \phi_0} \right) \right] \quad (\text{II.5})$$

L'état stationnaire de la croissance cristalline est fixé par la hauteur du ménisque, sachant que s'il y a une variation de la vitesse de tirage ou de la puissance de chauffage par l'expérimentateur, ça se provoquerait une variation de la longueur du ménisque, suivi par une déconnection de la fibre de la zone fondue.

Donc l'équilibre de tirage d'une fibre avec un diamètre constant exige un ménisque de hauteur fixe. Sa forme est décrite par l'expression suivante :

$$H = R_c \cos \phi_0 \left[\csc \left(\frac{R_d}{R_c \cos \phi_0} \right) - \csc \left(\frac{1}{\cos \phi_0} \right) \right] \quad (\text{II.6})$$

Où r est la distance radiale de l'axe de croissance: $R_c \leq r \leq R_d$

R_c : Rayon du cristal, R_d : Rayon du bas du creuset (voir la figure II.13).

\csc : cosh

Dans cette partie, nous avons étudié l'effet de l'angle de croissance sur la forme et la hauteur du ménisque.

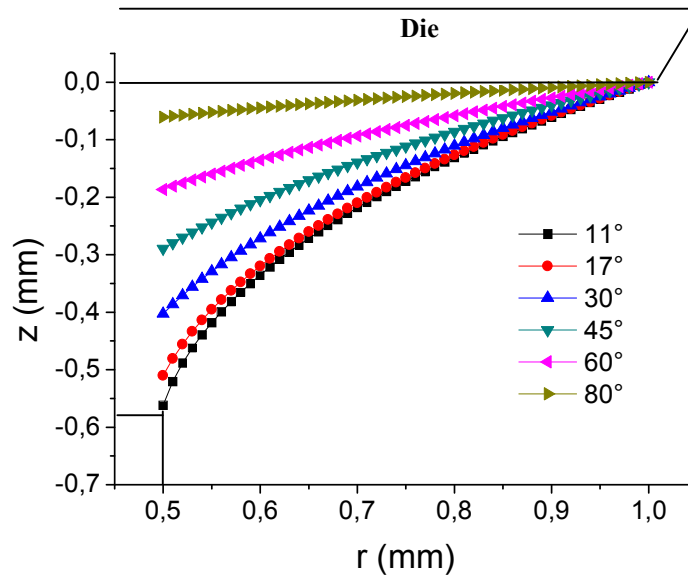


Figure II.11: Variation de la forme de ménisque avec l'angle de croissance [73].

La figure ci-dessus montre la hauteur du ménisque calculée pour différents angles de croissance: (11°, 17°, 30°, 45°, 60°, 80°).

D'après cette figure nous remarquons que la hauteur de la zone fondue diminue lorsque l'angle de croissance augmente comme il est montré ci-dessous. Comme résultat la diminution ou l'augmentation de la hauteur du ménisque provoque une augmentation ou une diminution du diamètre de la fibre, ce qui affecte sur la qualité de la fibre tirée.

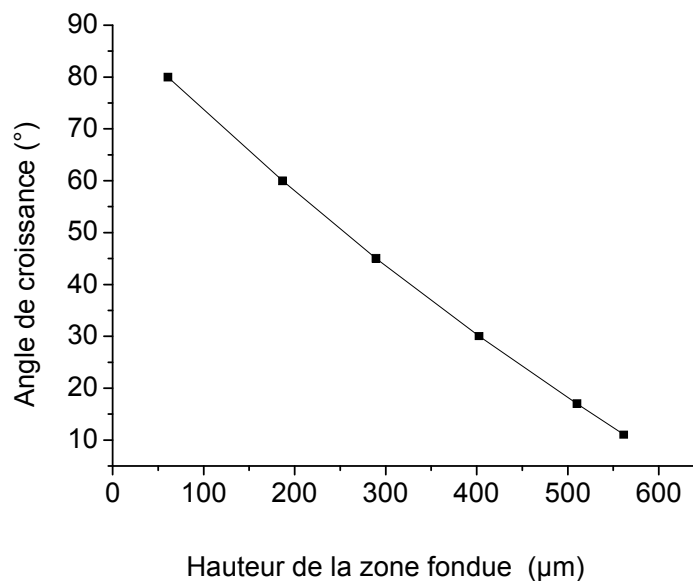


Figure II.12: Variation de l'angle de croissance en fonction de la hauteur de la zone fondue.

II.7-5- Types de convection dans la zone fondue:

L'étude des phénomènes de convection dans la zone fondue est un élément essentiel pour la compréhension des phénomènes régissant la synthèse des fibres. La forme de l'interface de croissance dépend du type et du sens des phénomènes de convection. A cause du gradient thermique élevé proche de la surface libre et de l'interface de cristallisation, Il y a des convections qui gèrent le mouvement dans ces zones, nous citons :

❖ Convection de Marangoni (Convection thermocapillaire)

Ce type de convection est lié aux forces des tensions superficielles entre les phases du système de croissance (tensions superficielles entre liquide-solide, solide-gaz, gaz-liquide).

❖ Convection naturelle

Le mouvement du fluide des zones les plus chaudes vers les zones les plus froides. Ce dernier qui est dirigé par les gradients de température dans le système de croissance a un effet sur la densité des particules fluides ce qui crée ce qu'on appelle la convection naturelle.

❖ Convection de flottabilité

Puisque le système est petit les mesures de température et de concentration sont difficiles [55]. La convection de flottabilité peut être négligeable à cause des dimensions physiques qui sont très petites.

Donc dans le domaine de croissance, l'écoulement, le transfert thermique et massique dans la zone fondue sont influencés par : la poussée d'Archimède, les convections, le rayonnement thermique et le procédé de cristallisation lui-même. Dans les grands creusets comme ils sont employés dans la production industrielle des cristaux de silicium par exemple, la convection dans la zone fondue est très forte par conséquence l'écoulement du liquide devient turbulent et anisotrope (en 3D) [33]. Donc la convection dans la zone fondue joue un rôle très important pour la forme et la qualité des fibres tirées.

II.7-6- Forme de l'interface de cristallisation

L'interface liquide-solide est l'interface qui présente le contact entre le germe et la goutte pendante. Il faut créer une interface pour faire germer les noyaux, et leur croissance se produit par l'adjonction des atomes ou des molécules sur l'interface

entre la phase mère et la nouvelle phase [74]. Selon le type du fluide, on distingue deux types d'interface :

- Interface mobile : c'est l'interface entre le liquide et un corps solide.
- Interface déformable : c'est une interface entre deux fluides (gaz ou fluide).

L'interface entre les phases joue un rôle important dans la qualité des fibres et des cristaux produits. Par conséquent, sa prévision ou sa conception est une tâche importante dans l'optimisation du processus [75]. La forme de l'interface dépend de nombreux paramètres tels que [1]:

- ❖ La taille de la zone fondue.
- ❖ Les conditions de tirage.
- ❖ Les tensions superficielles liquide-solide-gaz.
- ❖ La conductivité thermique du liquide.
- ❖ La profondeur de la pénétration du chauffage dans la zone fondue.
- ❖ Le type des phénomènes de convection.
- ❖ L'émissivité du liquide.

D'une autre part le champ thermique et dynamique affectent la qualité des fibres tirées où ils ont un grand effet sur la forme de l'interface de cristallisation [76, 77]. La distribution des dopants au cours de la croissance cristalline est gérée par deux régions sensibles par rapport au tirage stationnaire par la technique μ -PD, ces deux zones sont illustrées dans la figure ci-dessous :

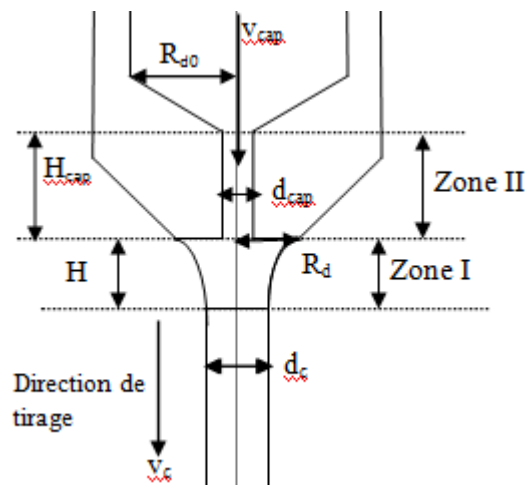


Figure II.13 : illustration des zones qui gèrent la distribution du dopant au cours de la croissance cristalline par μ -PD.

- La région I correspond au liquide dans la zone fondue.
- La région II correspond au liquide dans le capillaire.

La mobilité des dopants de la région I à la région II est induite par la convection naturelle dans la zone fondue. Le mouvement continu du liquide provoquerait un retour partiel du dopant dans le capillaire. Ce retour dépend en particulier soit de la convection naturelle ou de la poussé d'Archimède. Pour avoir des fibres cristallines de bonne qualité optique, l'équilibre de la concentration du dopant entre les régions I et II est essentiel. Parmi les avantages de la méthode de μ -PD, les petites dimensions du système où dans ce cas, la taille du système a un effet sur la variation de la concentration du dopant dans le cristal par rapport à la quantité initiale dans le liquide.

La méthode micro pulling down a la possibilité de tirage des fibres préformées de section circulaire, carrée, des plaques. L'image suivante montre un exemple d'une fibre carrée de saphir tirée par la technique micro pulling down :



Figure II.14 : Saphir cristallin fibré de format carré en bon accord avec le format du creuset utilisé [7].

II.8- Les études théoriques et expérimentales qui ont été réalisés par la μ -PD

Dans les paragraphes suivants nous présentons quelques travaux théoriques et expérimentaux qui ont été réalisés pour la technique de micro pulling down :

S. Wenjia et al (2016) [84]

Une modélisation numérique a été effectuée par Su Wenjia *et al* en 2016 [84] afin d'étudier les causes et les solutions du problème de ségrégation du Ti^{+3} dans la croissance du micro-pulling-down (μ -PD) dans la zone fondue et le long de la fibre de saphir dopé au Ti^{+3} . Ils ont comparé la mesure et la modélisation des champs électromagnétique et thermiques et la concentration des dopants de titane dans la zone fondue et le long de l'axe des fibres. Ils trouvé que pour une vitesse de tirage

faible, une distribution similaire à Scheil se produit le long de la fibre. Ils ont trouvé que pour une vitesse de tirage élevée aucune diffusion en arrière des impuretés et aucun vortex à l'intérieur du capillaire ainsi que pour la vitesse de tirage élevée la distribution de Ti^{+3} est stable et homogène le long de la fibre tirée. D'un autre côté, ils ont montré que la ségrégation radiale est élevée pour les grands rayons de la fibre cristalline et ca due de changement des vortex et des lignes du courants..

Z. Zeng et al (2016) [85]

Dans le cadre des applications lasers, Z. Zeng *et al* (2016) [85] ont étudié la croissance cristalline des cristaux de YAG : Ce^{3+} en utilisant la technique micro pulling down (μ -PD). Des modèles à canaux de diffusion et multicanaux sont proposés pour améliorer l'homogénéité radiale des dopants de Ce^{3+} . Les résultats démontrent que les deux modifications du système micro pulling down peuvent améliorer avec succès l'homogénéité de la distribution radiale des dopants à l'interface liquide-solide. Ils ont montré que le modèle de diffusion à canal, en effectuant un traitement simple sur le fond du creuset, conserve la propriété axisymétrique du modèle original et améliore évidemment l'homogénéité de la distribution de la concentration.

A. Nehari et al (2014) [86]

La publication de A. Nehari *et al* [86] concentrée sur l'étude expérimentale et analytique du problème de la ségrégation chimique lors de tirage des fibres monocristallines du saphir dopé au titane à l'aide de la méthode de micro-pulling down. Un modèle analytique monodimensionnel simple a été développé, il décrit la contribution des paramètres géométriques (ménisque, capillaire et diamètres de la fibre) et physiques (coefficients de diffusion et de ségrégation) sur la vitesse de tirage. Essentiellement deux des régimes de ségrégation ont été trouvés. À des vitesses de tirage élevées, une concentration homogène est obtenue, après une petite initiale transitoire de l'ordre de 1 mm. D'autre part, à des vitesses de tirages lents, des ségrégations Gulliver-Sheil sont obtenus. Ces résultats sont substantiellement supportés par les résultats expérimentaux: μ -luminescence des profils le long des fibres ont démontré l'existence des deux régimes en fonction des vitesses de tirage.

A. Laidoune (2010) [1]

En 2010, A. Laidoune [1] a présenté un travail contenant deux parties, dans la deuxième partie de son étude, il l'a consacrée au développement de la croissance de fibre monocristalline du saphir (Al_2O_3) non dopé et dopé au Ti^{3+} . Il a réalisé la croissance de ces fibres en utilisant la technique micro-pulling down (μ -PD). Il a réussi à faire croître des fibres monocristallines qui sont transparents dans le visible, et ont une bonne qualité macroscopique et microscopique. D'un autre côté il a fait la croissance des fibres du saphir dopée au titane avec différentes vitesses du tirage (0.3mm/min, 0.5mm/min, 0.8mm/min, 1mm/min) selon la direction (0001). Le tirage a été fait avec des formes géométriques contrôlées pour l'amélioration de la qualité des matériaux et ce dans le cadre du développement d'une nouvelle approche de recherche de nouveaux matériaux en particulier dans l'application laser. Les fibres du saphir non dopé et dopé au Ti^{3+} sont représentées dans la figure ci-dessous [1] :

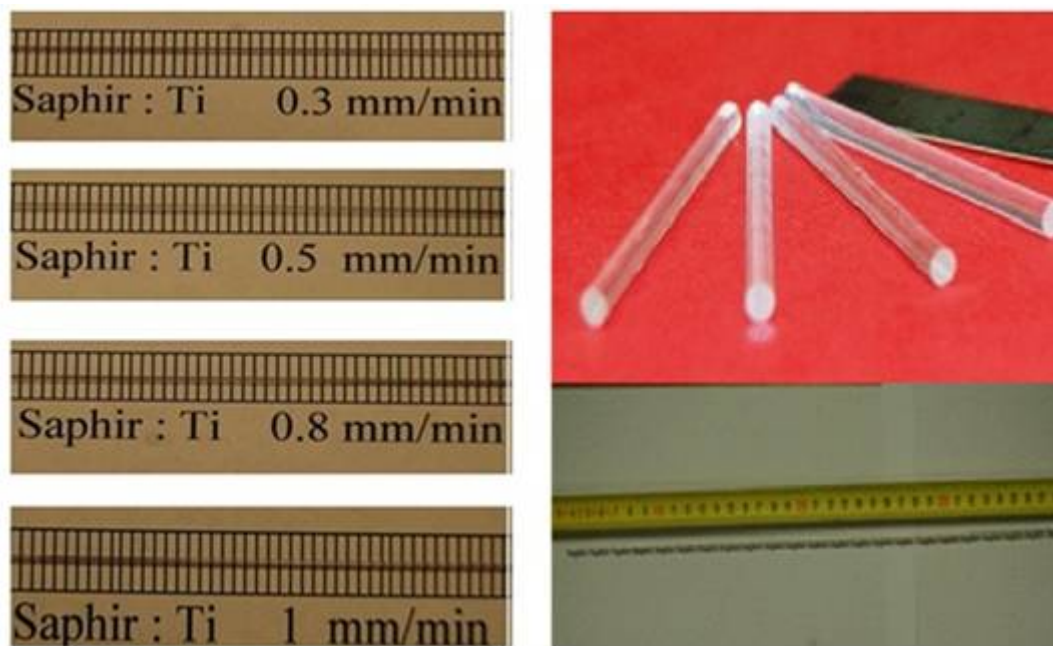


Figure II.15: Fibres monocristalline du saphir dopé au Ti^{3+} Tirées avec différentes vitesses de tirage et fibres du saphir transparentes tirées par la micro-Pulling Down.

A. Nehari, A. Laidoune et al [70]

En 2011 dans cette référence [70] ce groupe a utilisé la technique de croissance micro-pulling down pour croître des fibres monocristaux du saphir de section carrée de surface de $2mm^2$. Dans cette étude expérimentale la quantité totale de la matière première

a été transformée complètement dans le creuset vide jusqu'à la fin de l'opération de croissance qui a été effectuée avec une optimisation dans les conditions du tirage et la forme de la zone fondue. Ils ont cristallisé les fibres du saphir au-dessous de 1 bar de pression dans une atmosphère de gaz protecteur (l'argon) avec des vitesses du tirage compris entre 0.5 et 3 mm/min. Ils ont réussi à croître des monocristaux transparents et homogènes. Les résultats obtenus montrent les homogénéités chimiques élevées et les bonnes propriétés optiques. Les fibres monocristallines du saphir qui sont tirées par ce groupe sont représentées dans la figure ci-dessous :

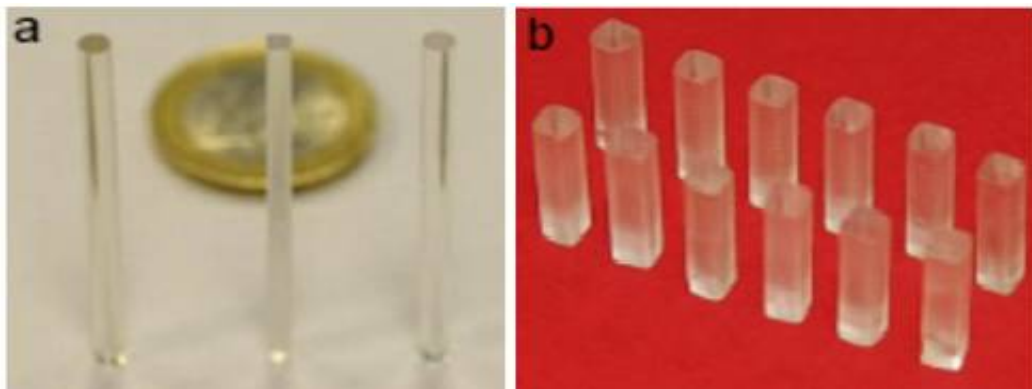


Figure II.16: Fibres monocristallines du saphir tirées par la méthode micro-pulling down [70].

H. S. Fang et al (2010) [61]

En 2011 dans cet article H. S. Fang et *al* [61] ont fait une simulation numérique pour étudier le procédé du tirage micro-pulling down (μ -PD) dans le but de la croissance cristalline des fibres du saphir. Ils ont résolu un système d'équations fondamentales pour déterminer l'écoulement du fluide, le transfert thermique, l'interface du liquide/solide, le champ électromagnétique et aussi pour destiner les caractéristiques du système de croissance. Ils ont remarqué que dans le liquide, la convection de Marangoni est dominante (très forte), et la convection de flottabilité est négligeable, mais aussi que le rayonnement thermique autour de la région de creuset est plus grand à cause des grands gradients thermiques appliqués sur cette dernière. Ils ont étudié la convection du gaz qui est aussi importante en raison de la grande différence de température dans les diverses pièces du four. H. S. Fang et *al* ont trouvé une interface liquide/solide avec une forme convexe qui est conforme à l'observation expérimentale.

II.8-La méthode de Czochralski

II.8- 1-Historique

Depuis 1920 la fabrication du saphir est réalisée par la méthode Verneuil et aujourd'hui des sociétés comme RSA le rubis en France et DJEVA en Suisse utilisent cette technologie pour faire croître du saphir pour la joaillerie. Le tirage des monocristaux du saphir avec des propriétés adéquates pour différentes applications en particulier les lasers et les substrats ne peuvent pas être fabriqués par cette méthode. Par conséquent les applications optiques, électroniques et lasers nécessitant des cristaux de taille (diamètre > 100 mm) et de haute qualité ne peuvent pas être tirés par la méthode Verneuil. Ceci a nécessité le développement de nouveaux procédés après les années 1960. La méthode Czochralski est un procédé qui a permis de faire croître du saphir de larges dimensions et d'améliorer ses performances optiques. Cette technique consiste à amener un germe monocristallin animé d'un mouvement de rotation, à la surface libre du matériau fondu dans un creuset dont la température est proche de la température de fusion de la matière première. Pour le cas du saphir, la charge se fond dans un creuset d'iridium (Ir) ou du molybdène (Mo) ou du tungstène [7].

II.8-2-Première expérience du tirage par la méthode de Czochralski

Cette méthode est nommée d'après la personne à qui on attribue le mérite de l'avoir inventé (le professeur Jan Czochralski) [87]. La première expérience du tirage par cette méthode a été réalisée par le professeur Jan Czochralski en 1916 ; il a réalisé le tirage d'un fil d'étain monocristallin à partir d'un bain fondu [88, 12]. Dans le cas des oxydes utilisés notamment dans le cadre d'applications laser, la méthode de Czochralski a été la première technique permettant d'obtenir de gros monocristaux de qualité optique suffisante.

La figure suivante montre la photo du fondateur de la technique de Czochralski le professeur Jan Czochralski [89] :

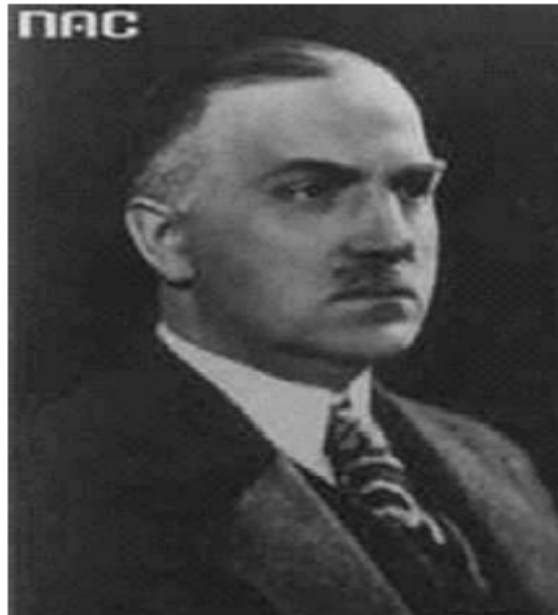


Figure II.17 : Jan Czochralski (1885) [89].

II.8-3-Principe de la méthode Czochralski

Le montage expérimental de la technique de croissance de Czochralski est illustré schématiquement sur la Figure II.18.

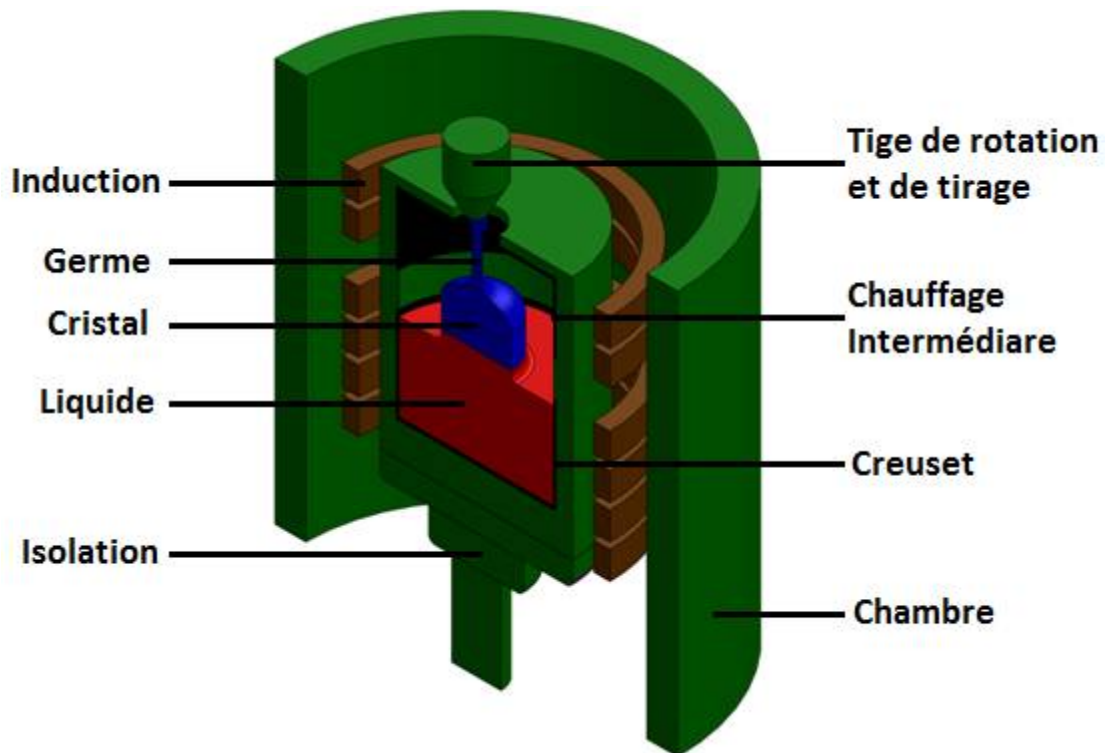


Figure II.18: Schématisation de la technique de croissance cristalline Czochralski.

Dans ce procédé, la matière fondue est placée dans un creuset cylindrique, situé dans un four. Ce creuset est chauffé à une température au-dessus de la température de fusion du matériau utilisé.

Le chauffage du creuset est réalisé par un système de chauffage inductif par radiofréquence. La croissance du cristal cylindrique est réalisée lors du changement de phase qui se produit à l'interface solide-liquide entre le germe de croissance et le bain du liquide (CZ) [90, 91]. Le cristal produit, est tiré verticalement à partir de la matière fondue (alumine liquide) comme il est montré dans la figure II.18.

Le bain se solidifie sur le germe légèrement plus froid. Le cristal formé est extrait en tirant lentement ce germe vers le haut. Le contrôle du diamètre de croissance du cristal se réalise en faisant varier la température du bain ou la vitesse de tirage.

Pour les matériaux non dopés les vitesses du tirage utilisées en technique Czochralski sont de l'ordre de quelques mm/heure. En cas de dopage, notamment en vue d'un effet laser (Néodyme dans YAG par exemple ou Titane dans le Saphir), Il est nécessaire de diminuer fortement ces vitesses jusqu'à quelques dixièmes de mm par heure [92]. Cette réduction a pour effet d'éviter les défauts liés à des phénomènes locaux de surfusion (appelés striations) et d'obtenir une concentration en dopant la plus homogène possible dans le cristal.

La mise au point d'une machine de tirage performante nécessite une régulation fine du générateur alimentant l'inducteur associé à un dispositif de pesée extrêmement stable et sensible [46]. Plus de détails et des explications sur la technique Cz peuvent être trouvés dans un certain nombre de références et d'ouvrages spécialisés en croissance cristalline [91, 93].

La figure ci-dessous montre le système de croissance concernée à la méthode Czochralski (Laboratoire de Czochralski-IKZ) [90].



Figure II.19 : Système de croissance de Czochralski (Laboratoire de Czochralski-diélectriques à IKZ) [90].

II.8-4-Les avantages et les inconvénients de cette méthode

Cette méthode présente de nombreux avantages tels que:

- Le principal avantage de cette technique est que l'interface solide/liquide n'est pas en contact avec le creuset et qu'il n'y a pas limitation à la dilatation ou à la contraction du matériau [29]. L'absence de ce contact entre le cristal et le creuset pendant la nucléation permet une meilleure qualité cristalline par rapport à d'autres méthodes telle que la technique Bridgman,
- Il est indispensable de faire une rotation du germe pour équilibrer la température de manière à homogénéiser le bain et avoir des bons formats circulaires [1].
- L'adaptabilité à la croissance des divers matériaux avec des grandes dimensions (jusqu'à plusieurs mètres de longueur).

- L'utilisation d'un germe orienté permet de contrôler la direction de croissance.
- Pour les matériaux qui n'ont pas des températures de fusion élevées, il y a la possibilité de suivre directement la croissance avec une vision directe de l'interface solide-liquide. Le contrôle visuel permet d'agir en temps réel sur les conditions de croissance (température, vitesse de tirage).
- Pour certains cristaux particulièrement sensibles aux chocs thermiques (LiNbO_3 ou LaTiO_3 par exemple), la méthode de Czochralski permet d'ajouter un four auxiliaire de recuit [94].
- Comme inconvénient, on peut noter que la section de la fibre cristalline obtenue varie habituellement à moins que l'on contrôle et régule avec soin la vitesse du germe cristallin et la température du bain.
- L'inconvénient le plus notable de cette technique est qu'elle est inadaptée à la fabrication des fibres de petites tailles.

II.8-5-L'utilisation de la méthode de Czochralski

La méthode de Czochralski est l'une des méthodes les plus utilisées dans le cadre des applications laser et qui permettent d'obtenir de gros monocristaux de bonne qualité optique [77]. A cause de ses dimensions, cette technique utilise un procédé de croissance de monocristaux de grande dimension (plusieurs centimètres). Ces monocristaux sont utilisés dans l'industrie électronique (cristaux semi-conducteurs de silicium dopé), pour les études métallurgiques. La croissance des germes artificiels est aussi possible par cette technique [95].

II.8-6-Les monocristaux tirés par la méthode de Czochralski

Après la première découverte du cristal laser par la croissance Verneuil, en 1961 l'effet laser est obtenu à $1,064 \mu\text{m}$ par tirage Czochralski dans un monocristal de CaWO_4 dopé Nd [96]. Czochralski est l'un des processus les plus stables dans l'industrie pour la croissance des monocristaux d'oxyde d'alumine (Al_2O_3) de bonne qualité [77].

La technique de croissance Czochralski (Cz) est largement utilisée pour produire des monocristaux d'oxyde de saphir Al_2O_3 et de nombreux autres cristaux d'excellente

qualité optique tels que YAG, LiNbO_3 , GGG, BGO, BaBrCl- BaBrCl: Eu et LGT [97, 98, 99] qui ont de nombreuses applications dans différentes technologies telles que les lasers, l'optique non linéaire et les substrats [100]. On cite particulièrement les aluminates (YAlO_3 , $\text{LaMgAl}_{11}\text{O}_{19}$), silicates (Y_2SiO_5 , Gd_2SiO_5 , Lu_2SiO_5), germanates ($\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$), vanadates (YVO_4), borates ($\text{YCa}_4\text{B}_3\text{O}_{10}$, $\text{GdCa}_4\text{B}_3\text{O}_{10}$), tungstates (CaWO_4), mais également les fluorures (LiYF_4) [101].

II.9- Croissance cristalline du saphir par la méthode Czochralski (Cz)

L'alumine sous forme de poudre est fondue dans un creuset en iridium de diamètre et d'épaisseur bien déterminés. Le chauffage est inductif, en utilisant un générateur Hüttinger à 40 KW de puissance. Un germe de saphir monocristallin orienté est approché du centre de la surface de l'alumine liquide, formant un ménisque et créant une interface solide-liquide. Le germe est ensuite lentement tiré vers le haut, dans le cas du saphir les vitesses de cristallisation sont de l'ordre de 1.5mm à 5 mm/h [7]. La croissance est effectuée en maintenant le cristal en rotation et ça dans le but d'homogénéiser le bain et de contrôler la forme de l'interface de cristallisation. A l'air à haute température L'iridium s'oxyde fortement, ce qui nécessite de tirer les cristaux dans une enceinte à l'abri de l'air sous (argon) [7].



Figure II.20 : Machine de tirage Czochralski. Institut ILM. Lyon-France [7].

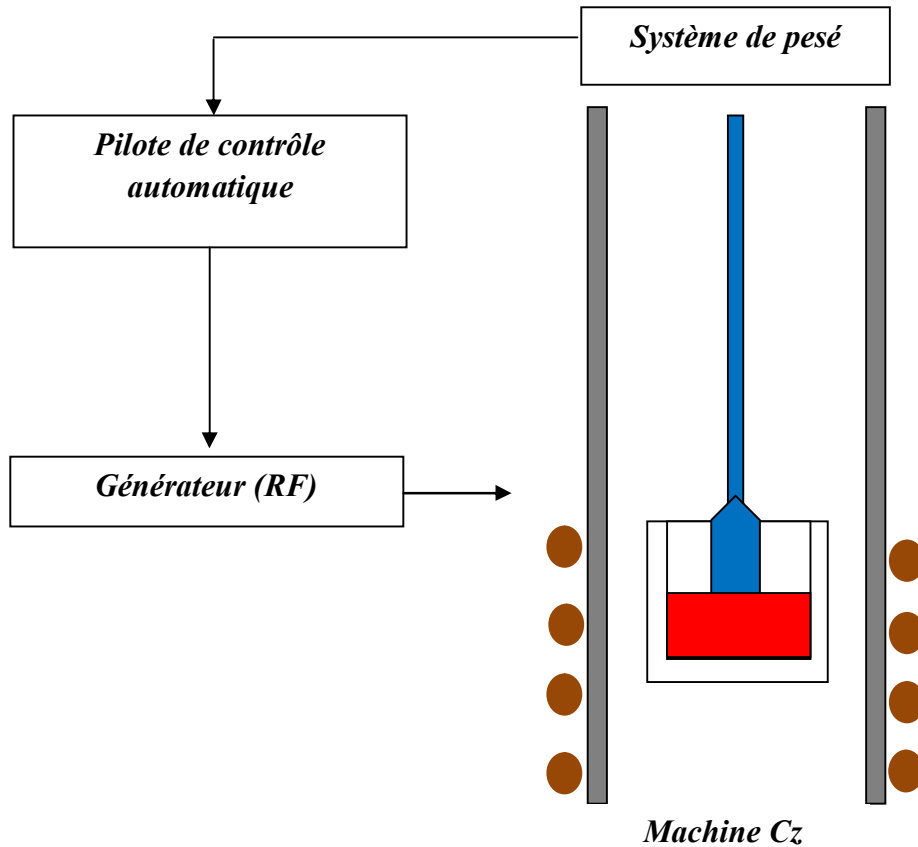


Figure II.21: Schéma du principe du contrôle automatique de diamètre par la technique Czochralski.

II.9-1-Les différentes étapes de tirage du saphir par la méthode Czochralski

Afin d'avoir une bonne homogénéité thermique et d'éviter l'endommagement des isolants céramiques et la fatigue du creuset. Dans le cas du saphir le cycle de chauffage est d'environ 20 heures avec une phase d'homogénéisation et de stabilité de la température pendant 2 heures [7].

- Une première phase consiste à fondre la matière première.
- La deuxième phase c'est la connexion solide-liquide qui se fait par le contact du germe en rotation qu'est approché lentement de la surface du bain liquide.
- La température du bain doit être adaptée pour que le germe reste en contact avec le bain sans rupture de ménisque. Dans ce cas le liquide monte autour du germe par capillarité et forme un ménisque.

La croissance du cristal de saphir se déroule alors en quatre étapes [7] :

- a) L'affinage: L'opération d'affinage consiste à croître un cristal cylindrique avec un diamètre inférieur ou égal à celui du germe, afin d'éliminer les grains d'orientation différente qui peuvent apparaître lors de contact avec la masse fondue.
- b) La tête: Dans cette phase une augmentation d'une façon progressive du diamètre du cristal de saphir afin d'atteindre la valeur du diamètre nominal. On obtient un tronçon conique.
- c) Le corps: Afin d'obtenir un cristal de format cylindrique bien justifiée duquel seront extraits les morceaux utiles, il faut que le diamètre est maintenu constant durant toute cette phase de croissance.
- d) Le pied du tirage: Dans cette phase on peut soit relever rapidement le cristal, soit le relever plus lentement en réchauffant progressivement le bain afin de diminuer le diamètre du cristal jusqu'à la rupture du contact avec le bain. La température du bain est ensuite abaissée progressivement jusqu'à la température ambiante.

La figure suivante montre le cycle de chauffage de la charge d'alumine jusqu'à la fusion.

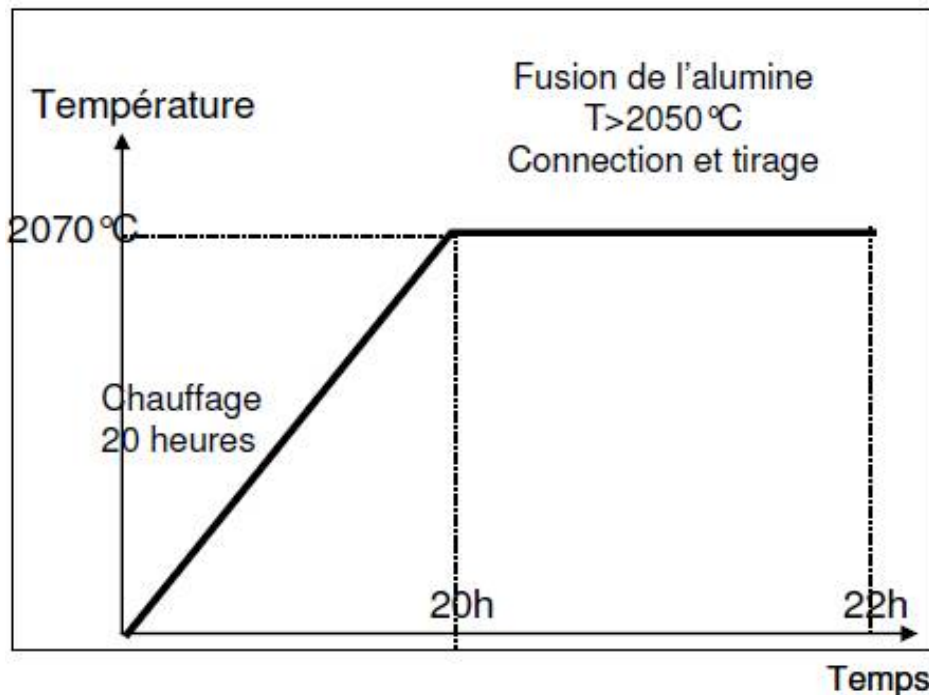


Figure II.22 : Cycle de chauffage de la charge d'alumine jusqu'à la fusion [7].

II.9-1-1-Chauffage du bain

Le type du chauffage dans le processus de croissance de Czochralski pour le saphir est un chauffage par induction appliqué au creuset qu'est l'élément chauffant lors ce procédé. Dans ce cas, le liquide est plus chaud au contact des parois du creuset que la partie centrale, alors la des courants de convection dans le liquide sont provoqués par ces importants gradients thermiques [7].

II.9-1-2-L'isolation thermique

Dans la croissance cristalline du saphir, l'isolation thermique se fait par la céramique autour du creuset. Cette céramique a un effet sur les gradients thermiques radiaux, elle est utilisée pour maintenir le bain à l'état fondu, si elle est insuffisante, une grande partie de la chaleur est évacuée à l'extérieur du montage [7, 90].

II.9-1-3-Contrôle des convections (libre et forcée) au sein du creuset Cz

Le contrôle des mouvements de convection naturelle et forcée au sein du creuset est très important pour l'obtention d'une interface plane permet de minimiser la formation de facettes et d'éviter la présence des défauts cristallins au centre du cristal [102]. Il est possible par simulation numérique des écoulements dans le creuset (en fonction du diamètre du cristal) de déterminer une valeur critique de la vitesse de rotation du cristal pour laquelle l'interface de cristallisation devient plane.

II.9-1-3-1-Vitesse de rotation du cristal (Convection forcée)

Dans la technique de Czochralski, la convection forcée (rotation du cristal) influence fortement la qualité du cristal tiré et offre la possibilité d'exercer un contrôle direct sur l'ensemble de la croissance. La première utilité de cette rotation est de s'affranchir des inévitables écarts à la symétrie thermique du système [103]. Le renforcement de la symétrie de révolution du processus permet d'obtenir des cristaux de section circulaire.

Une modification considérable de l'interface solide-liquide est effectuée par la rotation du cristal qui entraîne une partie du liquide dans son mouvement ce qui bouleverse localement les mouvements de convection naturelle.

- ❖ Lorsque la vitesse de rotation du cristal est faible, seuls les mouvements de convection naturelle sont présents dans le bain. La forme de l'interface solide-liquide qui en résulte est convexe (Figure II.23) [104].
- ❖ Lorsque la vitesse de rotation du cristal est grande (rapide), un mouvement de succion du liquide situé sous le cristal vers l'interface solide-liquide. La forme de l'interface solide-liquide qui en résulte est concave.
- ❖ Si les deux effets de la convection libre et de la convection forcée (rotation du cristal) sont égaux, dans ce cas la forme de l'interface de cristallisation qui en résulte est plane.

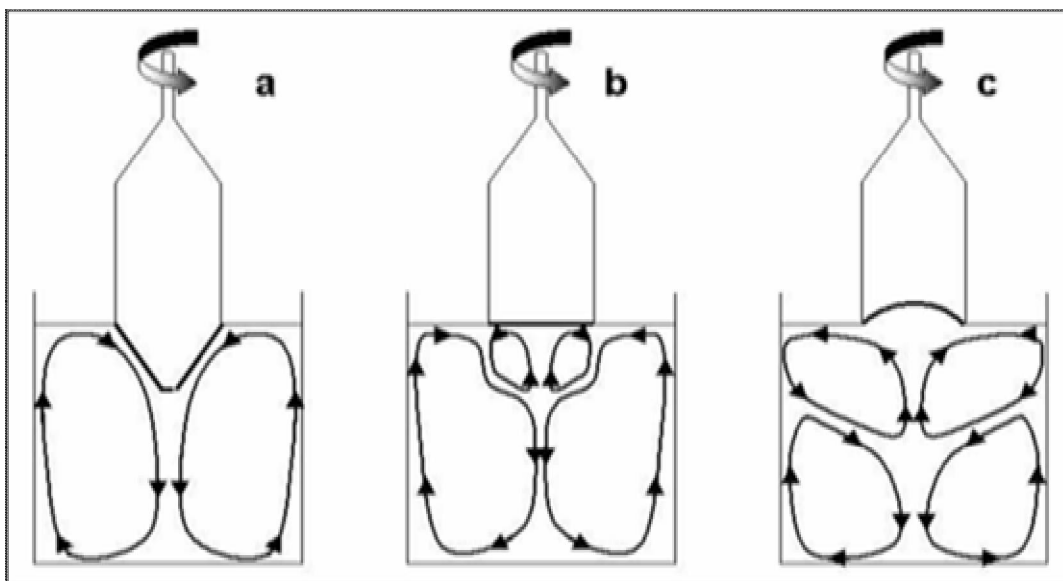


Figure II.23: Schéma des courants de convection dans le bain fondu. (a) rotations lentes, interface convexe. (b) rotations idéales, interface plane. (c) rotations rapides, interface concave [105].

II.10-Quelques études numériques et expérimentales réalisés par la méthode de Czochralski.

Différents types de mécanismes de transfert de chaleur existent dans les configurations de croissance Czochralski (Cz) nous citons la conduction, la convection libre, forcée à l'intérieur du liquide fondu, ainsi que les échanges des rayonnements entre les surfaces exposées dans le procédé de croissance. La qualité du cristal tiré est directement liée aux tous ces phénomènes de transport dans le processus Cz. Dans ce cadre plusieurs recherches scientifiques ont été réalisées.

Dans cette partie nous citons quelques travaux concernant la croissance cristalline du saphir par la méthode de Czochralski.

Carmen Stelian et al (2017) [106]

Dans le cadre des applications lasers, Carmen Stelian *et al* (2017) [106] ont étudié la distribution du Ti^{+3} dans les cristaux d' Al_2O_3 lors de la croissance cristalline par la méthode de Kyroupolos qu'est un procédé dérivé de la méthode de Czochralski. Ils ont comparé entre les résultats numériques et l'expérimentation. Ils ont montré que l'analyse transitoire du transfert de chaleur, de la convection dans le liquide fondue et du transport des espèces donne une bonne homogénéisation du Ti^{+3} dans le cristal du saphir au cours du processus de solidification. Les profils de concentration radiale en forme de U mesurés sont expliqués en tenant compte de la forte courbure de l'interface de croissance. Ils ont montré aussi qu'il y a des grandes variations radiales de la concentration de Ti^{+3} dans les lingots de saphir qui sont néfastes pour la qualité optique des cristaux utilisés pour les applications laser. Leur modélisation numérique a montré que la forme de l'interface liquide-solide fondue est significativement affectée par l'effet radiatif interne dans le lingot de saphir lors de la croissance. ses résultats indiquent que la courbure de l'interface est plus faible pour un coefficient d'absorption faible. ils ont conclu que La qualité optique des cristaux pourrait être améliorée en réduisant la concentration initiale de Ti^{+3} dans la masse fondue.

M.H. Tavakoli (2014) [97]

Dans cette référence [97], lors de la croissance cristalline du saphir à l'aide de la méthode de Czochralski, une analyse globale de la convection du gaz, le rayonnement interne et l'échange radiatif entre les surfaces de la configuration de système de croissance a été effectuée. La génération de chaleur, de l'écoulement du fluide et du transfert de chaleur dans une configuration en oxyde Czochralski sont effectués en utilisant la méthode des volumes finis. Ils ont obtenu des résultats numériques qui montrent le rôle important joué par la convection du gaz, le rayonnement interne et l'échange radiatif entre les surfaces sur les aspects thermiques de la croissance des cristaux d'oxyde Czochralski dans le champ de température ainsi que le renforcement vers le cristal. En fait pour la croissance des cristaux Czochralski à haute température, le rayonnement thermique devient le principal mécanisme de transfert de chaleur. Ils ont conclu que l'hydrodynamique et les propriétés des matières fondues et du gaz sont

d'autres facteurs importants qui influencent de façon marquée le réglage de la forme de l'interface de cristallisation.

A. Nehari (2011) [7]

Des cristaux de saphir ont été tirés en utilisant des installations de croissance du ILM (Institut Lumière Matière- Lyon- France (Czochralski, micro-pulling down) et de la société RSA le Rubis (EFG) qui ont des paramètres de fonctionnement différents (chauffage, atmosphère, creuset). Ces croissances cristallines sont réalisées dans le cadre de valider la qualité des millibilles d'alumine alpha ($Al_2O_3-\alpha$) de géométrie sphérique, de haute pureté synthétisées par un nouveau procédé industriel a été mis au point par ce groupe. Le principe de ce procédé est basé sur l'écoulement goutte à goutte de l'alumine fondue à travers des filières situées sous le creuset. Les études réalisées dans ce travail ont néanmoins visé à des descriptions qualitatives et quantitatives des phénomènes. La simulation et la modélisation du transfert thermique autour du creuset en iridium a été réalisé dans le but de maîtriser le système et le contrôle continu du procédé [7].

Chung-Wei Lu et al. (2010) [77]

En 2010 Chung-Wei Lu et *al* ont exposé une étude numérique dans la référence [77], lors de la croissance cristalline du saphir dans un four avec un chauffage du type inductif en utilisant la méthode Czochralski. Ils ont montré numériquement que l'interface liquide/solide a une forme convexe, ils ont trouvé que cette interface est déterminée principalement par le transfert de chaleur dans le système de la croissance, et ils ont pu montrer que les grandes valeurs de la température et de vitesse du tirage diminuent la convexité de l'interface de cristallisation.

M. H. Tavakoli and H. Wilke (2007) [107]

Dans ce travail [107] Tavakoli *et al* ont présenté une étude numérique bidimensionnelle de la croissance cristalline pour une configuration des oxydes par la méthode de Czochralski. Les résultats présentés dans cet article montrent le rôle important de la rotation du germe et son influence sur la forme de l'interface liquide-solide au cours du processus de croissance. Ils ont trouvé que la forme de l'interface de cristallisation est très sensible au transfert de chaleur par convection dans le liquide

fondue et dans le gaz. Ils ont trouvé que l'interface L/S devient convexe vers la masse fondue dans le cas où l'écoulement naturel proche de l'interface liquide-solide est formé principalement par la convection naturelle et de l'effet Marangoni,. Lorsque L'écoulement près de l'interface liquide-solide est effectué par la convection forcée (rotation du germe), l'interface devient plus concave vers le liquide fondu à mesure que la vitesse de rotation du germe augmente.

Conclusion

La croissance cristalline par la méthode Czochralski nécessite un contrôle strict de l'écoulement et du transfert de chaleur dans le liquide (la matière première fondu dans le creuset) afin d'obtenir des cristaux de bonne qualité ayant des propriétés optiques thermiques et mécaniques adéquates. En effet la distribution de température et la convection forcée dans le creuset au cours du processus de fabrication sont des facteurs pertinents qui affectent largement sur les différentes propriétés des cristaux tirés.

L'écoulement et le transfert de chaleur dans la configuration de Czochralski sont décrits par un certain nombre de paramètres de contrôle (nombres adimensionnels), nous citons :

- Rayleigh (Ra), qui traduit la compétition entre la poussée d'Archimède et les effets dissipatifs de la traînée visqueuse et de la diffusion de la chaleur.
- Reynolds (Re), qui représente le rapport entre les forces d'inertie et les forces de dissipation visqueuse
- Marangoni (Ma), qui représente le rapport entre les effets relatifs de la tension de surface et des forces visqueuses.
- Prandtl (Pr), qui montre l'importance des effets visqueux par rapport aux effets thermiques.
- Richardson (Ri) représente l'effet de la convection libre par rapport à la convection forcée.

L'effet de ces nombres adimensionnels sur l'écoulement et le transfert de chaleur dans le creuset Cz sera présenté dans le chapitre suivant.

Chapitre III

Simulation de la Technique de Czochralski

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats obtenus lors de la modélisation de la croissance cristalline du saphir (Al_2O_3) avec la méthode de Czochralski. Nous avons réalisé une simulation numérique tridimensionnelle en utilisant le code Fluent 6.3. Le but de cette partie de notre travail est d'améliorer la qualité du cristal tiré en contrôlant les fluctuations de la température et de la vitesse du liquide fondue dans le creuset. Dans la première partie de ce chapitre (étude de la convection libre), nous avons étudié l'effet du nombre de Rayleigh en autre terme l'effet du chauffage du creuset sur les fluctuations de la température juste près de l'interface de cristallisation. La deuxième partie (étude de la convection forcée) correspond à la visualisation des fluctuations de température juste en dessous de l'interface liquide-solide en variant la vitesse de rotation du cristal. D'un autre coté nous avons étudié l'effet de la vitesse de rotation du germe sur la forme de l'interface en cherchant la vitesse optimale qui donne une forme plane de interface L/S qui contribue d'une façon directe dans la qualité du cristal tiré. Les résultats obtenus dépendent de :

- *La symétrie de l'écoulement dans le creuset.*
- *Le transfert de chaleur convectif.*
- *La vitesse optimale de rotation du cristal.*
- *L'effet du chauffage du creuset sur la vitesse optimale.*
- *La variation temporelle de la température.*
- *Les fluctuations de la température juste au dessous de l'interface L-S.*

III.1-Système de croissance de Czochralski

Le système de croissance de la technique Czochralski est illustré schématiquement sur la Figure III.1. Le domaine de notre étude se concentre sur le creuset qui contient le liquide qu'est représenté en couleur rouge comme il est montré ci-dessous (Fig III.2).

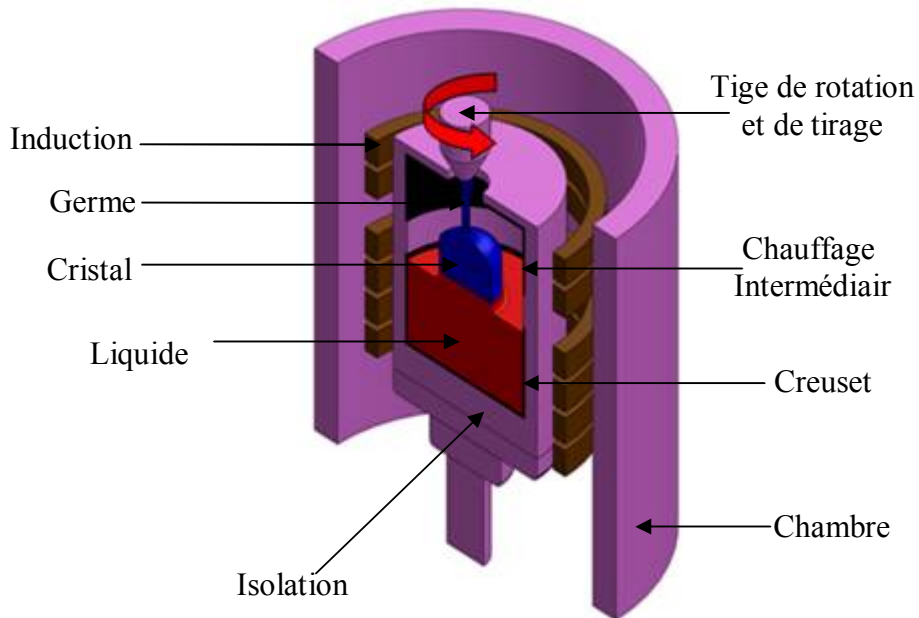


Figure III.1 : Schématisation de la technique de croissance cristalline Czochralski.

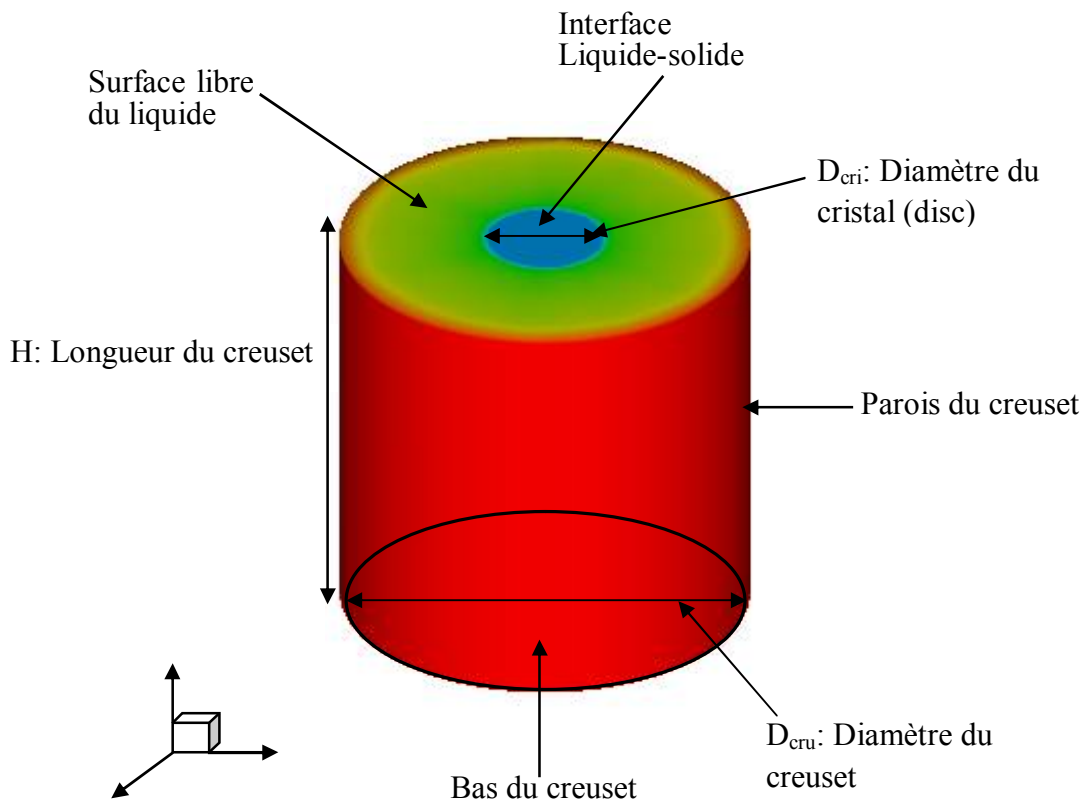


Figure III.2 : Schématisation du creuset de Czochralski (géométrie du calcul).

La figure III.2 montre la géométrie du creuset utilisée dans la technique de Czochralski. Dans notre modélisation nous avons utilisé les dimensions suivantes : la hauteur du creuset H égale à $0.1m$, son rayon est de $R_{cru} = 0.05 m$. Le diamètre de l'interface liquide/solide est le diamètre du cristal $D_{cri} = 0,03 m$. Dans la figure ci-dessous, la couleur rouge représente l'alumine fondue dans le creuset, la couleur bleue représente l'interface entre le cristal et le liquide et la couleur verte est la surface libre.

III.2-Les hypothèses simplificatrices

Lors de nos simulations nous avons utilisé les hypothèses simplificatrices suivantes :

a) **Pour le fluide (l'alumine fondue)**

- Le fluide est incompressible et Newtonien.
- Les forces externes se réduisent aux forces gravitationnelles.
- L'approximation de Boussinesq considérée valable.
- La déformation de la surface libre est négligée (forme plane).
- Nous supposons que l'épaisseur du fluide reste constante dans le creuset.

b) **Pour le creuset**

- La température de chauffage des parois latérale du creuset est considérée constante.
- La température de bas du creuset (bottom) est également constante.
- Le creuset est immobile.
- Ecoulement dans le creuset supposé laminaire.

c) **Pour le cristal**

- Le diamètre de cristal est considéré constant.
- La vitesse de tirage du cristal est considéré nulle. En effet la vitesse de tirage est de l'ordre de quelques millimètres par heure qui beaucoup plus faible que la vitesse de rotation du cristal.
- Le cristal n'est pas simulé mais traité comme condition limite.

III.3-Les équations gouvernantes

Le liquide fondu est considéré comme un fluide incompressible visqueux newtonien gouverné par les équations de Navier-Stokes instationnaires en utilisant l'approximation de Boussinesq. Le transfert de chaleur dans la matière fondue est modélisé par l'équation d'énergie sans génération de chaleur à l'intérieur du fluide, où toutes les propriétés physiques sont

indépendantes de la température. Nous utilisons un modèle complet de volume fini tridimensionnel exprimé en coordonnées cylindriques (r, θ, z) , où l'alumine dans le creuset est étudiée dans deux cas : le cas d'un cristal non tournant et le cas du cristal tournant à une vitesse de rotation ω_{cri} . La rotation du cristal est introduite dans le modèle sous la forme d'une condition limite au niveau de l'interface entre le cristal et le liquide fondue. Les équations fondamentales sont écrites comme suit:

Équation de la composante radiale de la quantité de mouvement:

$$\begin{aligned} \frac{\partial u_r}{\partial t} + u_r \frac{\partial u_r}{\partial r} + \frac{u_\theta}{r} \frac{\partial u_r}{\partial \theta} - \frac{u_\theta^2}{r} + u_z \frac{\partial u_r}{\partial z} = \\ - \frac{1}{\rho_m} \frac{\partial P}{\partial r} + \nu \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial u_r}{\partial r} \right) - \frac{u_r}{r^2} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 u_r}{\partial \theta^2} - \frac{2}{r^2} \frac{\partial u_\theta}{\partial \theta} + \frac{\partial^2 u_r}{\partial z^2} \right) + \frac{1}{\rho_m} (\rho g_r) \end{aligned} \quad (III.1)$$

Équation de la composante azimutale de la quantité de mouvement:

$$\begin{aligned} \frac{\partial u_\theta}{\partial t} + u_r \frac{\partial u_\theta}{\partial r} + \frac{u_\theta}{r} \frac{\partial u_\theta}{\partial \theta} - \frac{u_r u_\theta}{r} + u_z \frac{\partial u_\theta}{\partial z} = \\ - \frac{1}{\rho_m} \frac{1}{r} \frac{\partial P}{\partial \theta} + \nu \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial u_\theta}{\partial r} \right) - \frac{u_\theta}{r^2} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 u_\theta}{\partial \theta^2} + \frac{2}{r^2} \frac{\partial u_r}{\partial \theta} + \frac{\partial^2 u_\theta}{\partial z^2} \right) + \frac{1}{\rho_m} (\rho g_\theta) \end{aligned} \quad (III.2)$$

Équation de la composante axiale de la quantité de mouvement:

$$\begin{aligned} \frac{\partial u_z}{\partial t} + u_r \frac{\partial u_z}{\partial r} + \frac{u_\theta}{r} \frac{\partial u_z}{\partial \theta} - \frac{u_\theta^2}{r} + u_z \frac{\partial u_z}{\partial z} = \\ - \frac{1}{\rho_m} \frac{\partial P}{\partial z} + \nu \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial u_z}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 u_z}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} \right) + \frac{1}{\rho_m} (\rho g_z) \end{aligned} \quad (III.3)$$

Équation de l'énergie:

$$\frac{\partial T}{\partial t} + u_r \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{u_\theta}{r} \frac{\partial T}{\partial \theta} + u_z \frac{\partial T}{\partial z} = \alpha \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 T}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right] \quad (III.4)$$

Équation de Continuité:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial (ru_r)}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_\theta}{\partial \theta} + \frac{\partial u_z}{\partial z} = 0 \quad (III.5)$$

Le tirage dans le processus de Czochralski se fait vers le haut, donc le terme de la gravité selon la direction axiale est pris en considération. Dans ce cas la gravité selon les deux directions radiale et azimutale g_r, g_θ est négligeable.

III.4-Effet du maillage

Pour analyser l'effet du maillage, nous avons défini 4 maillages, le premier étant le plus fin et le dernier le plus grossier. Ces maillages ont été testés dans le cas du régime stationnaire. Le tableau ci-dessous montre le nombre des Nœuds pour chaque maillage.

Le maillage est raffiné à l'interface de solidification et dans la partie centrale qui subit la majorité des déformations et des phénomènes thermiques importants.

Maillage	M1	M2	M3	M4
Nombre de Nœuds	32104	95904	149040	322461

Les figures montrent les courbes de variation de la température le long de l'axe vertical (axe de symétrie) pour les différents maillages. Ainsi que la variation de la vitesse axiale, radiale et de la température le long de l'axe horizontal $z = 0.098 \text{ mm}$ (2 mm en dessous de l'interface de cristallisation partie critique concernée par les fluctuations).

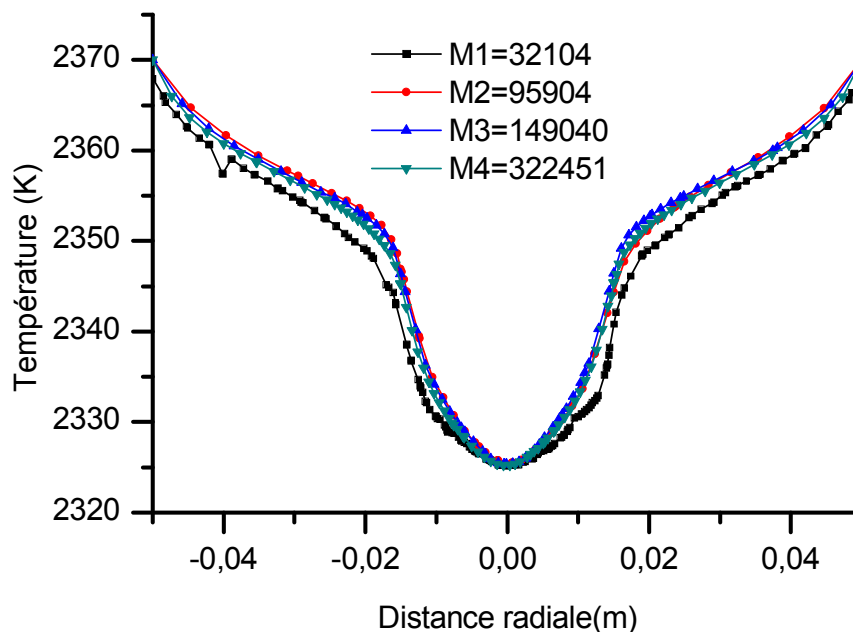


Figure III.3 : Profils de température radiale juste en dessous de l'interface liquide/solide ($z = 0.098 \text{ m}$, $\theta = 0$).

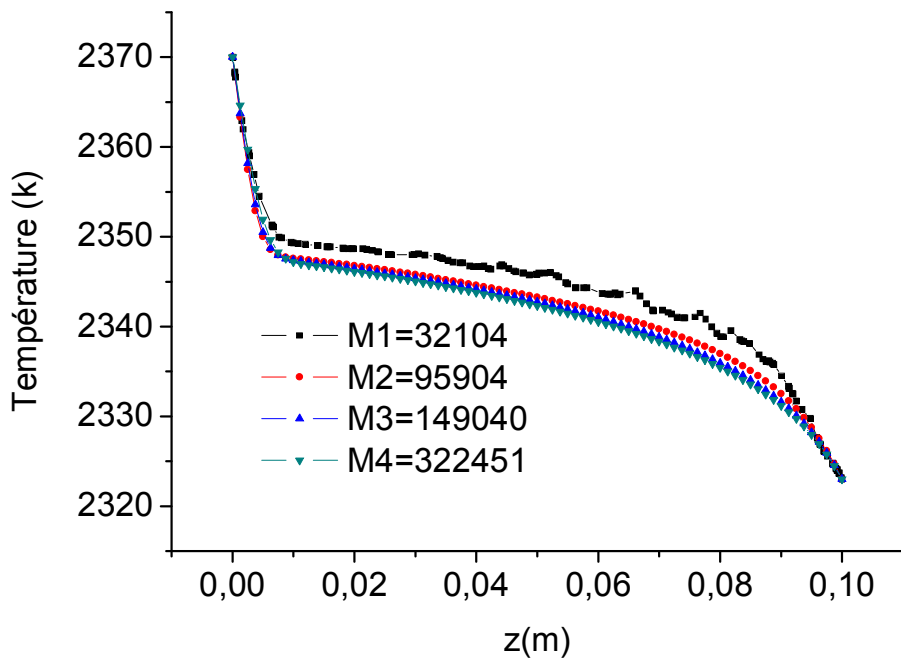


Figure III.4 : Profils de température le long de l'axe vertical (axe de symétrie du creuset).

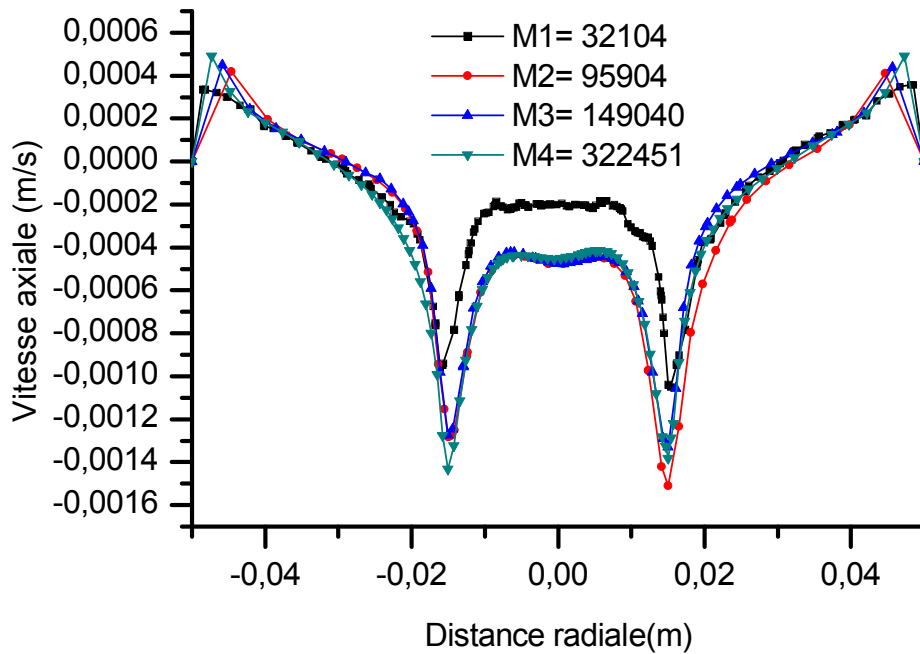


Figure III.5 : Profils de vitesse axiale juste en dessous de l'interface liquide/solide

($z = 0.098 \text{ m}, \theta = 0$).

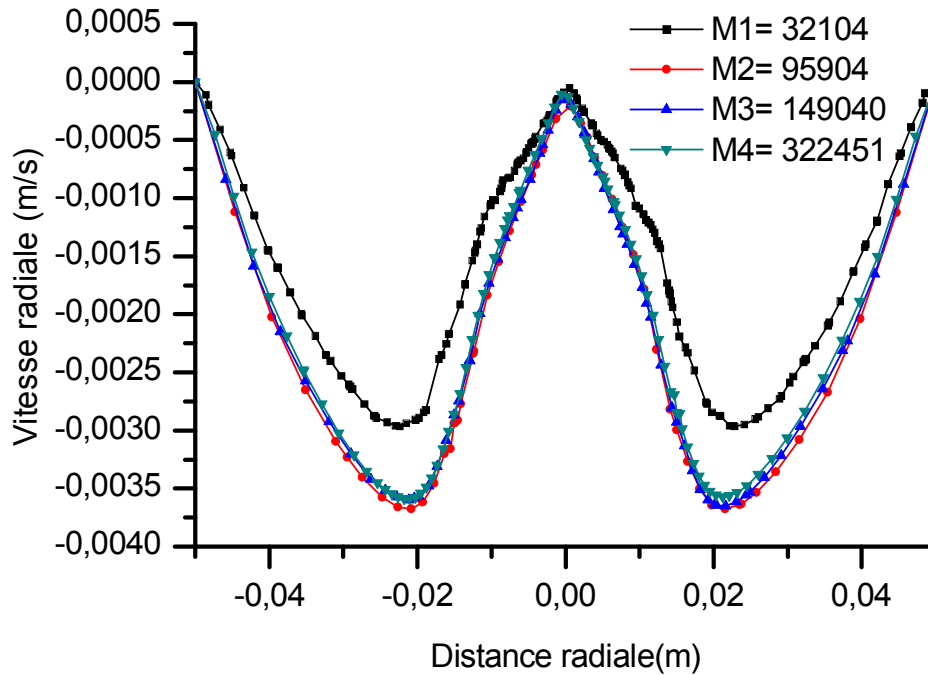


Figure III.6 : Profils de vitesse radiale juste en dessous de l'interface liquide/solide
($z = 0.098 \text{ m}, \theta = 0$).

Pour notre étude on a choisi un maillage intermédiaire que nous jugeons suffisant. (Notre analyse repose sur l'aspect qualitatif de l'écoulement).

Effet du maillage sur la variation axiale et radiale de la température et de la vitesse, on note qu'à partir du maillage M2 la différence entre les courbes est faible et la solution devient indépendante du maillage. Nous avons retenu le maillage M3 comme un maillage intermédiaire défini comme un bon compromis entre le temps de calcul et la précision des résultats.

III.4-1-Le maillage du domaine d'étude

La figure III.7 montre le schéma de maillage qui a été utilisée pour résoudre numériquement les équations ci-dessus. Le domaine physique est en coordonnées cylindriques, il a été subdivisé en un nombre de 149000 nœuds. Nous avons vérifié la qualité du maillage, la valeur maximale de *skewness* (le mauvais élément dans le maillage) est égale à 0,4. Les équations de Navier-Stokes, de l'énergie et de continuité sont discrétisées sur le domaine d'étude en utilisant la méthode des volumes finis (FVM).

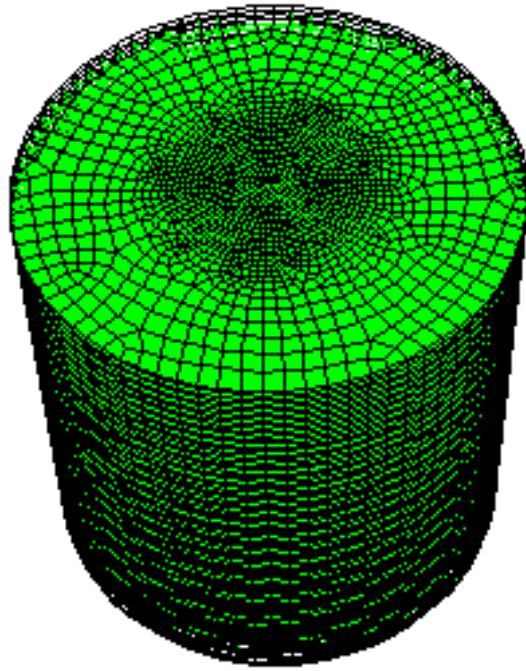


Figure III.7 : Maillage tridimensionnel utilisé pour notre simulation.

Toutes nos simulations numériques ont été réalisées à l'aide du logiciel CFD commercial FLUENT 6.3. L'algorithme SIMPLE est utilisé pour résoudre le couplage pression-vitesse où les termes de convection et de diffusion sont discrétisés par le schéma upwind du deuxième ordre. Notre modèle numérique est le même qui a été utilisé par N. Soltani et S. Rahal [108] et il est validé expérimentalement en comparant leurs résultats avec ceux obtenus par S. Rahal *et al* [109].

III.5-Les conditions aux limites

Avec les hypothèses précitées, nous présentons ci-dessous une description des conditions aux limites utilisés dans cette simulation pour la vitesse et la température:

- A l'interface liquide-solide: $0 \leq r \leq R_{cri}$, $0 \leq \theta \leq 2\pi$, $z = H$

$$u_r = 0, u_z = 0, u_\theta = r\omega_{cri} \quad , \quad T = T_f \quad (III.6)$$

ω_{cri} : La vitesse de rotation du cristal (disque).

$T = T_f = 2050^\circ\text{C}$: La température de fusion du saphir.

- A la surface libre: $R_{cri} \leq r \leq R_{cru}$, $0 \leq \theta \leq 2\pi$, $z = H$

Où R_{cri} , R_{cru} sont les rayons du cristal (disque) et du creuset respectivement.

Le transfert de chaleur au niveau de la surface libre du liquide vers le milieu ambiant est contrôlé par le rayonnement et la convection. Trois phénomènes de transfert thermique rentrent en jeu: la convection, la radiation et la convection de Marangoni.

La convection et la radiation au niveau de cette surface sont exprimées par la relation:

$$\vec{n} \cdot k_m \vec{\nabla} T = -Bi(T - T_a) + Rad(T^4 - T_a^4) \quad (III.7)$$

\vec{n} : Vecteur unitaire normal à la surface du liquide dirigée vers l'extérieur.

k_m : Conductivité thermique du fluide.

$Bi = hH/k_m$: Nombre de Biot pour le liquide.

h : Coefficient de transfert de chaleur.

T_a : Température ambiante (dans cette étude la température ambiante est considérée comme constante).

Le nombre de rayonnement Rad est défini par [108] :

$$Rad = \sigma \varepsilon_m (R_{cru} - R_{cri}) T_f^3 / K_m \quad (III.8)$$

σ : Constante de Stefan-Boltzmann.

ε_m : Emissivité du saphir liquide.

Le troisième phénomène qui intervient est la convection de Marangoni. La condition à la surface libre doit satisfaire l'équilibre des contraintes tangentielles [111]:

$$ns: \bar{\mathbf{t}} = Ma(s \cdot \nabla T) \quad (III.9)$$

s : Vecteur unitaire tangentiel à la surface libre.

$\bar{\mathbf{t}}$: Tenseur de contrainte de cisaillement.

Ma : Nombre de Marangoni, il est défini par [108]:

$$Ma = (\partial\gamma/\partial T)(R_{cru} - R_c) \Delta T / (\mu_m \alpha_m) \quad (III.10)$$

$\partial\gamma/\partial T$: Coefficient de tension superficielle thermique.

μ_m : Viscosité dynamique du fluide.

α_m : Diffusivité thermique du fluide.

-A la paroi latérale du creuset: $R = R_c$, $0 \leq z \leq H$

Au niveau de la paroi latérale du creuset, la température est réglée par le générateur radiofréquence, la condition à la limite sur cette paroi est:

$$T = T_f + \Delta T = T_{cru} = 2070 - 2100^\circ C \quad (III.11)$$

ΔT : Ecart de température entre l'interface solide-liquide (cristal) et la paroi latérale du creuset dont la température est d'environ 20 à 50K au-dessus de la température de fusion du saphir.

Le creuset étant immobile ($\omega_{cru} = 0$) la vitesse de rotation du creuset est nulle) ce qui impose une condition à la limite suivante sur les trois composantes de vitesse du liquide au niveau des parois solides du creuset :

$$u_r = 0, u_z = 0, u_\theta = R_{cru}\omega_{cru} = 0 \quad (III.12)$$

-En bas du creuset : $-R_c \leq r \leq R_c, Z = 0, 0 \leq \theta \leq 2\pi$

La même supposition pour la paroi de bas du creuset, sa rotation et son glissement sont négligés.

$$u = 0, v = 0, w = r\omega_{cru} = 0, T = T_{cru} \quad (III.13)$$

T_{cru} : Température du creuset.

Le schéma suivant résume la condition initiale et les conditions aux limites utilisées dans notre modélisation.

A $t=0$, l'écoulement est purement conductif $u = v = w = 0$

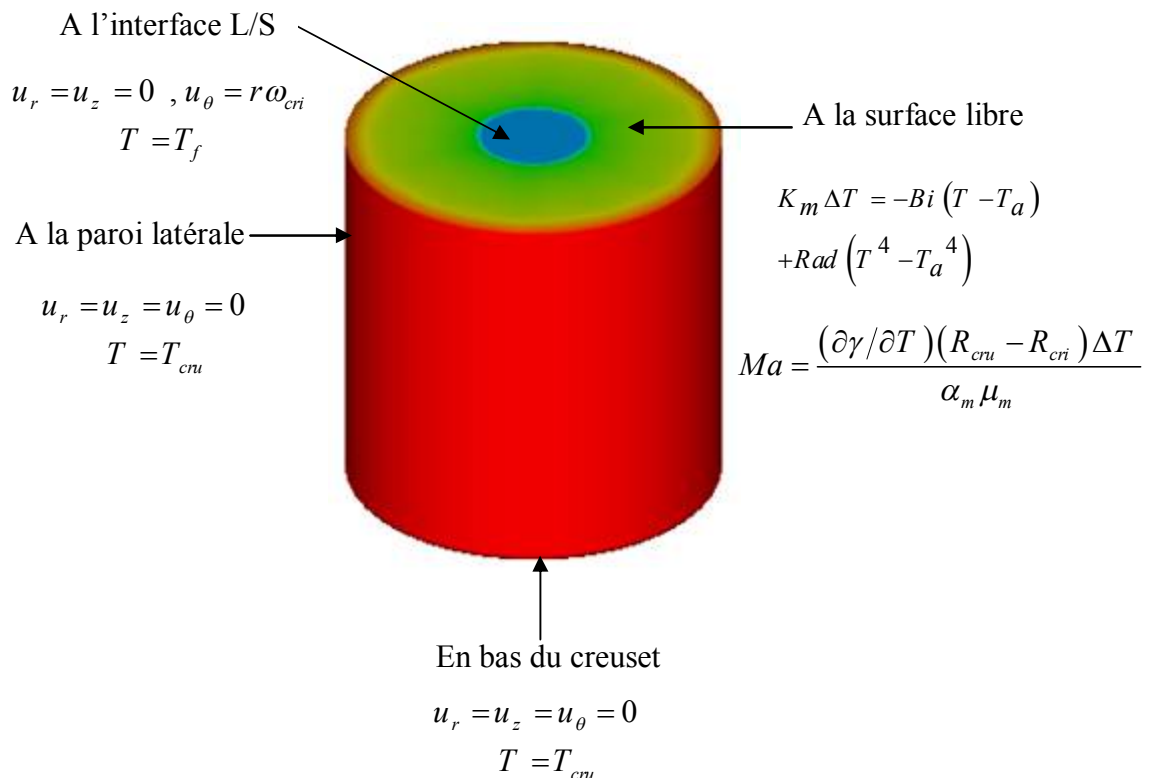


Figure III.8: Conditions aux limites du domaine d'étude.

III.6-Résultats et discussions

Les propriétés et le comportement de croissance des cristaux de saphir, sont influencés en grande partie par la distribution de la température et la convection dans le liquide pendant le processus de croissance. Pour cette raison, nous étudions le transfert de chaleur, la convection naturelle, l'effet du nombre de Rayleigh et la convection de Marangoni dans le creuset de la technique du Czochralski. Nous utilisons des sections verticales et horizontales pour visualiser les phénomènes de convection. Ces convections sont très intéressantes et jouent un rôle important dans la qualité du cristal produit. Tous d'abord et dans la section suivante, nous commençons par l'étude de la convection naturelle.

III.6-1-Etude de convection libre dans le creuset

Dans ce travail, nous étudions l'effet du nombre de Rayleigh sur le transfert de chaleur et sur l'écoulement dans le creuset de Czochralski c.-à-d. la convection libre dans le système de croissance. Dans ce cas, le disque qui joue le rôle du cristal est supposé non tournant (immobile $\omega_{cri} = 0$). Le nombre de Rayleigh, est défini par :

$$Ra = g\beta_T\Delta TH^3 / \alpha_m \nu = Gr.Pr = 5 \times 10^5 \quad (III.14)$$

$$Gr = g\beta_T\Delta TH^3 / \nu^2 \text{ et } Pr = \nu / \alpha_m \quad (III.15)$$

Gr c'est le nombre de Grashof due à la différence de température entre l'interface liquide-solide et le creuset et Pr est le nombre de Prandtl. Nous donnons ci-dessous les valeurs de nombre de Rayleigh pour les différents écarts de températures.

Tableau III.1 : Différentes valeurs du nombre de Rayleigh utilisées dans l'étude de la convection libre dans le creuset.

Différence de température (K)	20	30	40	50	60	70	80	90	100
Nombre de Rayleigh ($\times 10^5$)	1.99	2.986	3.982	4.978	5.973	6.969	7.964	8.960	9.956

III.6-1-1-Le profil axial de la température

Le profil vertical de température est représenté graphiquement sur la figure III.9 du bas du creuset à l'interface liquide-solide. Cette figure indique la distribution axiale de la température le long de l'axe de symétrie du creuset.

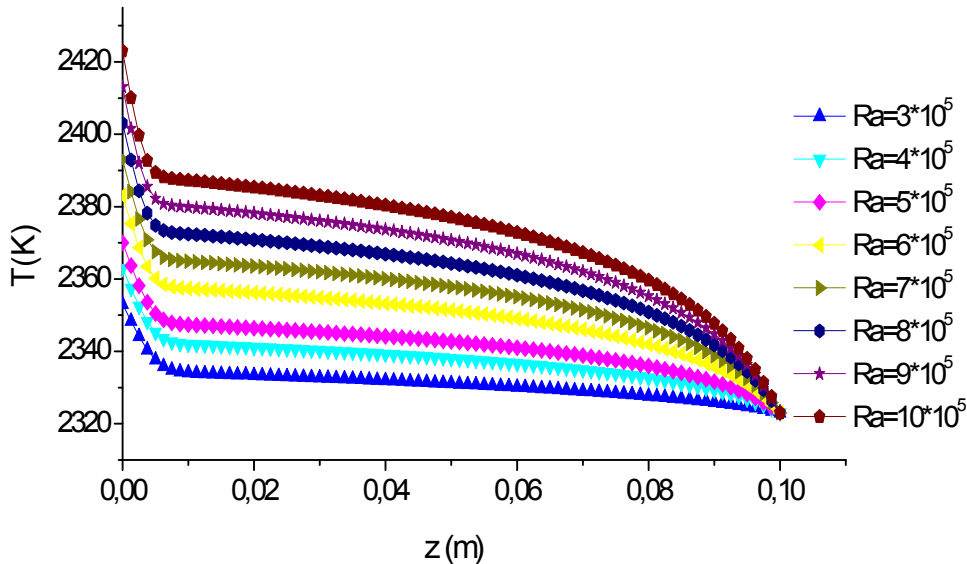


Figure III.9: Profil de température axiale pour différents nombres de Rayleigh.

Ces résultats montrent l'effet du nombre de Rayleigh $Ra = (3 - 10) \times 10^5$; où la valeur maximale de la température à la paroi latérale et au fond du creuset (Bottom) est de 2353 K – 2423 K. La valeur minimale de la température est au niveau de l'interface liquide-solide $T_{min} = 2323 K$. La différence de température est $\Delta T = (30 - 100) K$. On remarque que pour les faibles valeurs de Ra la température est presque constante le long de l'axe vertical.

III.6-1-2-Présentation du profil radial de la température

La figure III.10 montre le profil radial de la température en-dessous de la surface libre à la ligne horizontale $z = 0.098 m$, $\theta = 0$. Nous remarquons que la température radiale augmente avec l'augmentation du nombre de Rayleigh avec un profil de concavité dirigé vers les températures élevées ce qui garantit le fait que la température de liquide fondue soit toujours supérieure au point de fusion.

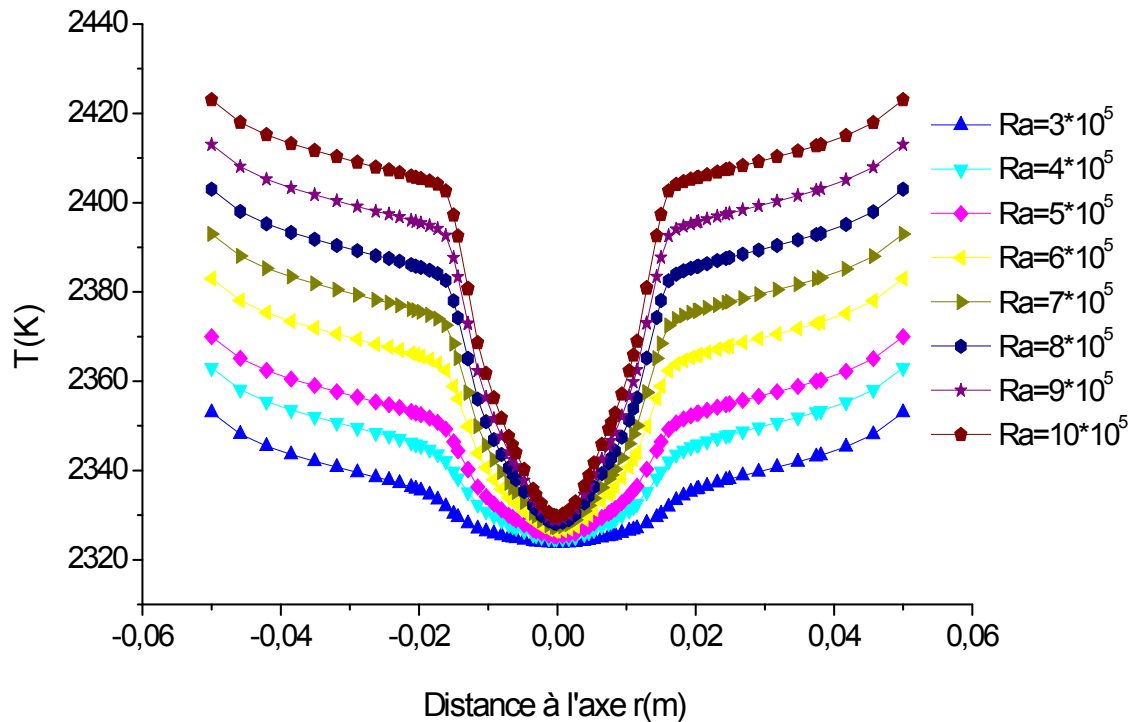


Figure III.10 : Profil de température radial en-dessous de la surface libre.

III.6-1-3-Profiles des vitesses

Dans cette partie, nous présentons les profils des vitesses radiale, axiale et tangentielle (2 mm en-dessous de la surface libre du saphir liquide).

III.6-1-4-Profil de la vitesse radiale

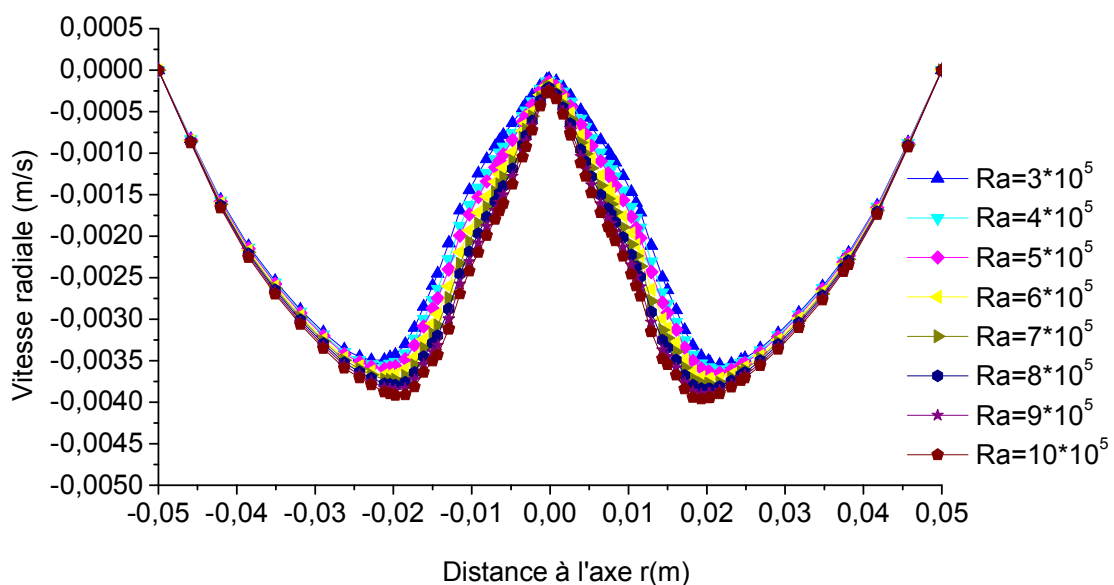


Figure III.11 : Profil de vitesse radiale juste en-dessous de la surface libre du saphir.

D'après les profils représentés dans la figure ci dessus, nous observons qu'il y a une symétrie radiale de l'écoulement dans la partie supérieure du creuset près de l'interface de cristallisation; d'autre part, on note que la valeur de la vitesse radiale augmente lorsque la température de chauffage du creuset augmente (nombre de Rayleigh augmente).

III.6-1-5-Profil de la vitesse axiale

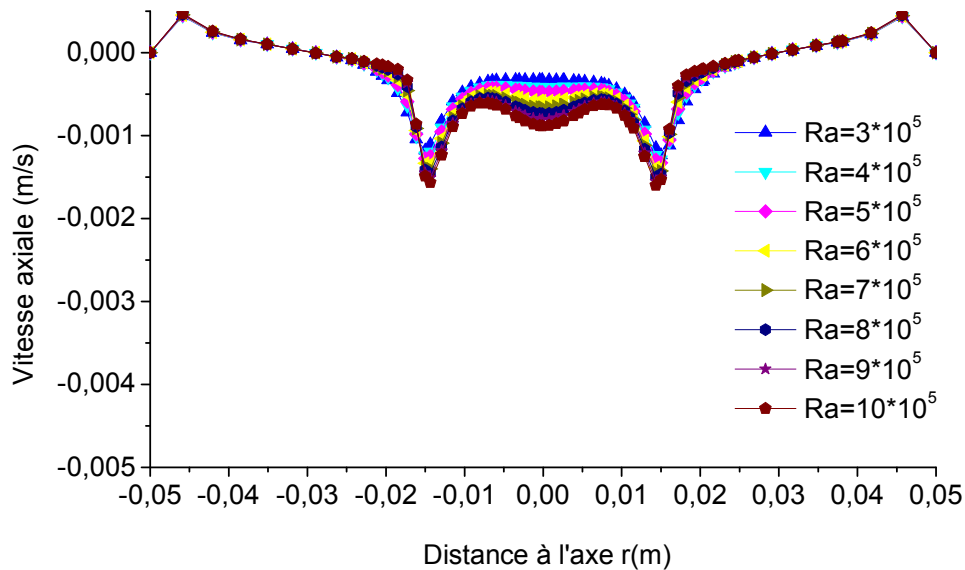


Figure III.12 : Profil de vitesse axiale au-dessous de la surface libre.

La figure III.12 montre le profil de la vitesse axiale à au même niveau ($z = 0,098 \text{ m}$). Nous remarquons qu'il y a une symétrie de l'écoulement axial dans le creuset. La vitesse axiale des particules fluides augmente et prend une valeur maximale juste proche au centre du creuset exactement aux deux limites de l'interface liquide-solide (-0.015 m et 0.015 m).

Dans le centre du creuset et le long de son axe vertical, nous remarquons que la vitesse axiale diminue et forme différents trajectoires (concaves et convexes); où la symétrie toujours est conservée. On remarque aussi que le mouvement axial est plus faible que le mouvement radial.

III.6-1-6-Profil de la vitesse tangentielle

La figure 13 montre les profils de la vitesse tangentielle pour différents nombres de Rayleigh. On remarque que la vitesse tangentielle est très faible par rapport à la vitesse radiale axiale. Ceci est justifié à cause de la symétrie cylindrique du problème étudié.

Dans ce cas on peut négliger le mouvement azimutal et le problème peut être considéré bidimensionnelle axisymétrique.

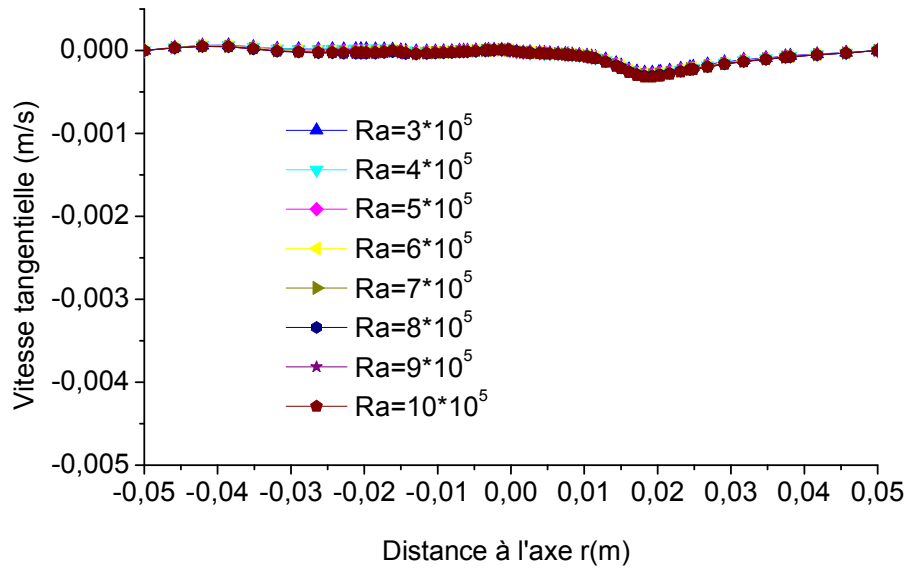


Figure III.13: Vitesse tangentielle $z = 0.098m$, $\theta = 0$.

La représentation des profils de vitesses est nécessaire car c'est un outil indispensable pour bien analyser la symétrie de l'écoulement à l'intérieur du creuset.

En effet, lors de la croissance cristalline, la non-symétrie de l'écoulement dans le creuset est la cause de la formation des défauts dans les cristaux tirés et ceci dans le cas où les valeurs de la vitesse tangentielle des particules fluides sont grandes.

Cette non-symétrie indique que l'écoulement dans le creuset devient tridimensionnel ce qui n'est pas notre cas ici car les valeurs de la vitesse tangentielle sont très petites (presque nulle). On peut donc considérer la croissance comme symétrique contribuant à la bonne qualité du cristal.

III.6-1-7-Profil du module de la vitesse

La figure ci-dessous représente le profil du module de la vitesse

$$u(r) = \sqrt{u_r^2 + u_\theta^2 + u_z^2} \text{ en fonction de la distance à l'axe } r.$$

C'est profil symétrique nécessaire à la bonne condition de croissance pour toutes les valeurs du nombre de Rayleigh allant de 3×10^5 à 10×10^5 qui est intervalle largement suffisant pour les conditions expérimentales. La valeur $Ra = 10 \times 10^5$ correspond à un température de creuset $T_{cru} = T_f + 400$.

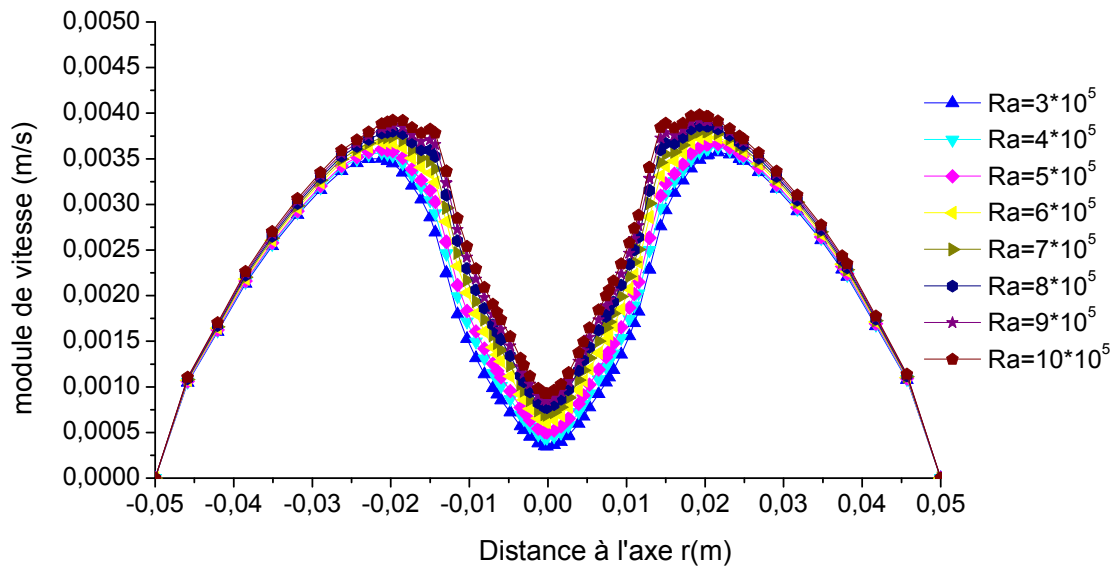
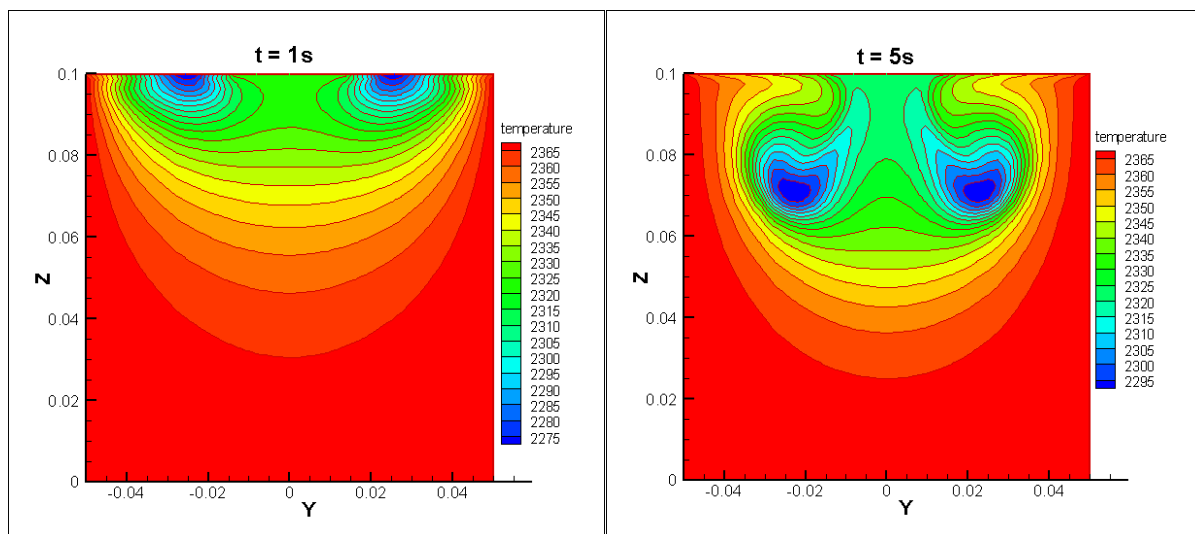


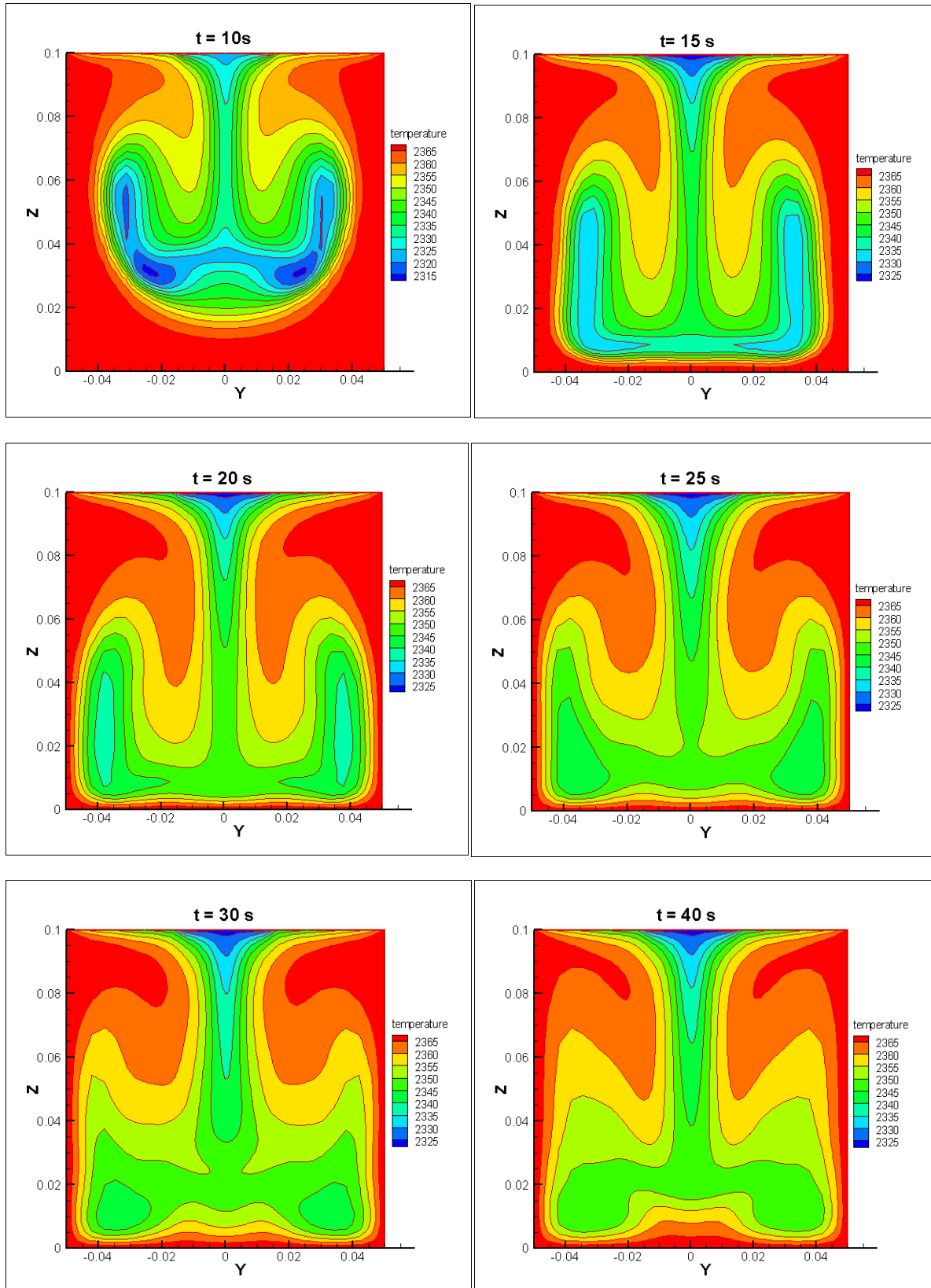
Figure III.14 : Profil du module de la vitesse $z = 0.098m, \theta = 0$.

III.6-2-Contours de l'évolution temporelle de la température dans le creuset Cz.

Considérons maintenant le cas du régime instationnaire. Le but est de déterminer la nature de la symétrie de l'écoulement du saphir liquide à l'intérieur du creuset.

Dans les figures ci-dessous nous représentons l'évolution temporelle du transfert de chaleur dans le creuset selon le plan vertical méridien qui donne une idée globale sur la nature et le type de l'écoulement instationnaire du saphir liquide pendant le processus de la croissance cristalline. Nous avons représenté sur la figure en dessous les contours de température à plusieurs instants.





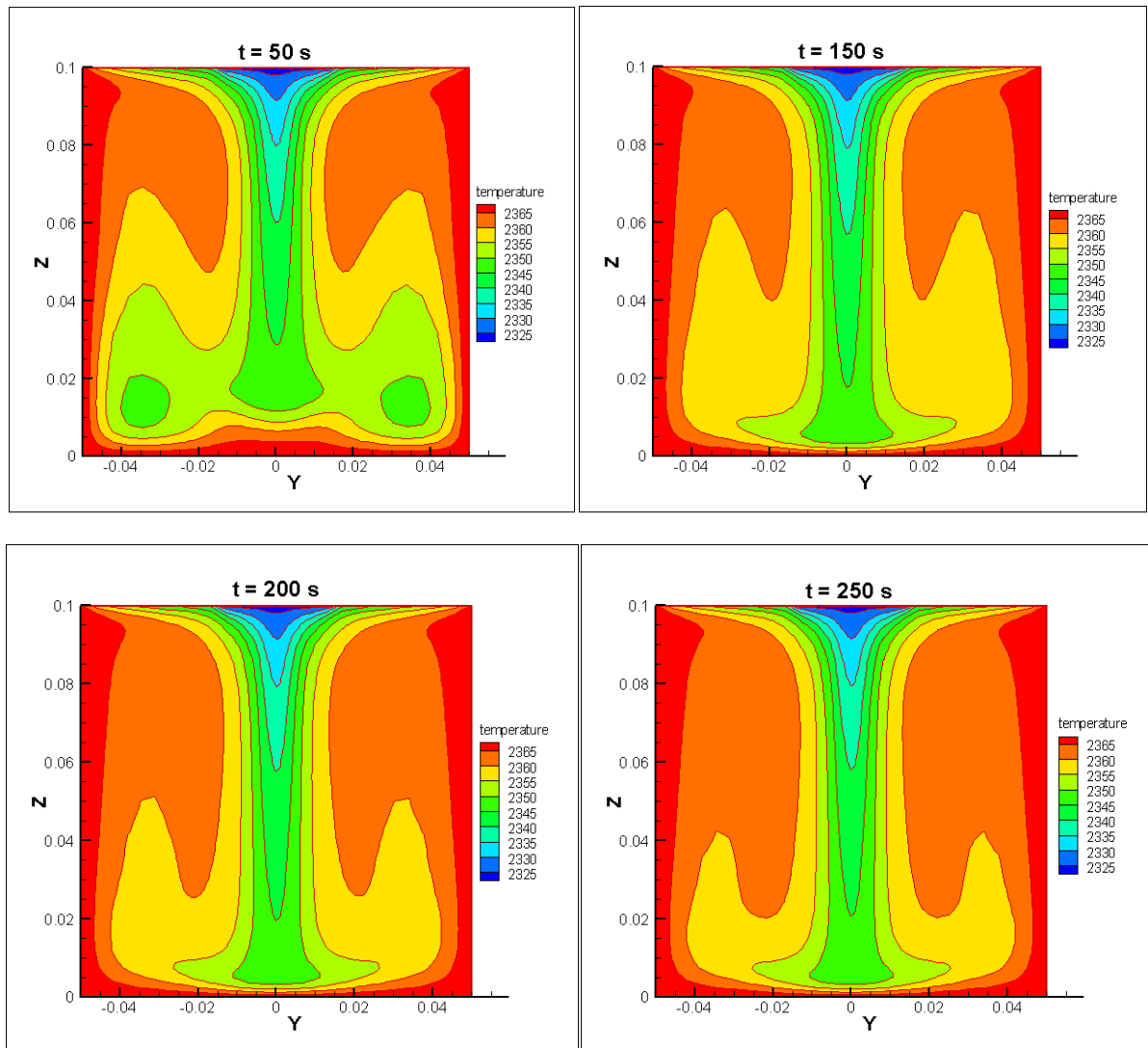


Figure III.15 : Evolution temporelle du champ thermique axial dans le domaine d'étude.

D'après ces résultats nous notons qu'après un temps égal à 150 s le cas stationnaire est atteint. A partir d'un temps $t = 10$ s un panache (jet) froid (couleur bleue) descendant de l'interface liquide-solide à travers l'axe de symétrie du creuset.

Avec le temps ce panache (jet) se descend vers le bas du creuset (*Bottom*). D'un autre côté il est bien montré la formation des deux cellules contrarotatives qui sont justifiées par l'effet de la convection naturelle dans le creuset. Ces résultats montrent que l'écoulement du saphir liquide dans le creuset est symétrique le long du processus de croissance cristalline.

III.6-2-1-Contour et isothermes de température cas stationnaire

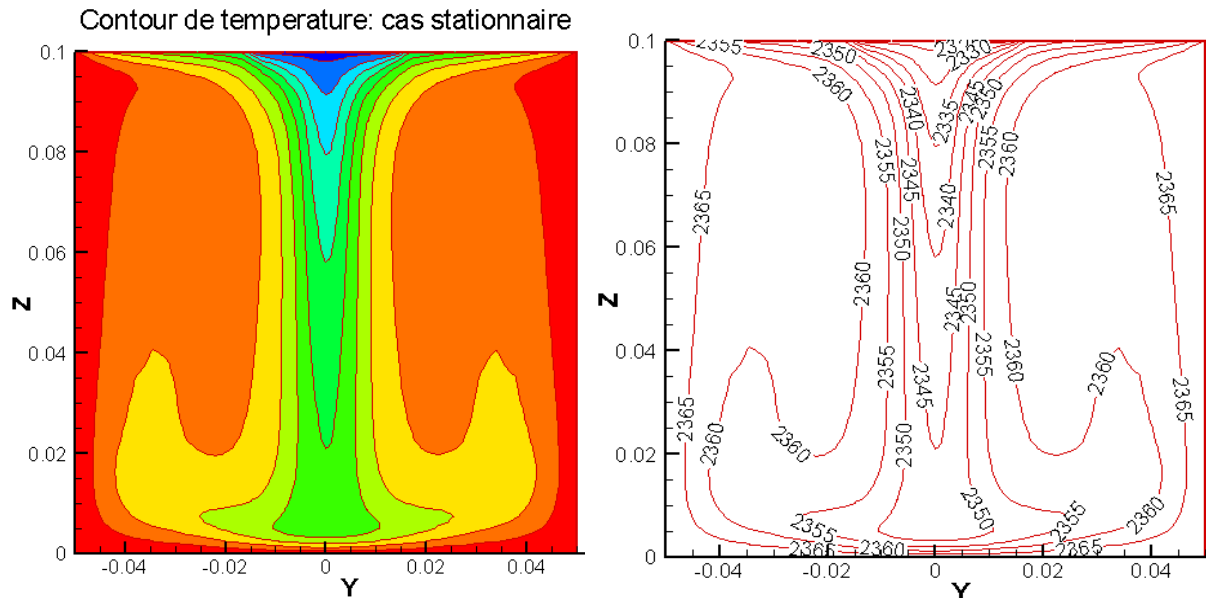


Figure III.16 : Contour de température et isothermes à $t = 500$ s après que le régime stationnaire est atteint.

A titre d'exemple la figure ci-dessus montre le contour vertical médian et les isothermes dans le cas stationnaire. D'après ces résultats nous notons que :

- Le contour de la température indique un gradient de température descendant de l'interface liquide-solide au bas du creuset à travers l'axe de symétrie.
- Dans la partie supérieure du creuset il y a un penchement des isothermes (couleur verte) près de la surface libre du saphir fondue. Ces penchements indiquent la présence et l'effet de la convection de Marangoni qui est induite par les gradients des tensions superficielles.
- La figure des isothermes montre que la température calculée dans le creuset est entre 2324 K (température à l'interface liquide-solide) et de 2365 K proche des parois latérales du creuset.

Par ailleurs, la forme de l'interface liquide-solide (à $z \sim 0.1$ m) est très importante et c'est l'une des conditions de croissance qui influence d'une façon directe sur la qualité du cristal tiré. Pour avoir une bonne qualité du cristal tiré, cette interface doit être plane ce qui n'est pas toujours réalisé mais cela nécessite une optimisation des paramètres de tirage. D'après les isothermes de température la forme de l'interface L/S est une forme concave ce qui confirme que dans le cas de la convection libre, le processus de croissance de Czochralski ne peut pas assurer des cristaux de bonne qualité. Ce qui nécessite d'introduire d'une façon ou d'une autre

un processus de convection forcée pour contrarier la convection libre afin d'obtenir une interface liquide solide aussi plane que possible.

III.6-3-Contours de la vitesse

Dans la figure ci-dessous, nous présentons les contours de la vitesse dans le creuset de Czochralski. Ces résultats confirment que l'écoulement du fluide est bien axisymétrique bidimensionnel dans le plan (r, z) car la vitesse tangentielle est presque nulle, comme il est montré dans la Fig III.17 (d). Il est clair que dans le centre du creuset la vitesse des particules fluides est maximale à l'axe de symétrie du creuset Fig III.17: (c). Dans ce cas, l'écoulement axial est dominant par rapport à l'écoulement radial.

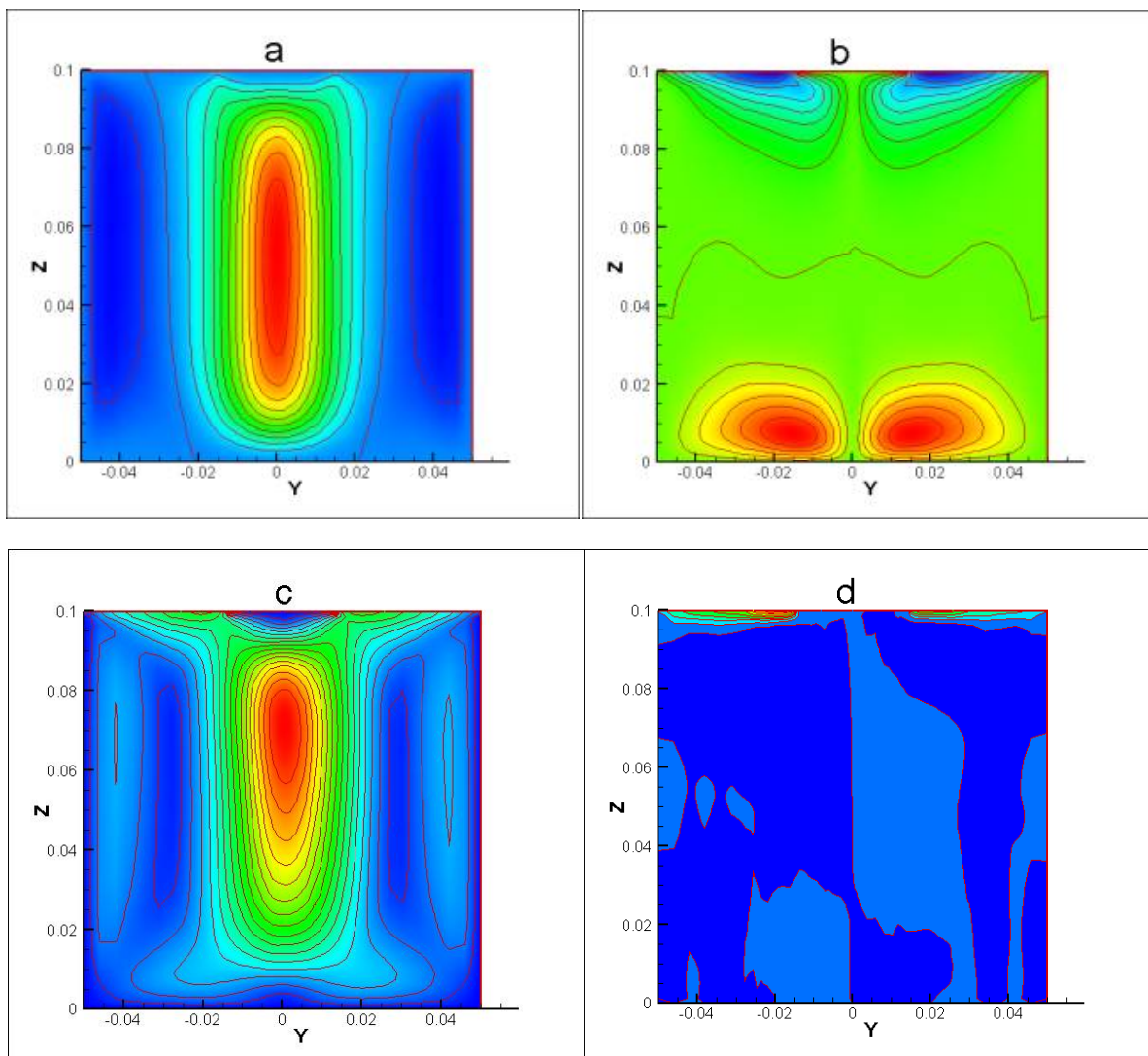


Figure III.17 : Représentation des contours de vitesses: (a): vitesse axiale; (b): vitesse radiale; (c): module de la vitesse; (d): vitesse tangentielle.

Dans la partie inférieure du creuset Fig.III.17: (b), le contour de la vitesse radiale indique la présence de deux cellules contrarotatives exprimant la convection naturelle. D'un autre côté dans la partie supérieure du creuset on voit clairement l'effet thermocapillaire représenté par les deux cellules de convection qui sont induites par les gradients des tensions superficielles.

III.7-Analyse des fluctuations de température

Dans le but d'étudier les instabilités thermiques justes en dessous de l'interface liquide-solide, les fluctuations de température sont analysées pour différents points proposés comme montré dans la figure ci-dessous. Cette étude est réalisée en utilisant la méthode de transformation de Fourier (FFT).

Notre simulation a été effectuée en tenant compte des paramètres suivants : Le non rotation du cristal, la convection libre dans le creuset, le transfert de chaleur par convection et par rayonnement et la convection de Marangoni à la surface libre du saphir liquide. Pour localiser les positions qui ont les grandes fluctuations, cinq points ont été sélectionnés dans le plan $z = 0,098$ m (2 mm en-dessous de l'interface liquide-solide).

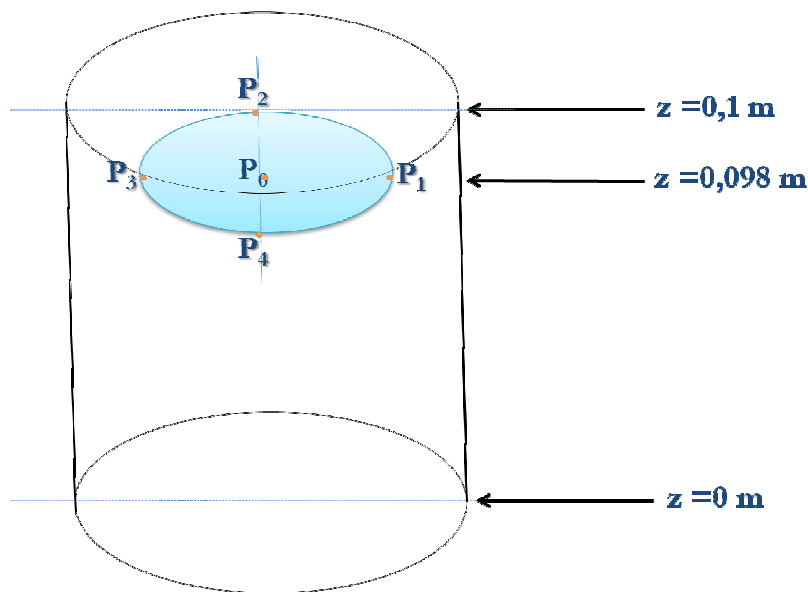


Figure III.18: Positions azimutales de différentes positions considérées 2 mm juste en dessous de l'interface liquide-solide.

Les coordonnées de ces points choisis sont : P_0 (0, 0, 0,098), P_1 (0,015, 0, 0,098), P_2 (0, 0,015, 0,098), P_3 (-0,015, 0, 0,098), P_4 (0, -0,015, 0,098). La figure ci-dessous montre les positions azimutales des points considérés dans le plan choisi et qui est situé juste près de l'interface de cristallisation.

La Fig.III.19 montre la magnitude des fluctuations de température en fonction de la fréquence pour les cinq points choisis. D'après ces résultats nous notons que pour le point P4 la magnitude de fluctuations de température est la plus élevée que les magnitudes des autres points P0, P1, P2, P3. Donc P4 est le point adapté pour notre analyse.

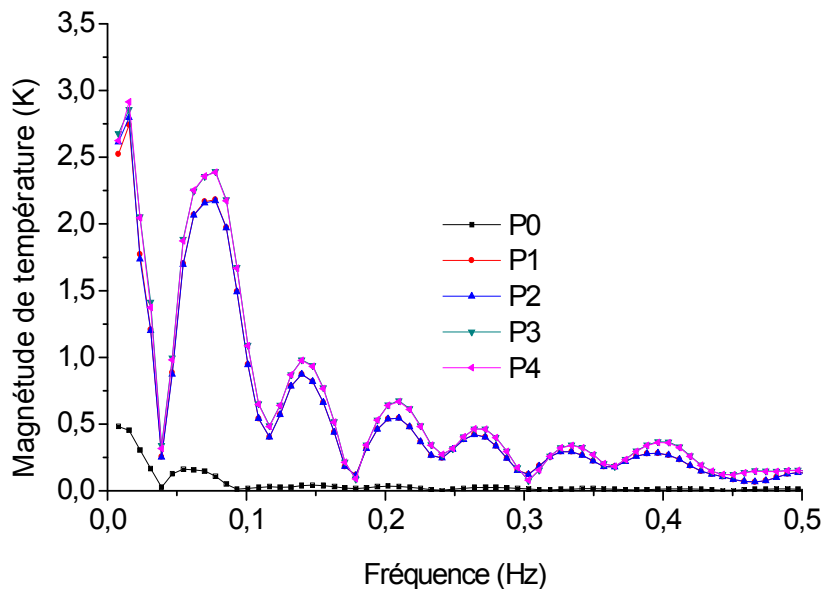


Figure III.19: Magnitude des fluctuations de température pour différentes positions juste en dessous de l'interface L/S (cas de convection libre).

Dans la partie suivante, nous avons également effectué une analyse des fluctuations de température juste en-dessous de l'interface au point choisi P4.

Cette étude a été réalisée pour différentes température de chauffage du creuset (différents nombres de Rayleigh proposés) en utilisant la méthode de transformation de Fourier rapide (FFT).

Les résultats obtenus sont représentés sur la Fig III.20. D'après cette figure nous remarquons que les grandes magnitudes sont observées pour les faibles fréquences (inférieur à 0.1 Hz) ; dans cet intervalle nous observons une augmentation de la magnitude de température avec l'augmentation du nombre du Rayleigh.

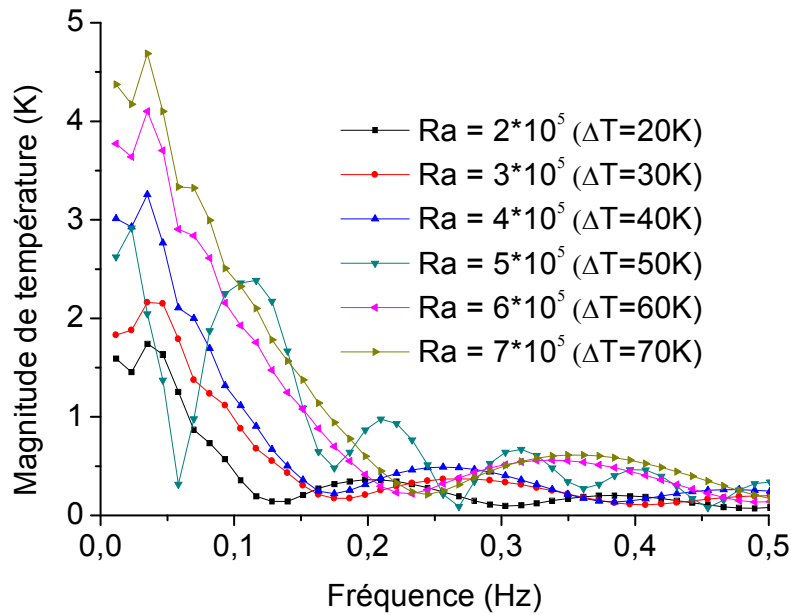


Figure III.20 : Magnitude des fluctuations de température à la position P4 pour différents nombres du Rayleigh.

Pour des fréquences supérieures à 0.1 Hz, les magnitudes de température sont faibles et leurs variations avec le nombre de Rayleigh n'est pas claire (une variation chaotique).

La figure ci-dessous montre la variation du maximum de la magnitude des fluctuations de température à la position P4 en fonction du nombre de Rayleigh.

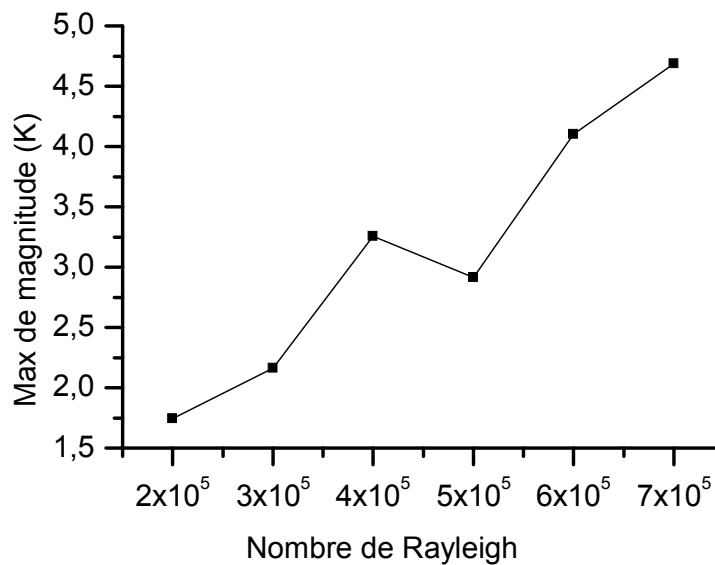


Figure III.21 : Max de la magnitude des fluctuations de température en fonction du nombre de Rayleigh.

On note que le maximum des magnitudes des fluctuations de la température augmente avec l'augmentation du nombre de Rayleigh, d'autre terme les fluctuations augmentent avec l'augmentation de température du chauffage du creuset.

Nous comparons à titre indicatif l'effet de la convection forcée en introduisant la rotation du cristal. La convection forcée peut diminuer dans certain cas les fluctuations de température juste en dessous de l'interface L/S, comme montré sur la figure ci-dessous.

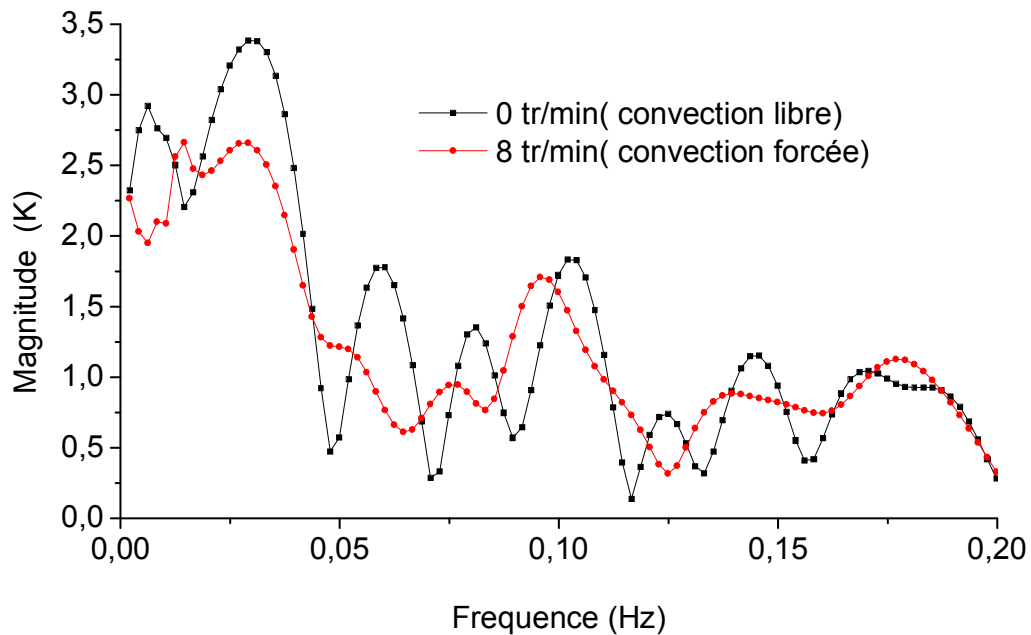


Figure III.22: FFT des fluctuations de température à la position P4 pour la convection libre et forcée.

III.8-La convection forcée et la convection mixte

On parle de convection forcée pour les écoulements convectifs provoqués de façon artificielle par exemple à l'aide des moyens mécaniques (pompes, ventilateurs, compresseurs). En plus du nombre de Rayleigh nous aurons besoin du nombre de Reynolds pour l'analyse des résultats obtenues

$$Re = \frac{\text{forces d'inertie}}{\text{forces de dissipation visqueuse}} = \frac{\omega_{cri} R_{cri}^2}{\nu} \quad (\text{III. 16})$$

Quand l'ampleur des mouvements convectifs forcés est du même ordre de grandeur que la convection libre on ne peut pas négliger un type de convection par rapport à l'autre, on parle alors de convection mixte. C'est le cas des écoulements qui ont lieu, en générale, dans le cas de croissance cristalline par le procédé de Czochralski.

Les limites de ces trois domaines, la convection naturelle, la convection forcée et la convection mixte, sont approximativement fixées par le nombre de Richardson Ri , défini par l'expression:

$$Ri = \frac{g\beta\Delta TH}{v^2} = \frac{Ra}{Re^2} \quad (\text{III. 17})$$

On rappelle que le nombre de Richardson est faible lorsque la convection forcée est prépondérante et il devient très grand dans le cas contraire. Pour contrôler la forme de l'interface liquide-solide au cours du processus de croissance cristalline de Czochralski en général, on introduit un mouvement supplémentaire qui engendre une convection forcée qui possède un effet opposé à celui de la convection libre. Cette procédure est peut être réalisée par exemple par la rotation du cristal, ou du creuset.

Dans notre cas on a choisi la rotation du cristal qui se trouve à l'axe juste en dessous du plan de l'interface liquide-solide. Ceci se traduit numériquement par la condition à la limite au niveau du disque $z = 0.1 \text{ m}$, $r < R_{cri}$ imposée sur la vitesse de rotation ω_{cri} entraînant les particules fluides à un mouvement circulaire de composantes de vitesse $u_r = 0, u_\theta = r\omega_{cri}, u_z = 0$.

III.8-1-La vitesse de tirage du cristal (la composante axiale de la vitesse)

Pour être précis la composante axiale de la vitesse n'est pas en réalité nulle, elle est égale à la vitesse de tirage du cristal $u_z = U_{tir}$ dirigée vers le haut. Cependant la vitesse de tirage des cristaux optiques qui sont des oxydes est très lente par rapport à la vitesse de rotation du cristal. On parle de vitesse de tirage de quelque millimètre par heure de sorte qu'il faut deux ou trois jours pour tirer un cristal. Alors que la vitesse de rotation du cristal est de quelques tours à quelques dizaines de tours par minute. Si l'on prend $U_{tir} = 2 - 5 \text{ mm/h}$ est $\omega_{cri} = 8 - 16 \text{ tr/min}$ ce qui donne une vitesse axiale approximative $u_z \sim 5.55 - 2.77 \times 10^{-7} \text{ m/s}$ et une vitesse azimutal moyenne $u_\theta \sim (1.0104) 2.09 \times 10^{-2} \text{ m/s}$ pour un cristal de quelques centimètres de diamètre. On constate bien que la vitesse axiale peut bien être négligée par rapport à la vitesse azimutale $u_\theta \gg u_z$ que l'on peut prendre nulle. Cette approximation qui est bien justifiée nous facilite considérablement la modélisation numérique du problème étudié.

III.8-2-Effet de la rotation du cristal sur l'écoulement

Nous avons réalisé une étude numérique complète sur le transfert de chaleur par convection, le profil de la température et les fluctuations de température à l'intérieur du creuset pendant le

processus de croissance. Nous avons étudié le transfert de chaleur dans les deux cas : régimes stationnaire et instationnaire et ceci pour différentes valeurs de la vitesse de rotation du cristal allant de 0 tr / min jusqu'à 60 tr / min.

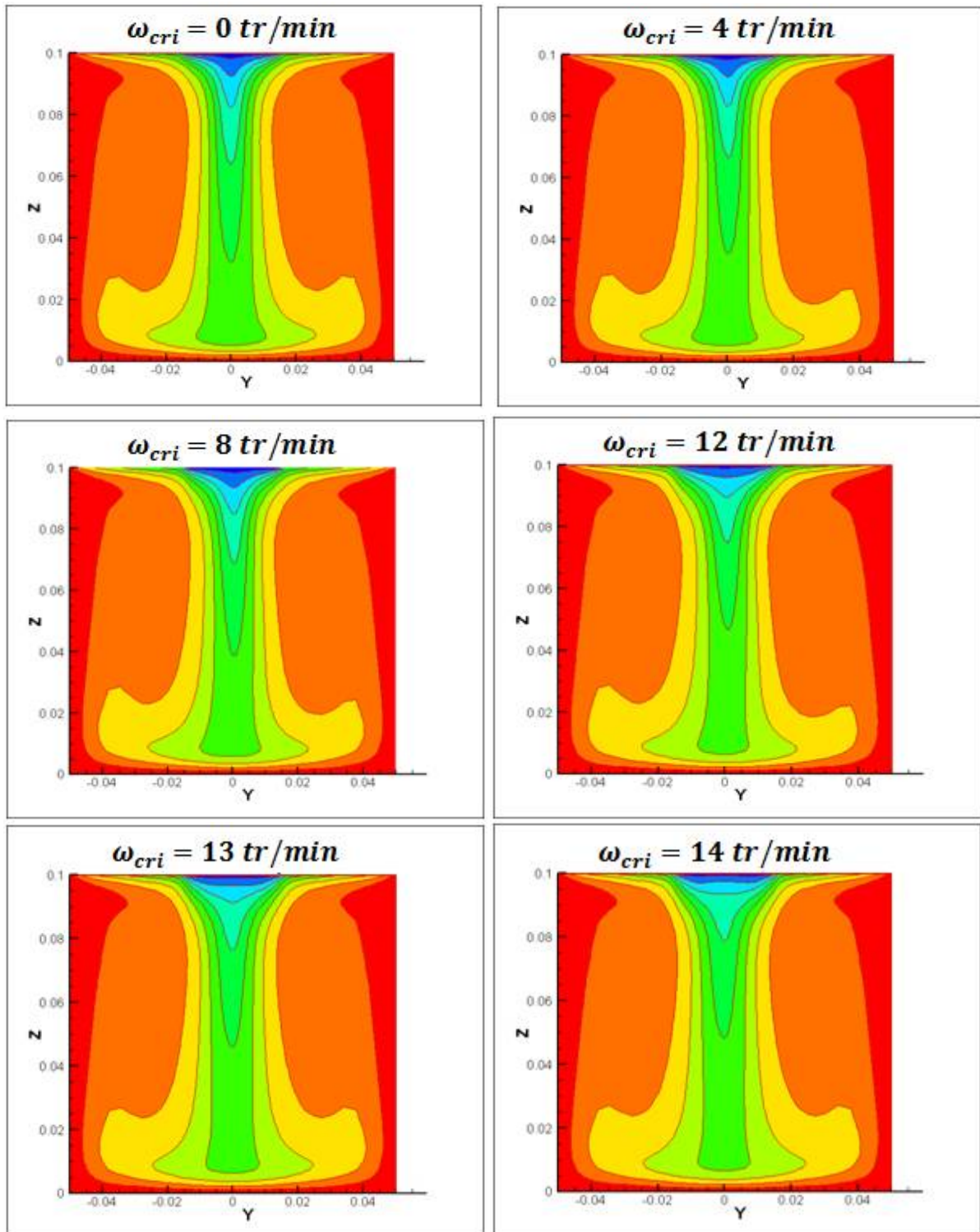
Le tableau ci-dessous montre les nombres adimensionnels qui présentent les paramètres de control de l'écoulement et de transfert de chaleur dans le domaine d'étude (le creuset). Les valeurs de ces nombres utilisées dans cette analyse numérique sont montrées ci-dessous.

Tableau III.2 : Nombres adimensionnels (paramètres de control) qui sont utilisés dans l'étude de la convection forcée dans le creuset.

Vitesse de rotation du cristal (tr/min)	Vitesse de rotation en (rad/s)	Nombre de Ra $Ra = \frac{g_0 \beta_T \Delta T H^3}{\alpha_m \nu}$	Nombre de Re $Re = \frac{\omega_{cri} R_{cri}^2}{\nu}$	Nombre de Ri $Ri = \frac{Ra}{Re^2}$
0	0	5×10^5	0	∞
4	0.42	5×10^5	7.50	8937
8	0.84	5×10^5	15	2234
12	1.36	5×10^5	22	993
13	1.47	5×10^5	24	846
14	1.58	5×10^5	26	730
16	1.67	5×10^5	29.82	559
20	2.1	5×10^5	37.50	357
30	3.14	5×10^5	56.08	159
40	4.18	5×10^5	74.65	89
50	5.23	5×10^5	93.40	57
60	6.28	5×10^5	112.16	40

Lors de la croissance cristalline du saphir par la méthode de Czochralski [7], Le cristal est lentement tiré vers le haut, à des vitesses de cristallisation de l'ordre de 1.5 mm à 5 mm/h. Dans le but d'homogénéiser le bain et de contrôler la forme de l'interface liquide-solide, l'ensemble de la croissance est effectué en maintenant le cristal en rotation à des vitesses de rotation de 4 à 16 rpm [7]. Dans notre étude et dans le but de confirmation d'homogénéité du bain et de contrôler la forme de l'interface liquide-solide (trouver la forme plane) ; notre simulation a été effectuée pour la même gamme des vitesses de rotation (4 à 16 tr/min) ainsi que pour les grandes vitesses de rotation de 20- 60 tr/min pour voir l'effet de la vitesse de rotation sur l'écoulement, le transfert de chaleur et la forme de l'interface de cristallisation.

Tous d'abord nous commençons par la représentation des contours de la température dans le plan vertical méridien, en changeant la vitesse de rotation du cristal. Notre analyse repose sur l'aspect qualitatif de l'écoulement.



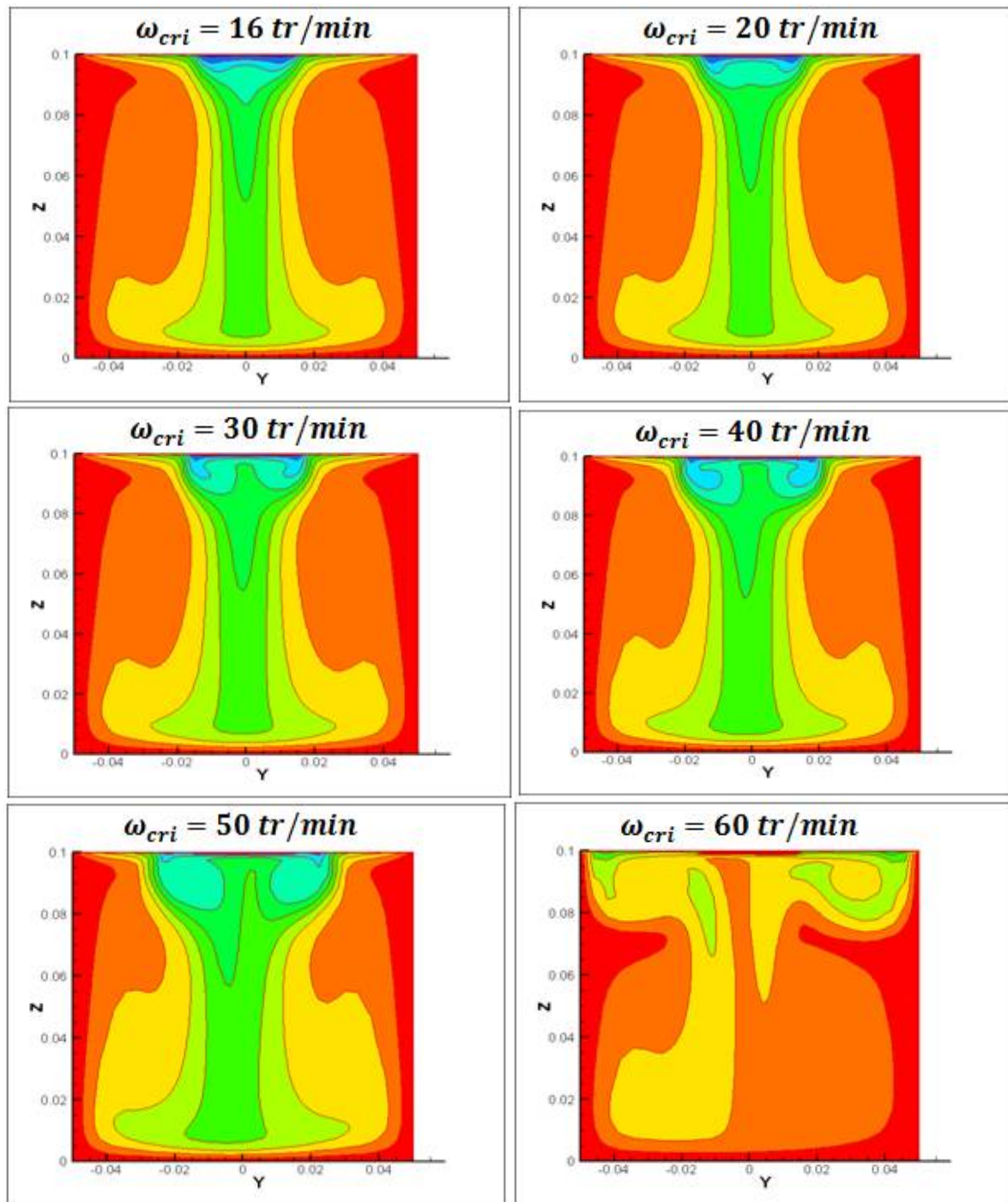


Figure III.23 : Effet de vitesse de rotation du cristal sur le transfert de chaleur dans le creuset (l'écoulement méridien).

D'après ces résultats, nous remarquons que pour les vitesses de rotation du cristal $\omega_{cri} \leq 30 \text{ tr/min}$, le contour de température conserve la symétrie cylindrique ce qui traduit la symétrie de l'écoulement du liquide à l'intérieur du creuset. Cette symétrie est un bon signe sur les conditions nécessaires pour la croissance d'un cristal de bonne qualité. Pour $40 \text{ tr/min} \leq \omega_{cri} \leq 50 \text{ tr/min}$ la symétrie commence à disparaître. Pour les valeurs des vitesses de

rotation relativement grandes $\omega_{cri} \geq 60tr/min$, l'écoulement devient totalement non symétrique et tridimensionnel, Dans ces conditions de non symétrie le cristal tiré est de qualité très médiocre. Il faut donc choisir une vitesse optimale de rotation du cristal inférieure à 30 tr/min afin de conserver la symétrie de l'écoulement lors de la croissance. De plus du point de vue numérique, pour cette gamme de vitesses de rotation et comme l'écoulement reste symétrique il est tout à fait acceptable d'utiliser un modèle numérique bidimensionnelle axisymétrique pour économiser le temps calcul.

Quand on fixe le nombre de Rayleigh($Ra = 5 \times 10^5, \Delta T = 50K$) et on change le nombre de Reynolds via la vitesse de rotation du cristal on passe d'un régime de convection à l'autre. En effet, on se basant sur la symétrie de l'écoulement pour les vitesses de rotation $\omega_{cri} \leq 30 tr/min$ c'est le mécanisme de convection libre qui est dominant. Pour les vitesses de rotation $\omega_{cri} \geq 60tr/min$ c'est la convection forcée qui est prépondérante. Entre ces deux régimes c.-à-d. $60 tr/min > \omega_{cri} > 40tr/min$ le mécanisme les deux convections est comparable.

Comme conclusion on peut dire que pour tirer des cristaux de saphir de bonne qualité il faut utiliser des vitesses de rotations inférieurs à $40tr/min$ ($4 - 30 tr/min$), où la symétrie de l'écoulement dans le creuset est conservée.

III.8-3-Représentation des contours de vitesse dans le domaine d'étude

Dans cette partie nous représentons une analyse qualitative des contours des vitesses (radiale, axiale, tangentielle et moyenne (module de vitesse)) sur un plan vertical méridien. Cette étude est réalisée pour différentes vitesses de rotation du cristal.

III.8-3-1-Contours de la vitesse radiale

Tous d'abord nous commençons par le mouvement radial du liquide dans le creuset. Les contours de la vitesse radiale pour différentes vitesses de rotation sont représentés dans la figure ci-dessous. Dans la partie supérieure du creuset, nous remarquons la formation de deux cellules contrarotatives où la valeur de la vitesse des particules fluides augmente avec l'augmentation de la vitesse de rotation du cristal (Effet de la convection forcée). Pour les vitesses de rotation $\omega_{cri} \leq 30 tr/min$ il est bien clair qu'il y a une symétrie de l'écoulement radiale. Pour les grandes vitesses de rotation $\omega_{cri} = 60 tr/min$ l'écoulement commence à prendre une forme non symétrique.

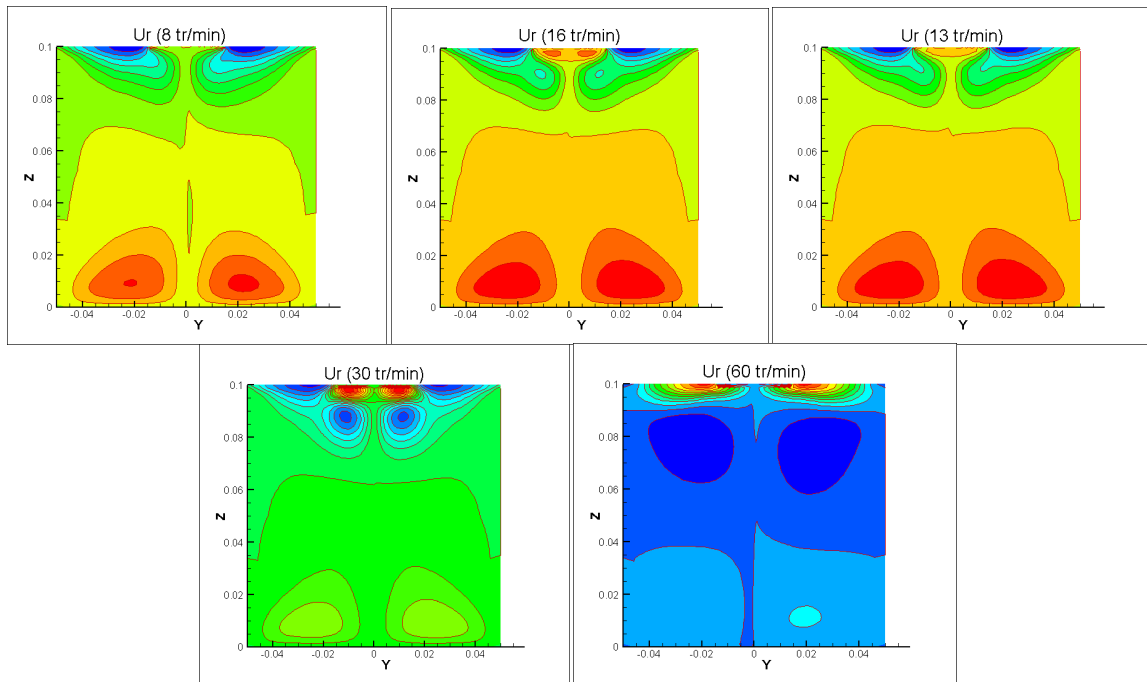


Figure III.24 : Contours de la vitesse radiale pour différentes vitesse de rotation.

III.8-3-2-Contours des vitesses axiales

La figure suivante représente les contours du mouvement axial dans le creuset pour les mêmes valeurs de vitesse de rotation du cristal.

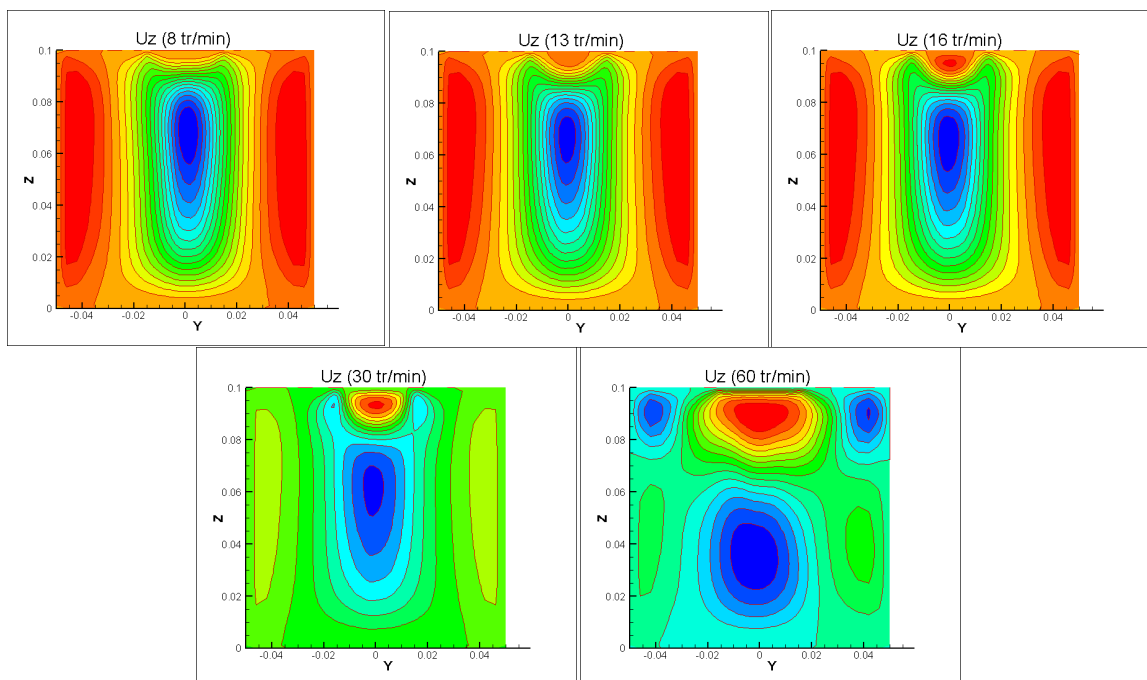


Figure III.25 : Contours de la vitesse axiale pour différentes vitesse de rotation.

Il est bien noté que la vitesse axiale est très grande près des parois du creuset et ça montré par les deux grandes cellules qui résultent de l'effet de la convection naturelle. Par contre au centre du creuset la vitesse axiale est plus petite. Pour la vitesse de rotation $\omega_{cri} = 60 \text{ tr/min}$ nous remarquons que l'écoulement est non symétrique.

III.8-3-3-Contours de la vitesse tangentielle

La vitesse tangentielle est un outil indispensable pour analyser la symétrie de l'écoulement à l'intérieur du creuset.

Nous notons que la vitesse tangentielle est presque nulle dans le domaine d'étude et elle est maximale dans la partie supérieure centrale du creuset où il y a la rotation du cristal.

Ce résultat montre que le régime de l'écoulement qui domine dans notre cas est le régime laminaire. Pour les vitesses $\omega_{cri} \leq 30 \text{ tr/min}$ on peut considérer la croissance comme symétrique et ça contribuant à la bonne qualité du cristal.

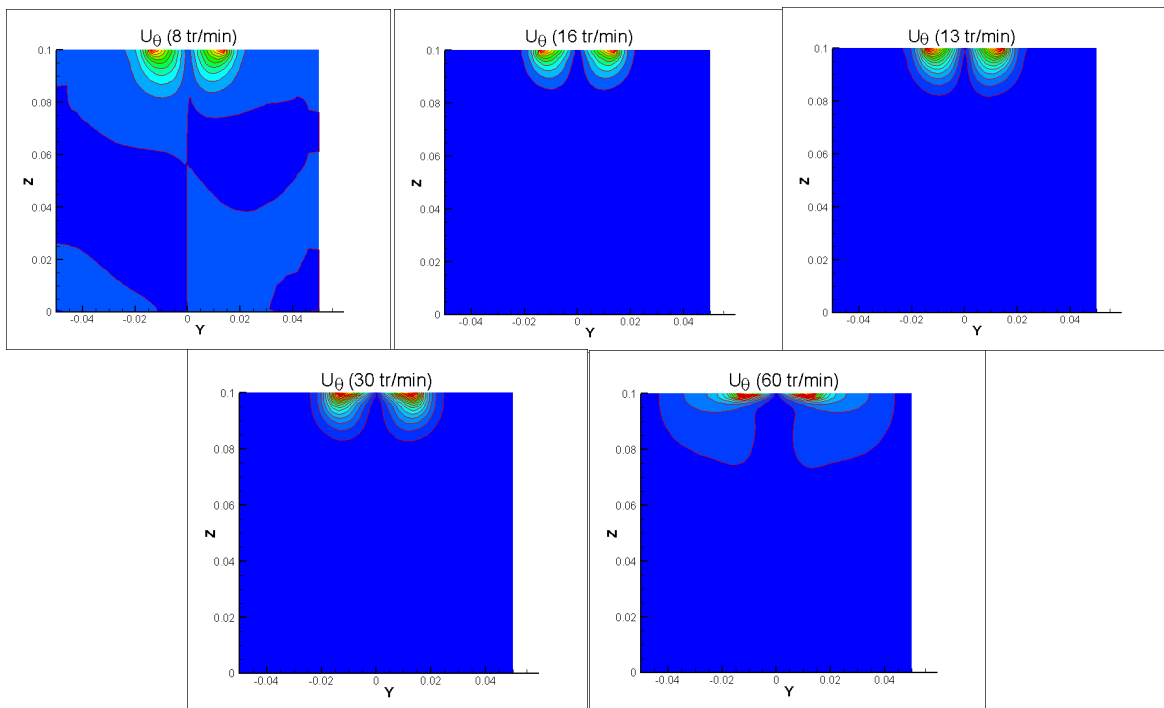


Figure III.26 : Contours de la vitesse tangentielle pour différentes vitesses de rotation.

III.8-3-4-Contours du module de vitesse

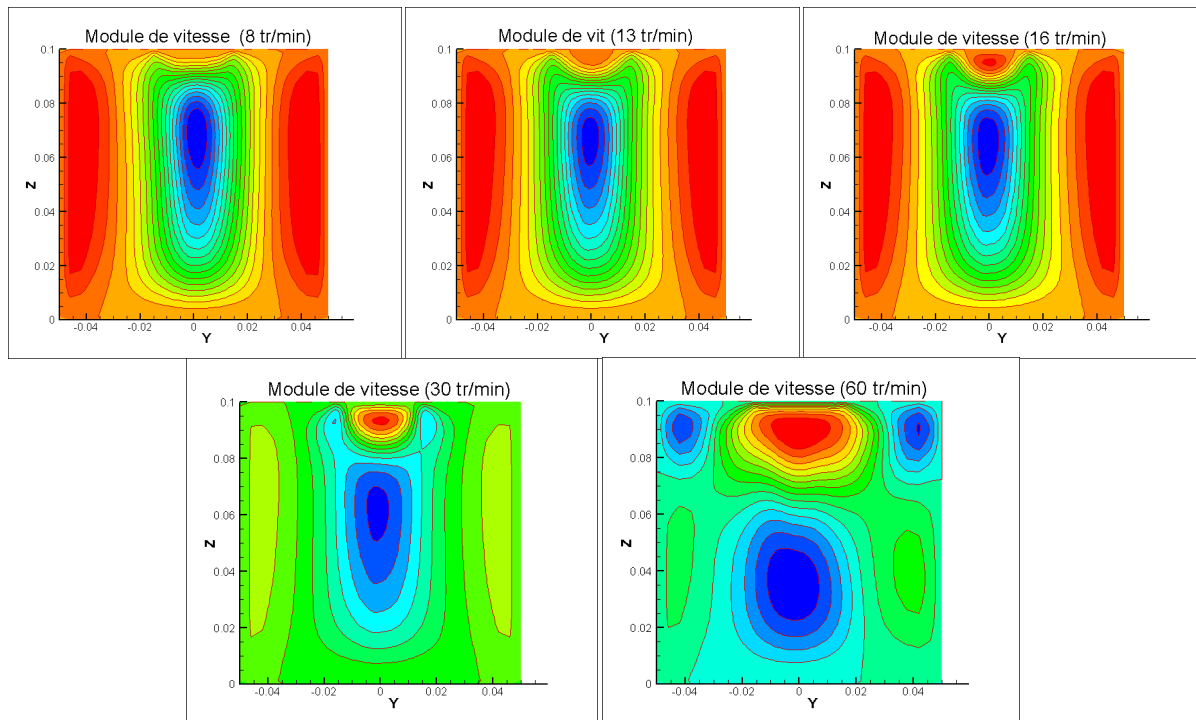


Figure III.27 : Contours du module de la vitesse pour différentes vitesses de rotation.

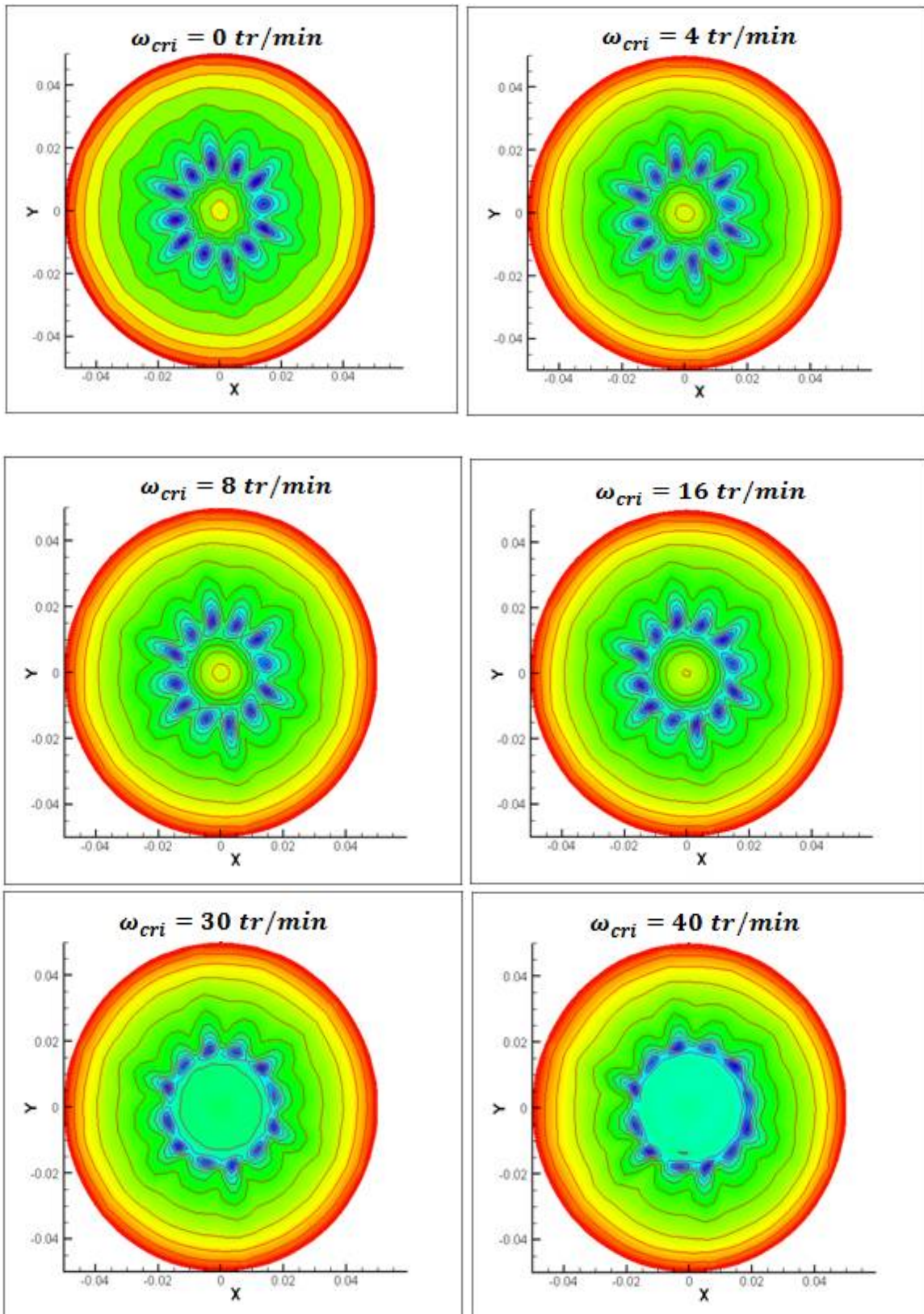
Les contours du module de la vitesse montrent une symétrie de l'écoulement sauf pour la vitesse de rotation $\omega_{cri} = 60 \text{ tr/min}$. La vitesse moyenne augmente avec l'augmentation de la vitesse de rotation du cristal et ça bien montré par la formation d'une cellule centrale en haut du creuset. Les lignes du courant de l'écoulement montre que le liquide chaud remonte le long des parois du creuset, diffuse vers le centre. Au centre du creuset, le liquide froid retombe vers le fond, où il migre vers les parois latérales du creuset.

III.9-Contours horizontaux de la température radiale

Les Figures III.27 et III.28 montrent la distribution de température dans un plan horizontal 2 mm juste en dessous de la surface libre respectivement dans les deux cas : régime transitoire (à $t = 500\text{s}$) et stationnaire.

III.9-1-Cas instationnaire

Tous d'abord nous commençons par le cas instationnaire pour différentes vitesses de rotation de 0 tr/min jusqu'à 60 tr/min .



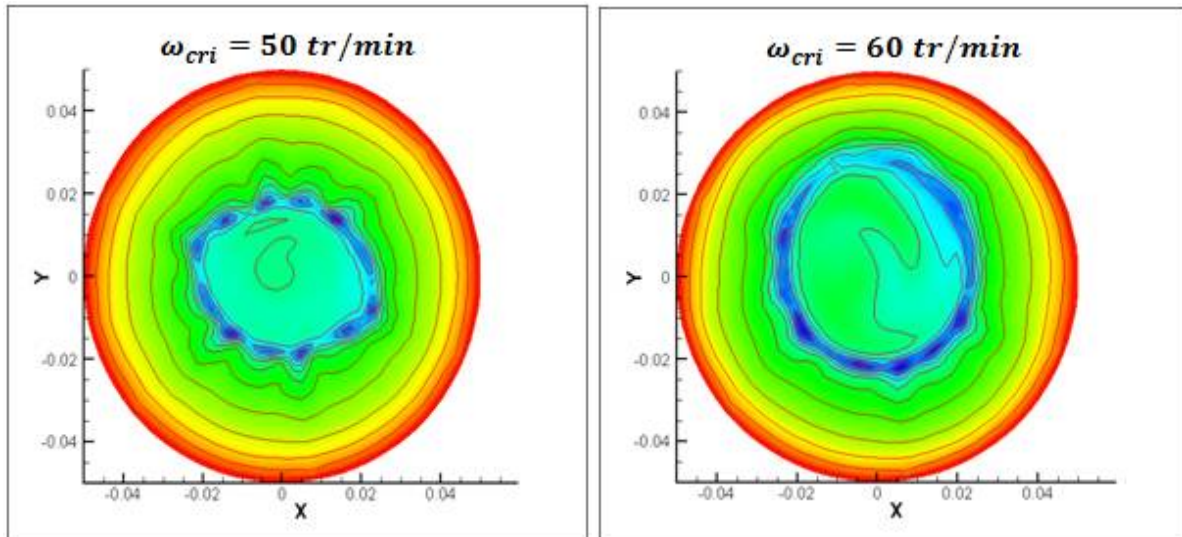
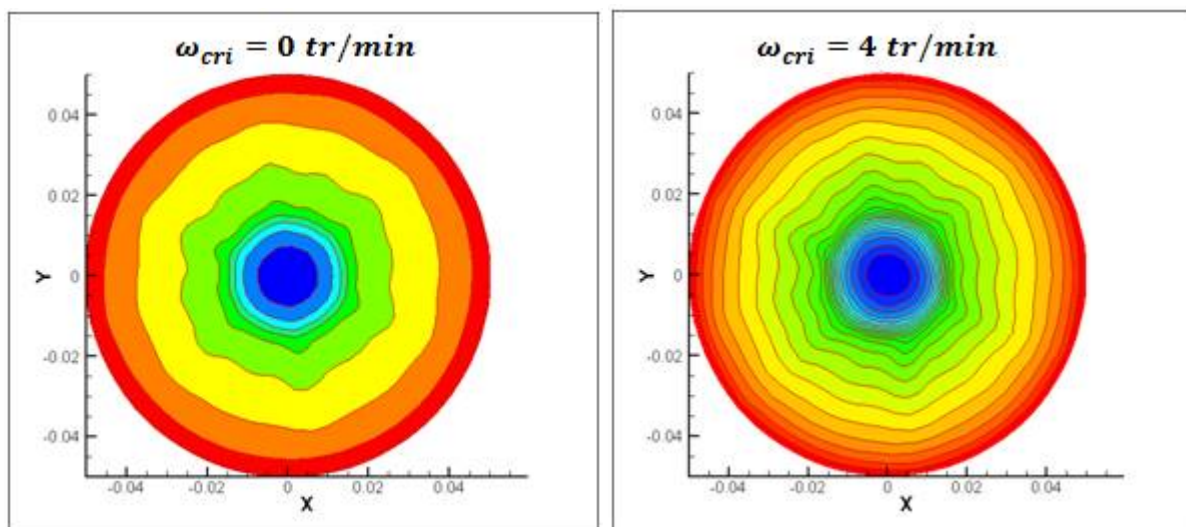


Figure III.28 : Contours de la température dans le plan horizontal juste en dessous de la surface libre ($z = 0.098$ m) cas instationnaire ($t=500$ s).

Dans le cas instationnaire, nous remarquons que pour les zones qui sont proches à l'axe du cristal, les particules fluides sont entraînées par le mouvement de rotation du cristal, ce qui crée des cellules de rotation qui sont présentées dans la figure ci-dessus. Par contre les zones qui sont plus loin sont moins entraînées par la rotation du germe.

III.9-2-Cas stationnaire

Nous passons à représenter les contours horizontaux de température radiale pour le régime stationnaire, pour la même gamme des vitesses de rotation : (0-60 tr/min).



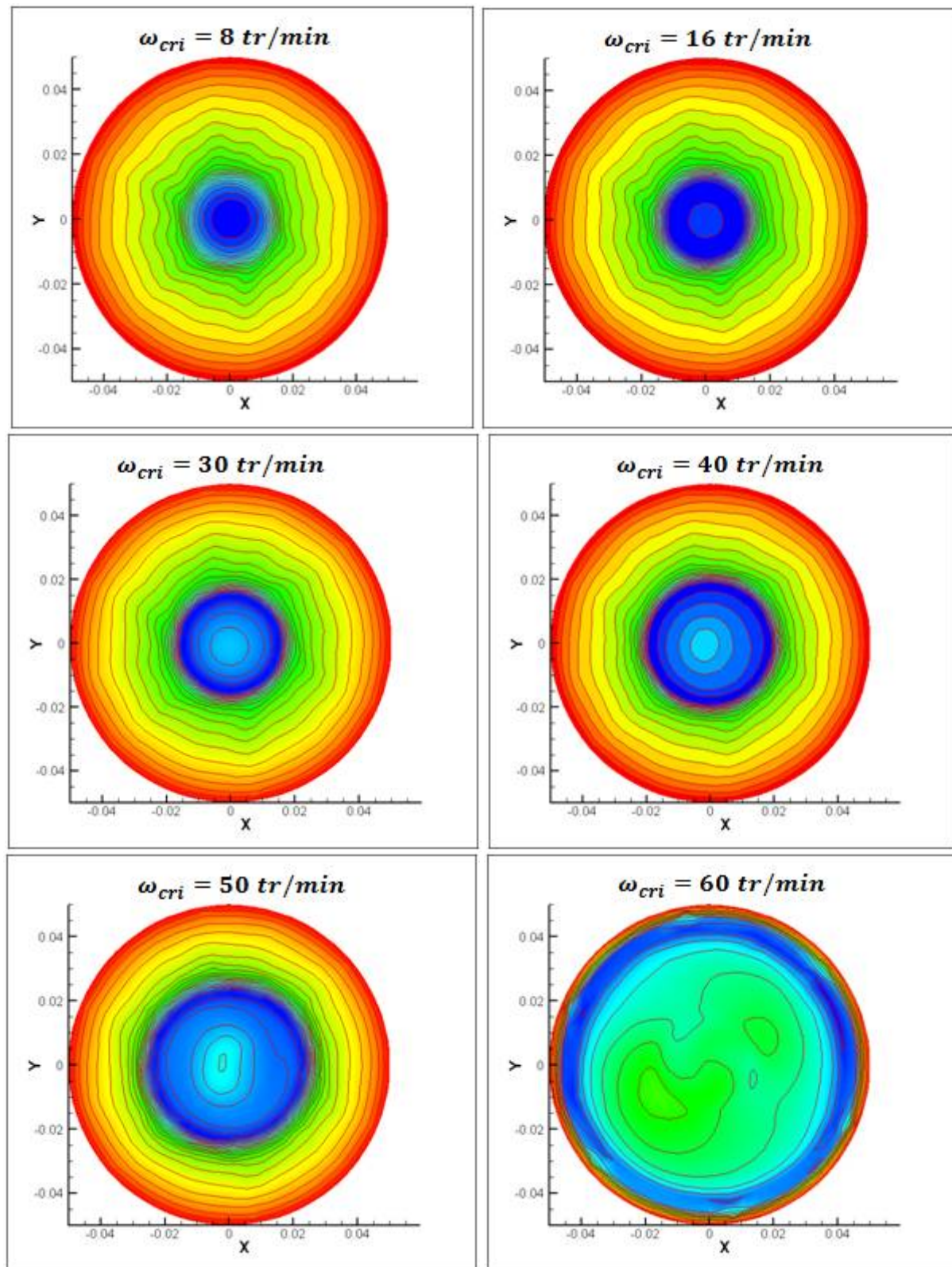


Figure III.29 : Contours de la température dans le plan horizontal ($z = 0.098 \text{ m}$) juste en dessous de la surface libre (cas stationnaire).

D'après les résultats représentés sur les deux figures (III.28 et III.29), nous remarquons qu'après un certain temps les particules fluides le long de la distance radiale commencent à acquérir la même vitesse de rotation, ce qui fait disparaître les cellules de rotation (cas stationnaire). Pour les vitesses de rotation relativement faibles $\omega_{cri} \leq 30 \text{ tr/min}$ ces cellules donnent une idée sur la symétrie de l'écoulement dans le creuset et ceci est réalisé soit dans le cas instationnaire ou dans le cas stationnaire. Pour les vitesses de rotation $40 \text{ tr/min} \leq \omega_{cri} \leq 50 \text{ tr/min}$ nous remarquons que la symétrie commence à disparaître à partir de 40 tr/min et il est bien illustré que le mouvement devient totalement non-symétrique pour les vitesses de rotation $\omega_{cri} \geq 60 \text{ tr/min}$. Ceci confirme les mêmes résultats trouvés plus haut dans le cas des contours de la température dans le plan vertical méridien.

La perte de symétrie est liée à une balance entre les forces inertielles et les forces visqueuses.

Pour les faibles vitesses de rotation les forces visqueuses sont plus importantes menant à un écoulement laminaire symétrique tandis que pour les vitesses de rotation plus élevés les forces inertielles sont plus significatives et l'écoulement perd totalement sa symétrie d'autant encore plus lorsque la convection de Marangoni couple les différentes composantes de la vitesse avec les différentes composantes du gradient de la température au niveau de la surface libre.

III.9-3-Profil radial de température

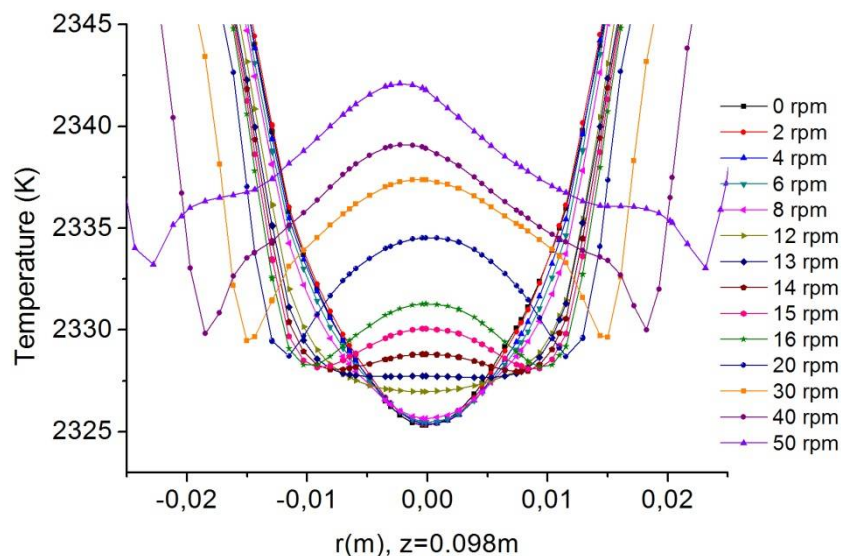


Figure III.30 : Profil radial de la température (2mm) juste au dessous de la surface libre pour différentes vitesses de rotation.

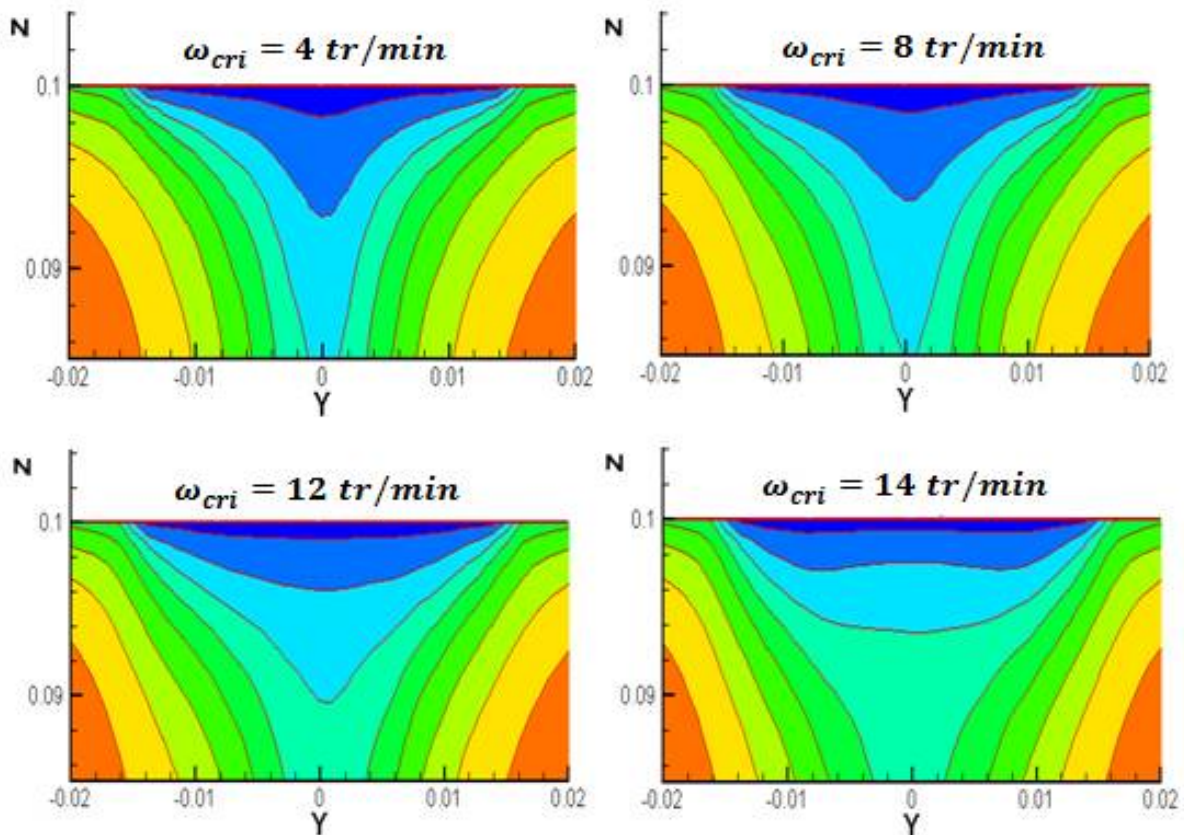
La figure III.30 montre les profils radiaux de température dans le cas d'un régime stationnaire le long d'une ligne horizontale $z = 0,098 \text{ m}, \theta = 0$ (2mm juste au dessous de la surface libre).

Ces profils confirment les résultats discutés précédemment où: pour $\omega_{cry} \leq 40 \text{ tr/min}$ les profils de température sont symétriques. $40 \text{ tr/min} \leq \omega_{cri} \leq 50 \text{ tr/min}$ La symétrie commence à disparaître. Pour $\omega_{cri} \geq 60 \text{ tr/m}$, l'écoulement devient totalement tridimensionnel non axisymétrique.

III.10-La vitesse de rotation optimale

Dans le cas du saphir (Al_2O_3) la forme de l'interface liquide-solide est fortement liée à la vitesse de rotation du germe (cristal) [25]. Cette vitesse de rotation joue un rôle important sur la forme de cette interface lors du processus de Czochralski [11]. Dans cette partie, nous allons étudier la forme de l'interface liquide-solide juste près de la température de fusion. Cette analyse a été faite pour une gamme de vitesses de rotation où l'écoulement à l'intérieur du creuset reste toujours symétrique.

Notre objectif est de trouver la vitesse de rotation optimale conduisant à une interface plane où nous avons exploré différentes vitesses jusqu'à 16 tr/min. La figure ci-dessous montre les isothermes dans la région centrale près de l'axe dans le même plan horizontal 2 mm en-dessous de l'interface de cristallisation.



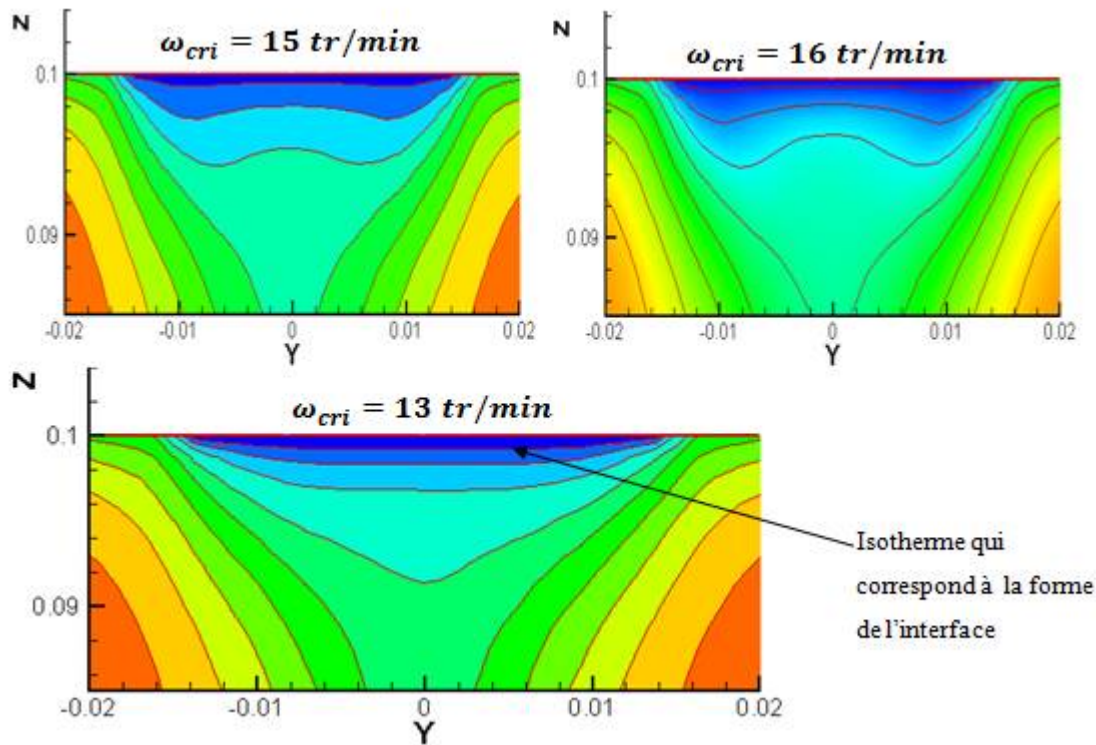


Figure III.31 : Effet de la vitesse de rotation sur la forme de l'interface liquide-solide.

Pour les conditions expérimentales, on constate que pour des vitesses de rotation $\omega_{cri} \leq 13 \text{ tr/min}$, la forme de l'interface liquide-solide est concave.

Pour les vitesses de rotations $\omega_{cri} > 13 \text{ tr/min}$, la forme de l'interface est convexe.

Pour la vitesse de rotation $\omega_{cri} = 13 \text{ tr/min}$, la forme de l'interface liquide-solide est plate. On peut dire que, dans ces conditions expérimentales, cette valeur de vitesse de rotation de 13 tr/min correspond à la vitesse de rotation optimale qui donne une interface plane.

Bien entendu si l'on change les données expérimentales on obtient une autre valeur de la vitesse optimale.

La figure ci-dessous confirme ce résultat où il est bien clair que le profil radial de la température a une forme plane pour la vitesse de rotation $\omega_{cri} = 13 \text{ tr/min}$ qui est représentée par la couleur verte.

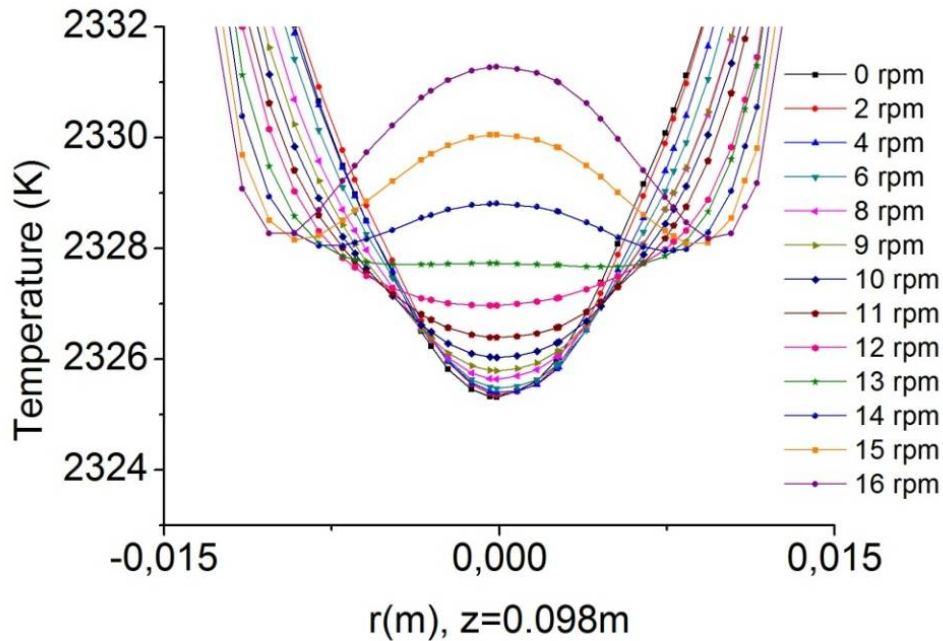
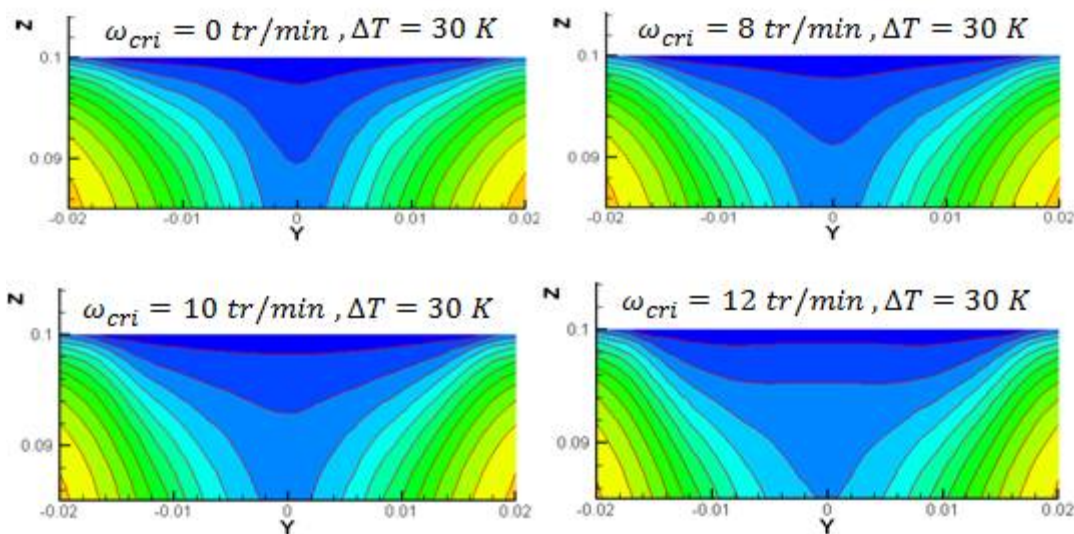


Figure III.32 : Profil radial de température pour différentes vitesses de rotation.

III.10-1-Effet du nombre de Rayleigh sur la vitesse de rotation optimale

Dans cette partie, nous allons voir l'effet du nombre de Rayleigh (en faisant varier la température de chauffage des parois du creuset) sur la forme de l'interface liquide-solide et par conséquent sur la valeur de la vitesse de rotation optimale correspondant à une interface plane. Les figures ci-dessous présentent la forme de l'interface liquide-solide pour différentes températures de chauffage. On fixe la valeur de Rayleigh et on fait varier la vitesse de rotation du cristal et on cherche la forme plane de l'interface.

III.10-1-1-La forme de l'interface L/S pour un chauffage de 2353 K ($Ra = 3 \times 10^5$)



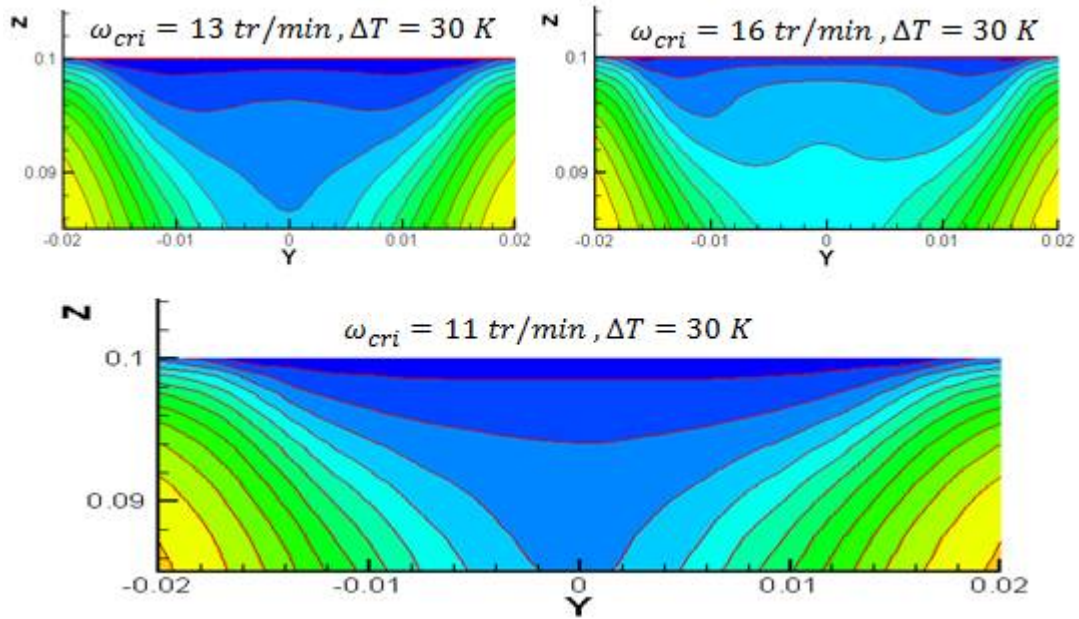
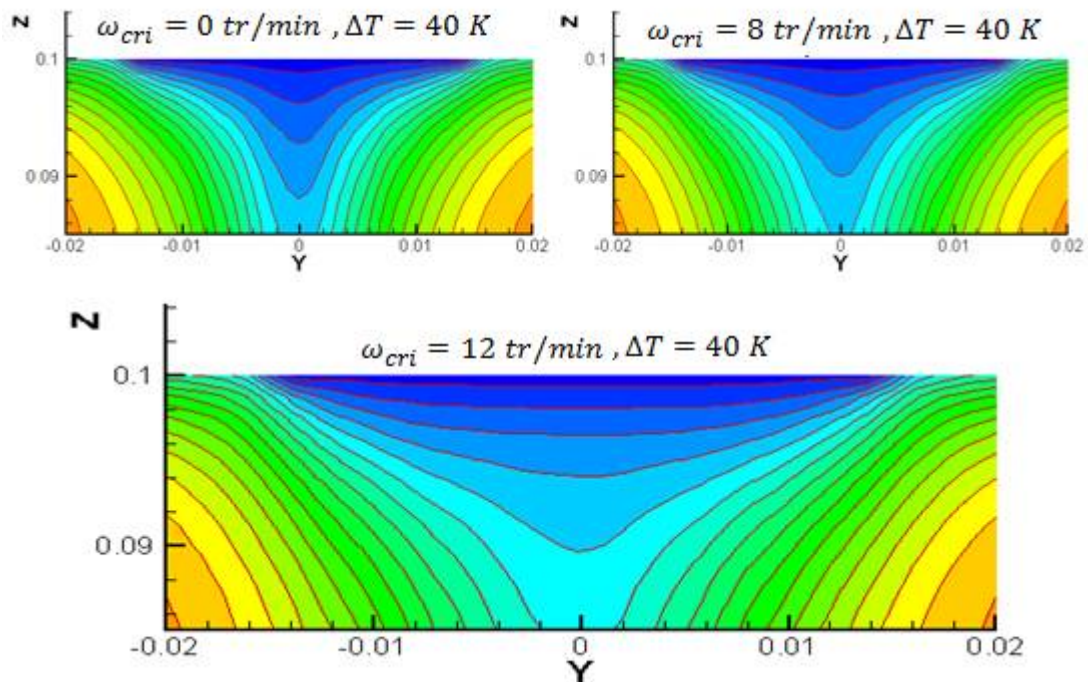


Figure III.33 : Effet de la température de chauffage sur la forme de l'interface liquide solide (Rayleigh = 3^{E5}).

La figure III.33 montre qu'avec l'augmentation de la vitesse de rotation du cristal la convexité de l'interface (forme des isothermes près de l'interface solide -liquide) diminue pour des valeurs inférieures à 11 tr/min, elle est plane pour 11 tr/min, au delà elle devient légèrement concave.

III.10-1-2-La forme de l'interface L/S pour un chauffage 2363K ($Ra = 4 \times 10^5$)



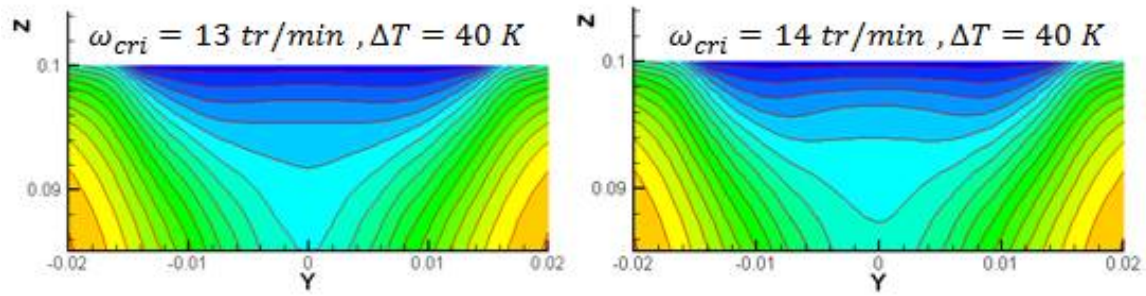


Figure III.34 : Effet de la température de chauffage sur la forme de l'interface L/S, $Ra = 4^E5$. Dans le cas où la température de chauffage est $T_{cru} = 2363K$, la vitesse optimale qui donne une interface plane est $\omega_{cri}^{opt} = 12 tr/min$.

III.10-1-3-La forme de l'interface L/S pour un chauffage 2383K ($Ra = 6 \times 10^5$)

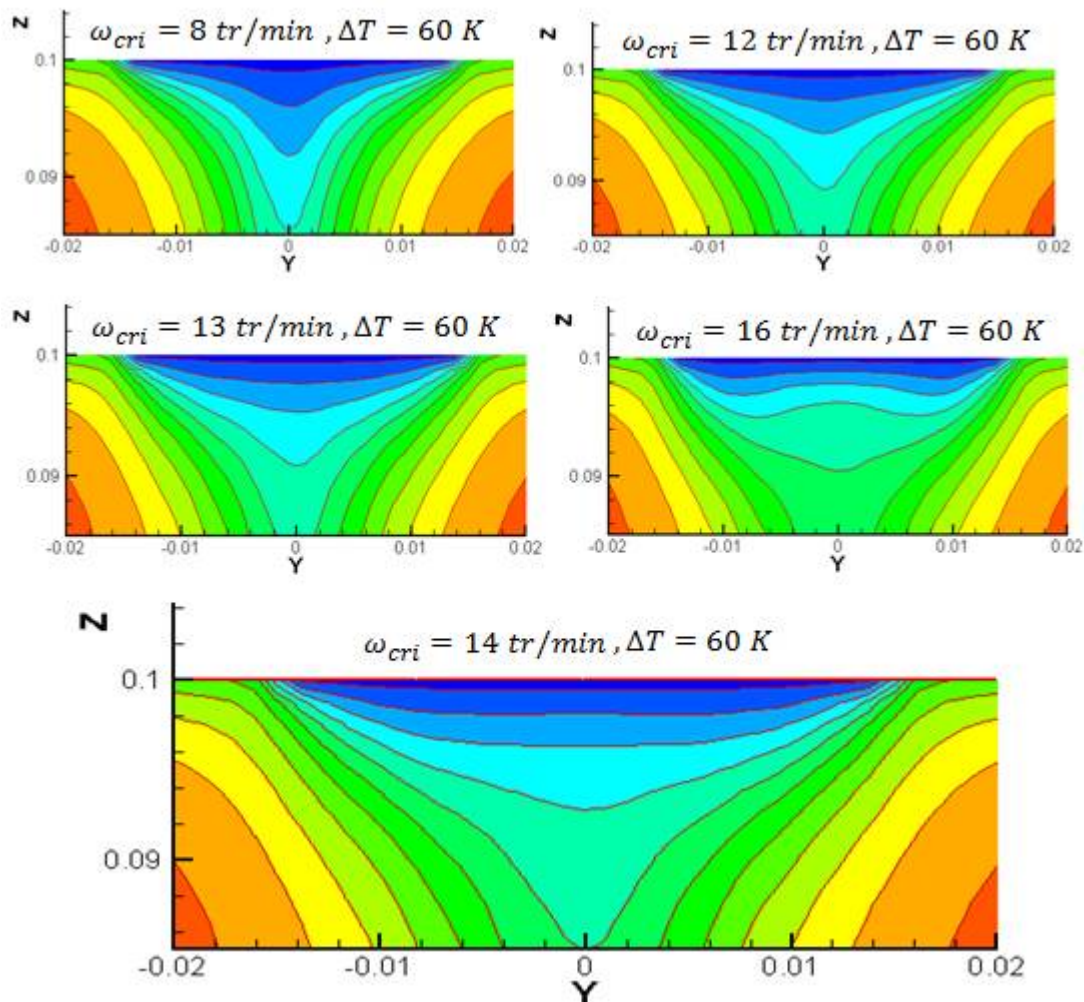


Figure III.35 : Effet de la température de chauffage sur la forme de l'interface L/S, $Ra = 6^E5$.

Dans le cas où la température de chauffage est $T_{cru} = 2383K$, la vitesse optimale qui donne une interface plane est $\omega_{cri}^{opt} = 14 \text{ tr/min}$.

III.10-1-4-La forme de l'interface L/S pour un chauffage 2393 K ($Ra = 7 \times 10^5$)

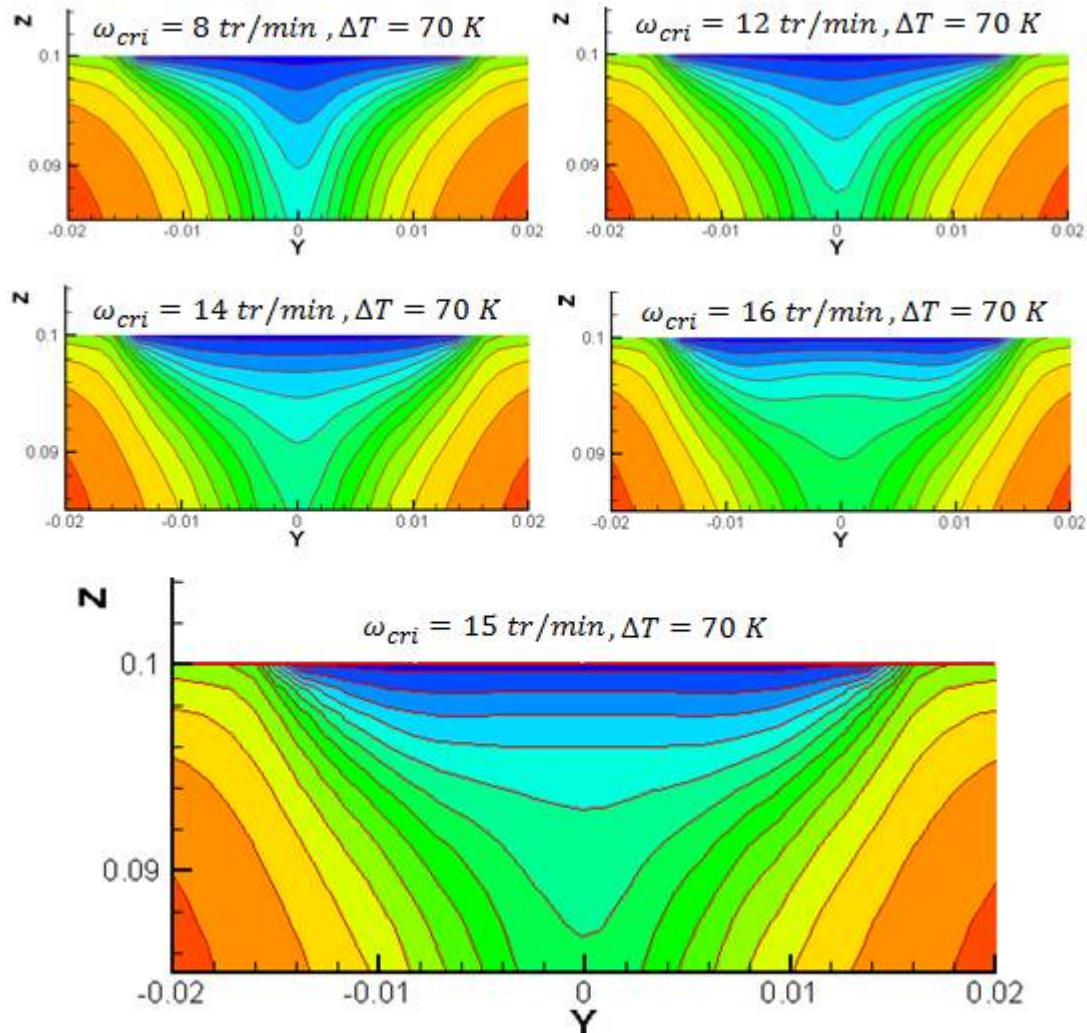


Figure III.36 : Effet du chauffage sur la forme de l'interface L/S ($Ra = 7 \times 10^5$) pour différentes vitesses de rotation.

D'après la Fig III.36 nous notons que pour les vitesses de rotation inférieures à 15 tr/min la convexité de l'interface solide- liquide diminue avec l'augmentation de la vitesse de rotation du cristal. Pour une valeur de 15 tr/min la forme de l'interface est plane. Au delà elle devient concave.

La figure ci-dessous montre la variation de la valeur optimale de la vitesse de rotation du cristal en fonction du nombre de Rayleigh. On note que la vitesse optimale augmente de façon linéaire à raison de 1tr/min lorsque Rayleigh augmente de 10^5 c.-à-d. la vitesse de rotation optimale augmente avec l'augmentation de température du chauffage. Ce qui montre

que si l'écart de température entre les parois du creuset et le point de fusion du saphir augmente il faut augmenter la vitesse de rotation du cristal pour avoir des conditions de croissances optimales.

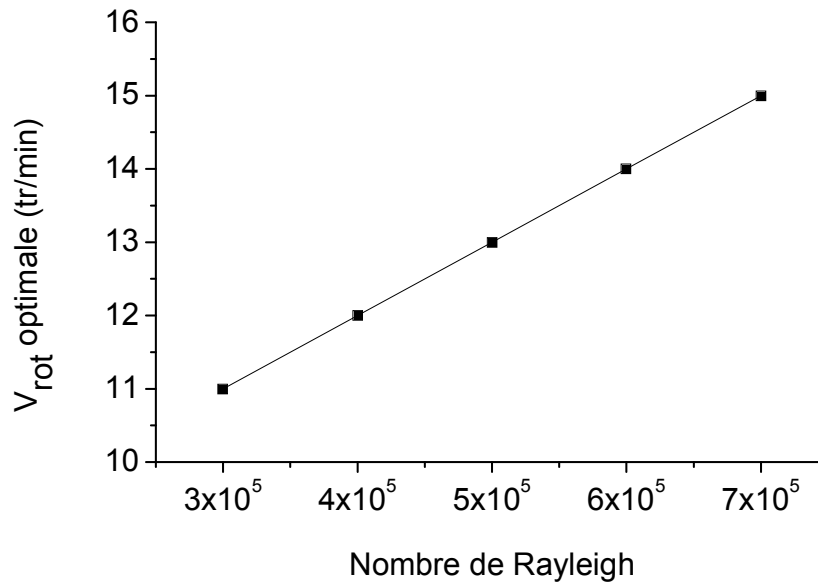


Figure III.37 : Effet de la température de chauffage sur la vitesse de rotation optimale.

III.11-Instabilités thermiques

En plus de la symétrie de l'écoulement et de la forme de l'interface liquide-solide, les fortes instabilités de la température affectent aussi la qualité du cristal tiré. Nous avons donc réalisé une étude détaillée de ces instabilités de température le long du processus de croissance.

Afin d'étudier les instabilités thermiques 2 mm juste en-dessous de l'interface liquide-solide, nous avons réalisé un maillage raffiné qui est présenté précédemment.

Le choix de cette zone qui est située 2mm juste en-dessous de l'interface de cristallisation est basée sur que tous les phénomènes ressemblent dans cette zone (la convection naturelle, la convection forcée, la convection de Marangoni).

Les fluctuations de température près de cette interface sont analysées pour différentes vitesses de rotation en utilisant la transformé de Fourier rapide (FFT) intégrée dans le logiciel Fluent. Ce calcul a été réalisé en tenant compte de la convection naturelle et forcée (convection mixte), du rayonnement (transfert de chaleur radiatif) et de la convection de Marangoni au niveau de la surface libre du saphir liquide.

III.11-1-Analyse des fluctuations de la température

III.11-1-1-Variation temporelle de la température

Dans cette partie nous représentons la variation de la température en fonction du temps (variation temporelle) pour différentes vitesses de rotation du cristal à la position P4 ayant des fluctuations plus importantes. Ces résultats sont représentés juste en dessous de l'interface liquide-solide ($z = 0.098m$).

Tous d'abord nous commençons par la variation temporelle de la température pour les petites vitesses de rotation ($\omega_{cri} \leq 20 \text{ tr/min}$).

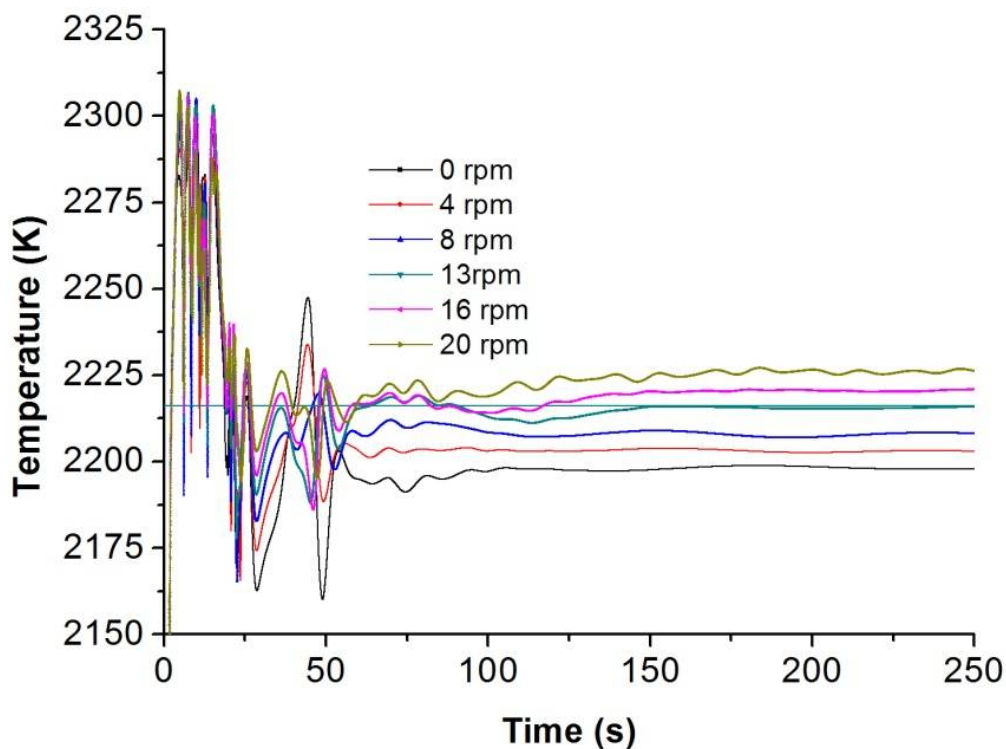


Figure III.38 : Variation temporelle de la température juste en dessous de l'interface liquide-solide pour différentes vitesses de rotation du cristal à la position P4.

D'après la Fig III.38 nous remarquons que :

- la valeur asymptotique de la température est atteinte aux environs de 200 secondes.
- Ce temps transitoire est le même pour toutes les vitesses inférieures à 20 tr / min.
- Il est clair que la convection forcée due à la rotation du cristal renforce le transfert de chaleur à l'intérieur du creuset, ce qui augmente la valeur asymptotique de la température pendant le régime transitoire.

Pour les vitesses de rotation $\omega_{cri} < 40 \text{ tr/min}$ la valeur asymptotique de la température augmente avec l'augmentation de la vitesse de rotation du cristal ω_{cri} atteignant une valeur limite.

Pour des vitesses de rotation relativement élevées, $\omega_{cri} \geq 40 \text{ tr/min}$, la température devient instable comme indiqué sur la figure III.39.

Nous remarquons également que les spectres de température sont continus et que des amplitudes de température plus élevées sont observées pour les basses fréquences. Ceci est valable pour toute la gamme des vitesses de rotation étudiées.

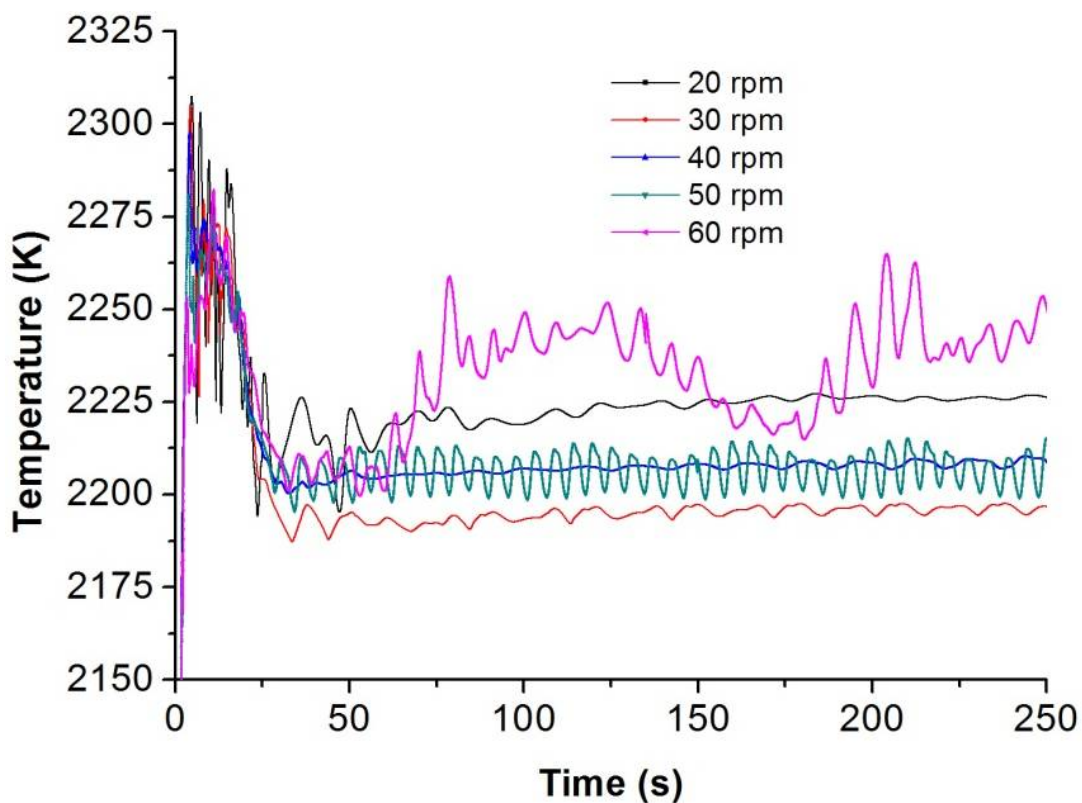


Figure III.39 : Variation temporelle de la température pour des vitesses de rotation élevées à la position P4.

D'un autre côté les oscillations de température dépendent de la vitesse du cristal considérée sont plus importantes pour les grandes vitesses de rotation que pour les petites vitesses.

Pour une vitesse de rotation égale à 50 tr/min les instabilités sont périodiques, et pour une vitesse de rotation égale à 60 tr/min on remarque une perte de périodicité avec une augmentation de l'amplitude des fluctuations de température.

III.11-1-2-Les fluctuations de la température

Nous avons également effectué une analyse détaillée des fluctuations de la température près de l'interface liquide-solide pour différentes vitesses de rotation proposées en utilisant la transformation de Fourier (FFT).

L'analyse de la Fig III.40 montre que le spectre de la magnitude de la température ne dépend pas de la vitesse de rotation d'une manière simple.

Cependant, nous remarquons à partir de ces profils que l'amplitude du mode de basse fréquence (environ 0,03 Hz) diminue lorsque la vitesse de rotation augmente de 0 à 16 tr / min.

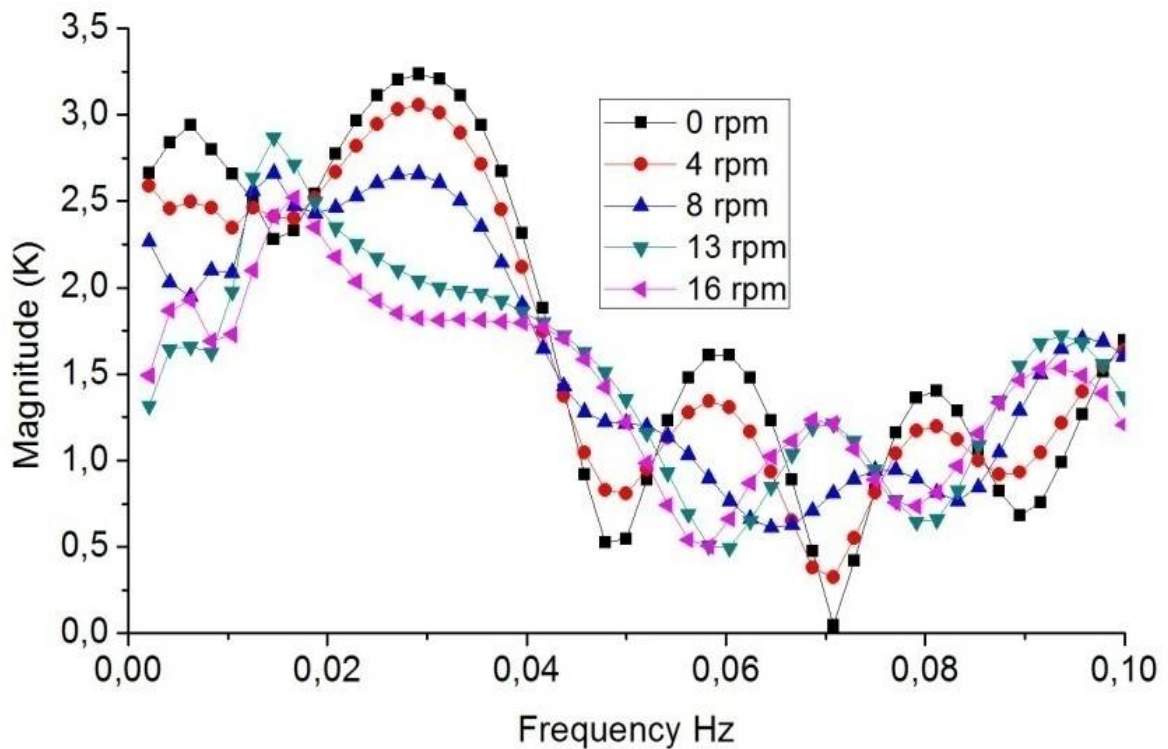


Figure III.40 : Magnitude des fluctuations de température à P4 (2 mm au-dessous de l'interface) pour les petites vitesses de rotation.

La figure ci-dessous montre la magnitude des fluctuations de la température pour les vitesses de rotation relativement élevées.

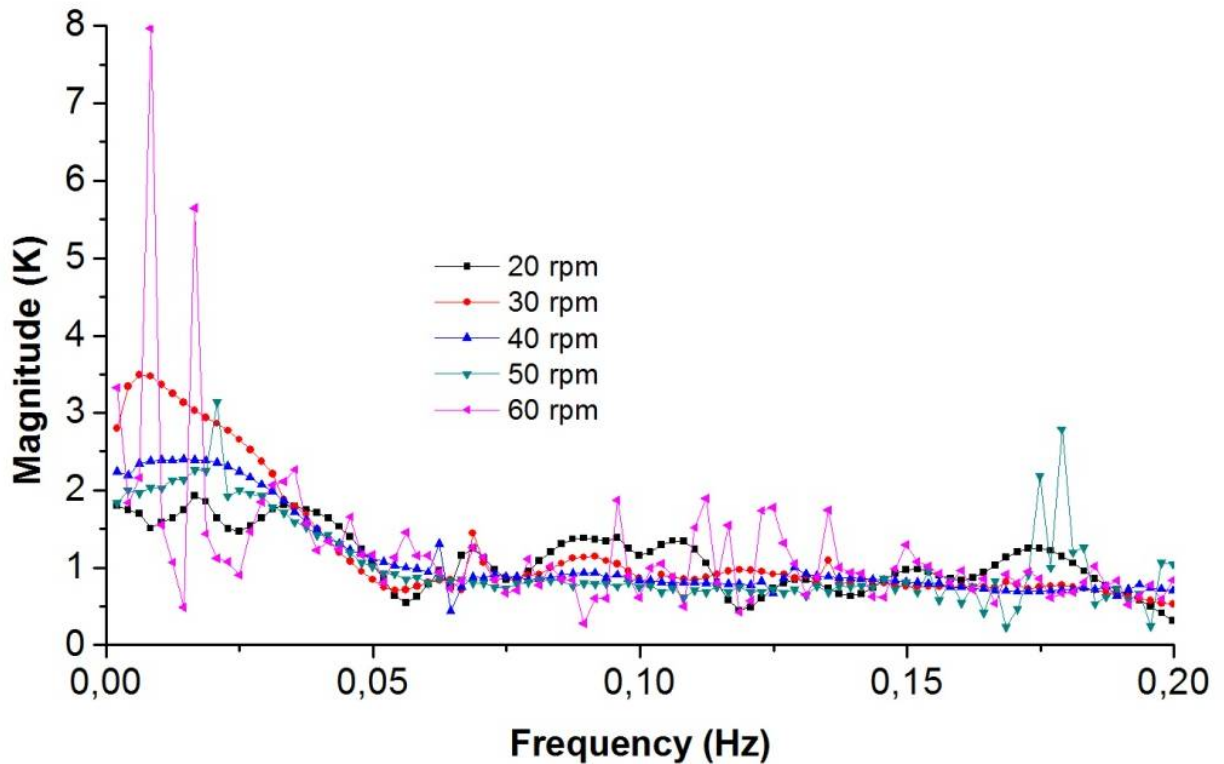


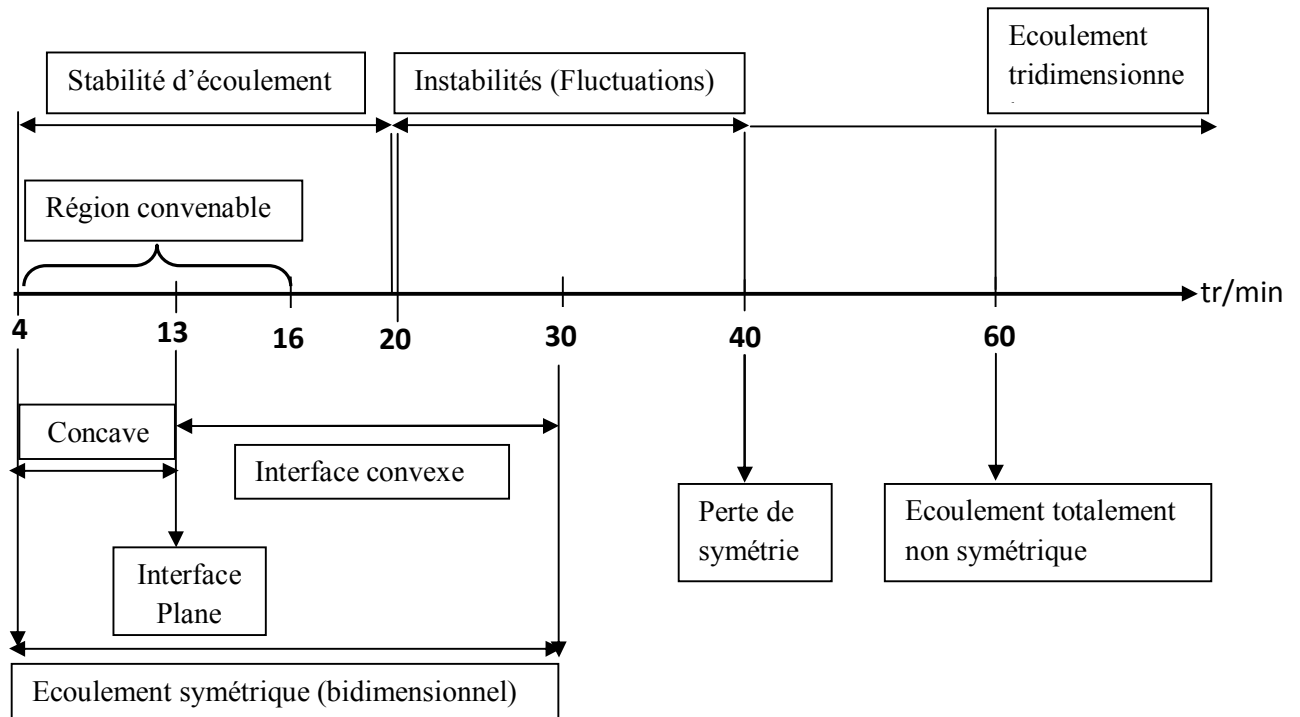
Figure III.41 : Magnitude des fluctuations de température pour les grandes vitesses de rotation.

Pour les vitesses de rotation relativement élevées (par exemple 50 et 60 tr/min), nous remarquons que le spectre de la magnitude de température se compose d'un grand nombre d'harmoniques ce qui indique que l'écoulement est fortement instationnaire.

Nous constatons que les valeurs maximales de la magnitude sont obtenus pour les faibles fréquences; alors que les faibles amplitudes sont observées pour les grandes fréquences.

Conclusion

Le diagramme suivant résume les résultats obtenus de l'étude numérique de la symétrie de l'écoulement, les instabilités de la température, et de la vitesse optimale pour $\Delta T = 50K$



On peut conclure les points suivants :

- Pour les vitesses de rotation supérieures à 20 tr/min, nous notons que les spectres deviennent instables avec des fluctuations élevées et il devient plus difficile de les analyser comme il est montré sur la figure III.41.
- Pour les vitesses de rotation supérieures à 40 tr/min les fluctuations augmentent significativement et l'écoulement perd totalement la symétrie cylindrique.
- Puisque les fluctuations de la température déterminent la qualité du cristal tiré, la vitesse de rotation doit être inférieure ou égale à 20 tr/min dans le but de diminuer les fluctuations. Donc pour minimiser les amplitudes des modes des instabilités de température de basse fréquence, la gamme des vitesses de rotation $\omega_{cri} \leq 16$ tr/min est une région convenable pour donner les bonnes conditions de croissance. Ce résultat montre que cette gamme de vitesse déterminée par la simulation est la même gamme de vitesse de rotation du cristal utilisée par l'expérimentateur (Expérimental. A. Nehari) [7]. Dans ce travail expérimental l'ensemble de la croissance est effectué en

maintenant le cristal en rotation à des vitesses de 4 à 16 tr/min et ceci dans le but d'homogénéiser le bain et de contrôler la forme de l'interface de cristallisation.

- Dans cette gamme de vitesse de rotation nous avons trouvé que la vitesse de rotation optimale qui permet le tirage d'un cristal de bonne qualité est la vitesse $\omega_{\text{cri}} = 13 \text{ tr/min}$. Cette vitesse de rotation nous donne une forme plane de l'interface de cristallisation.
- Il est bien entendu que les conditions de croissance présentées par le diagramme précédent sont valides pour $\Delta T = 50 \text{ K}$ c.-à-d. pour un nombre de Rayleigh égale à 5×10^5 . Si on augmente la température du creuset c.-à-d. on change le nombre de Rayleigh, les conditions décrites par le diagramme change aussi. Nous avons effectué une étude complète pour des conditions optimales pour différents nombre du Rayleigh.
- Nous avons trouvé que la vitesse optimale augmente linéairement avec le nombre du Rayleigh. Ce qui veut dire que si l'écart de température entre la température du chauffage du creuset et le point de fusion du saphir (l'interface solide-liquide) augmente il faut augmenter la vitesse de rotation du cristal pour avoir des conditions de croissances optimales.

Chapitre IV

Fibres préformées tirées par la technique de micro-pulling down

Les fibres préformées de section circulaire et carrée du saphir non dopé et dopé au titane sont modélisées dans ce présent chapitre. La distribution des espèces dans un matériau intéressant comme le saphir (Al_2O_3) d'un point de vue des applications est souvent complexe et il nous faut nous intéresser à l'homogénéité des dopants dans les fibres et les cristaux élaborés ce qui représente l'objectif de la première partie de ce chapitre. Nous avons réalisé une simulation numérique bidimensionnelle (problème axisymétrique) en utilisant un programme en Fortran.90 pour valider les résultats expérimentaux concernant les fibres du saphir dopé au titane (Ti^{3+}) qui sont tirées expérimentalement par la méthode de micro pulling down (μ PD) [1].

Dans la deuxième partie de ce chapitre nous avons réalisé une simulation numérique tridimensionnelle des fibres du saphir non dopées préformées de section carrée tirées par différentes vitesses. Cette étude a été effectuée dans le but d'étudier l'effet de la vitesse de tirage sur la forme de l'interface liquide-solide ainsi que sur le transfert de chaleur lors du processus de la solidification.

IV.1-Introduction

La distribution des dopants dans une fibre monocristalline a une grande importance dans les performances de la fibre considérée comme un milieu actif dans un laser. Dans ce chapitre, nous présentons les résultats obtenus pour les fibres préformées de section circulaire lors de la modélisation de la croissance cristalline du saphir (Al_2O_3) dopé au titane avec la méthode de micro pulling down. Notre objectif est d'étudier la distribution et l'homogénéité des dopants de titane (Ti^{3+}) dans le center et le long de l'axe de la fibre tirée. Ceci afin d'augmenter le couplage entre l'onde laser et les ions du dopant pour donner la plus haute puissance lumineuse possible en sortie de laser. Notre étude est concentrée aussi sur le transfert de chaleur dans le creuset et dans la zone fondue où nous cherchons la forme de l'interface liquide-solide. Cette simulation a été effectuée pour étudier plusieurs paramètres, nous citons l'homogénéité de la concentration axiale des dopants le long de la fibre monocristalline tirée, l'effet de la vitesse de tirage sur la concentration radiale des dopants. Pour visualiser la forme de l'interface liquide/solide nous étudions le transfert thermique dans le domaine d'étude.

IV.2- Représentation du domaine de micro pulling down (μ -PD) :

Le système à modéliser est schématisé dans la figure ci-dessous :

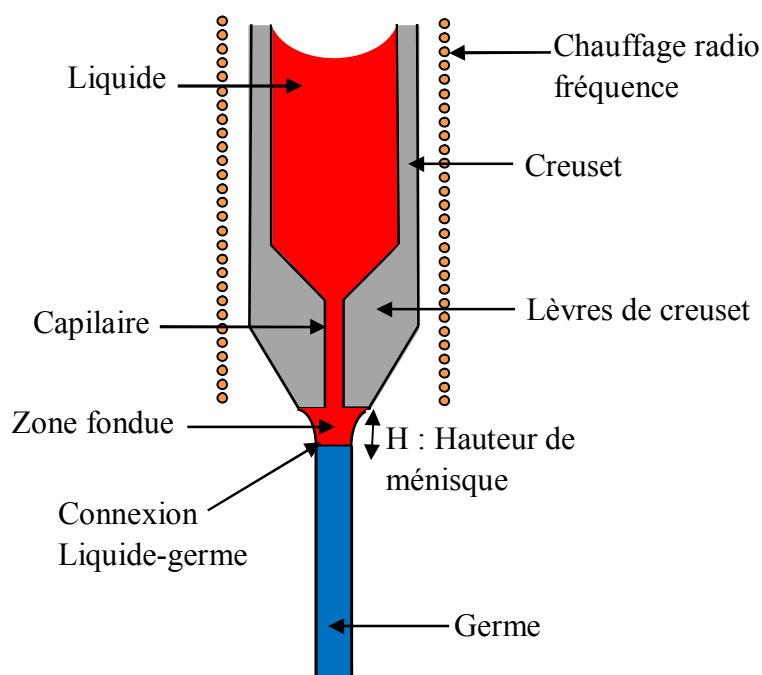


Figure VI.1 : Diagramme Schématique de domaine de μ -PD.

La matière première (L'alumine liquide) présentée par la couleur rouge dans le creuset, la couleur bleu présente la fibre cristalline tirée (solide). La matière première au sein du creuset est chauffée au-dessus de point de fusion à une température $T_c = T_f + \Delta T$ en utilisant un chauffage RF (fréquence radio) [61].

La croissance cristalline dans le processus de micro pulling down est générée par la connexion de germe avec la goutte pendante au bas du creuset (lèvres du creuset) et à travers le capillaire dans le creuset. L'utilisation de la méthode de micro-pulling-down (μ -PD) est basée principalement sur l'utilisation du capillaire pour la croissance des fibres et des cristaux monocristaux préformés.

Dans la figure ci-dessous, nous présentons les fibres monocristallines de saphir dopé au titane tirées le long de la direction [0001] par différentes vitesses de tirage [1]. Notre modélisation se base sur les données expérimentales tirées des conditions de croissance de ces fibres.

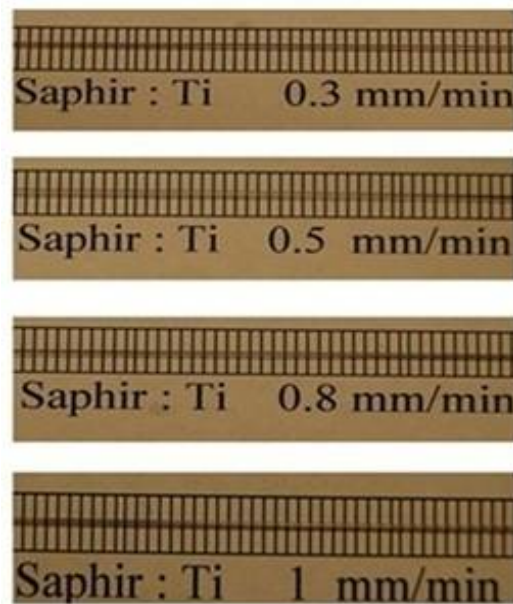


Figure IV.2 : Fibres monocristallines du saphir dopé au titane.

Le tableau ci-dessous montre les caractéristiques des fibres de saphir : Ti^{+3} tirées par différentes vitesses de tirage [0.3-1mm/min]. Ces vitesses sont les mêmes vitesses introduites dans notre modèle numérique.

Tableau IV.1 : Résumé des fibres saphir-Ti³⁺ élaborés [1].

Référence	Vitesse de tirage mm/min	Germe amorçage et tirage	Puissance % Sur 25 KW	Géométrie de la zone liquide
01	0.3	[0001] stable	33.8	Plane
02	0.5	[0001] stable	33.8	Plane
03	0.8	[0001] stable	33.8	Plane
04	1	[0001] stable	33.8	Plane

La figure suivante présente un zoom de la zone fondue qui présente la zone qui est en dessous du capillaire comme il est montré dans la figure IV.1, où R_m est la distance radiale de la surface libre ; ϕ_0 : est l'angle de croissance déterminé par l'orientation cristallographique et spécifié par les tensions superficielles et la triple jonction cristalline-liquide-solide-gaz [10].

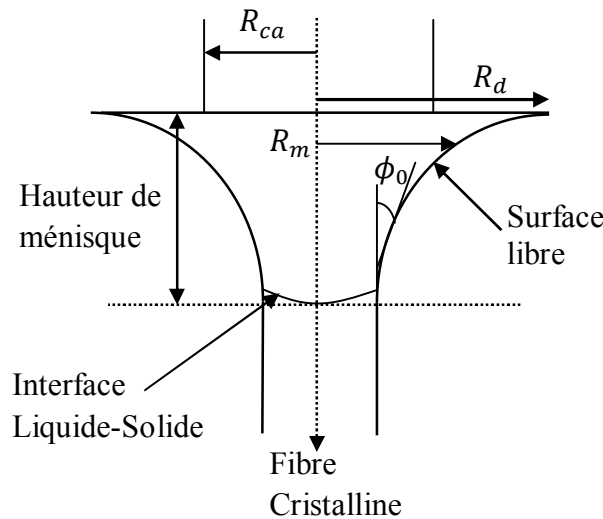


Figure VI.3 : Zoom de la zone fondue.

Une description schématique du ménisque est montrée dans ce zoom, où la forme de la fibre cristalline doit être contrôlée par la forme du ménisque (c'est-à-dire l'angle de mouillage doit prendre une valeur bien déterminée qui est égale la valeur de l'angle de croissance du matériau utilisé ($\phi = \phi_0$) [110]. Dans notre cas $\phi_0 = 17^\circ$ dans la direction « c » de croissance du cristal [0001] [1, 86, 61].

Le contact entre le germe et le liquide qui se trouve dans le creuset peut alors être

réalisé par l'interface solide – liquide qui établit la croissance du cristal. Le tirage s'effectue vers le bas avec des vitesses contrôlées reliées entre elles par la relation :

$$(d_{cri})^2 v_{cri} = (d_{cap})^2 v_{cap} \quad (IV.1)$$

d_{cri} : Diamètre du cristal.

v_{cri} : Vitesse du cristal.

d_{cap} : Diamètre du capillaire.

v_{cap} : Vitesse du capillaire.

IV.3-Formulation mathématique

Le domaine de calcul est présenté dans la figure 4. Afin de réduire le temps de calcul CPU, on peut ignorer la hauteur de liquide dans le réservoir du creuset $h_m - H_{cap} = 0$ [111]. Le domaine de calcul commence au haut du capillaire de creuset à H_{cap} , comme il est montré dans le diagramme schématique de la figure IV.4.

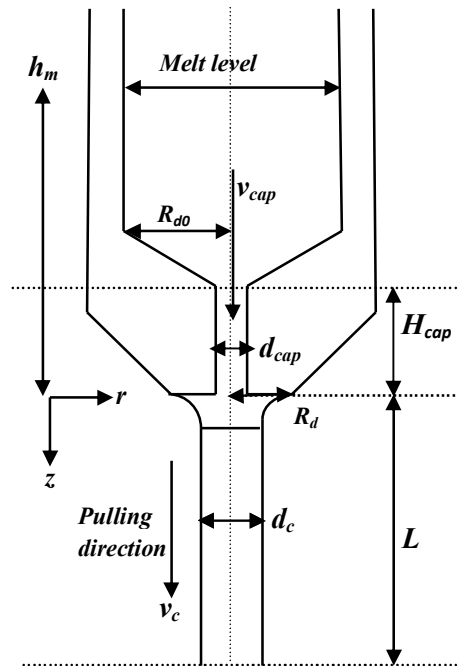


Figure VI.4 : diagramme schématique du domaine de calcul.

R_{d0} : Rayon du creuset ; d_{cap} : Diamètre du capillaire ; d_{cri} : Diamètre du cristal.

h_m : Hauteur du liquide dans le creuset ; h_c : Hauteur du ménisque.

L_h : Longueur du capillaire ; L : Longueur de fibre et de la zone fondue.

v_{cri} : Vitesse du cristal ; v_{cap} : Vitesse du liquide dans le capillaire.

γ : Coefficient de la tension superficielle. R_d : Rayon du bas du creuset.

IV.3-1-Le modèle obtenu en coordonnées cylindrique :

Equation de quantité du mouvement :

Suivant la direction r :

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial r} + v \frac{\partial u}{\partial z} = -\frac{1}{\rho_0} \frac{\partial p}{\partial r} + \nu \left(\frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r u) \right) + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right)$$

Suivant la direction axiale z :

$$\begin{aligned} \frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial r} + v \frac{\partial v}{\partial z} \\ = -\frac{1}{\rho_0} \frac{\partial P_m}{\partial z} + \nu \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial v}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right) - g_z \beta_T (T - T_0) \\ + g_z \beta_C (C - C_0) \end{aligned}$$

Equation de l'énergie :

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial (ruT)}{\partial r} + \frac{\partial (vT)}{\partial z} = \alpha \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right)$$

L'équation de la concentration :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial (ruC)}{\partial r} + \frac{\partial (vC)}{\partial z} = D_m \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial C}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \right)$$

Equation de la continuité :

$$\text{div } V = \nabla \cdot V = \frac{1}{r} \frac{\partial (ru)}{\partial r} + \frac{\partial v}{\partial z} = 0$$

IV.3-2-Normalisation des équations

Une étape-clé dans le passage du modèle physique au modèle numérique est l'adimensionnalisation des équations et le choix des variables numériques. L'avantage de cette normalisation est que les paramètres caractéristiques tels que le nombre de Prandtl, de Schmidt, Rayleigh, peuvent être variées indépendamment [112], c.-à-d. on peut étudier leur effet sur les résultats obtenus.

On considère notre fluide comme incompressible et Newtonien ; où l'écoulement est Laminaire, les équations gouvernants le problème doivent être sous forme

adimensionnelle, pour cela nous remplaçons les variables par les paramètres de référence suivants [33, 111] :

- La vitesse par : α_m/R_d
- Le temps par : R_d^2/α_m
- La température par $\Delta T_{max} = T_{ch} - T_F$.
- La concentration par la concentration C_0 :

R_d : Diamètre du bas du creuset (longueur de référence).

$T_{ch} - T_F$: Différence entre la température chaude et froide.

C_0 : Concentration minimale du dopant ; α_m : Diffusivité thermique du liquide.

On définit les variables adimensionnelles comme suivant [111] :

Paramètre physique	Expression adimensionnelle
Le temps	$\frac{\partial}{\partial t^*} = \frac{\partial}{\partial t} \frac{R_d^2}{\alpha_m}$;
La dérivée radiale	$\frac{\partial}{\partial r^*} = R_d \frac{\partial}{\partial r}$;
La dérivée axiale	$\frac{\partial}{\partial z^*} = R_d \frac{\partial}{\partial z}$;
La vitesse radiale	$u^* = \frac{R_d}{\alpha_m} u$
La vitesse axiale	$v^* = \frac{R_d}{\alpha_m} v$
La température $T_{ch} = T_d _{-L_h}$; $T_F = T_a = T_0$	$T^* = \frac{T - T_F}{T_{c\Box} - T_F} = \frac{T - T_F}{\Delta T_{max}}$
La concentration :	$C^* = \frac{C - C_0}{C_{max} - C_0}$
La pression	$p^* = \frac{p}{\rho \left(\frac{\alpha_m}{R_d}\right)^2}$; $p = p^* \rho \left(\frac{\alpha_m}{R_d}\right)^2$

IV.3-3-Modèle adimensionnel

Equation de la composante radiale de la vitesse :

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial r} + v \frac{\partial u}{\partial z} = -\frac{\partial p}{\partial r} + Pr \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (ru) \right) + Pr \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\partial u}{\partial z} \right) \quad (IV.2)$$

Equation de la composante axiale de la vitesse :

$$\begin{aligned} & \frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial r} + v \frac{\partial v}{\partial z} \\ &= -\frac{\partial p}{\partial z} + Pr \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rv) \right) + Pr \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right) - Pr Ra_T T \\ &+ \frac{Pr^2}{Sc} Ra_s C \end{aligned} \quad (IV.3)$$

Equation de la continuité

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial (r\rho u)}{\partial r} + \frac{\partial (\rho v)}{\partial z} = 0 \quad (IV.4)$$

Equation de l'énergie :

$$r \frac{\partial T}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial r} (ruT) + \frac{\partial}{\partial z} (rvT) = \alpha_i \left(\frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(r \frac{\partial T}{\partial z} \right) \right) \quad i = (m, c) \quad (IV.5)$$

Equation de la concentration:

$$r \frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial r} (ruC) + \frac{\partial}{\partial z} (rvC) = \frac{Pr}{Sc} \left[\frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial C}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(r \frac{\partial C}{\partial z} \right) \right] \quad (IV.6)$$

L'étape suivante consiste à résoudre les équations précédemment établies afin de donner des réponses et des résultats, soit analytiquement ou numériquement. Dans ce travail la solution sera faire numériquement. Une étape intermédiaire c'est l'étape du maillage de géométrie avec un dépôt des conditions aux limites qui sont la clé de démarrage de la solution numérique. Dans la figure ci-dessous, nous représentons le maillage utilisé avec les conditions aux limites imposées sur le domaine d'étude.

IV.4-Le maillage

Nous divisons le domaine d'étude en grilles longitudinales et transversales dont les intersections représentent des nœuds, tel que, autour de chaque nœud on définit un élément de volume de contrôle. La résolution des équations de notre modèle basée sur une méthode de discrétisation aux volumes finis en adoptant un maillage uniforme et

raffiné pour le calcul. Le raffinement du maillage n'a pas un effet considérable sur les calculs et les résultats à cause des dimensions très petites qui sont de l'ordre de μm .

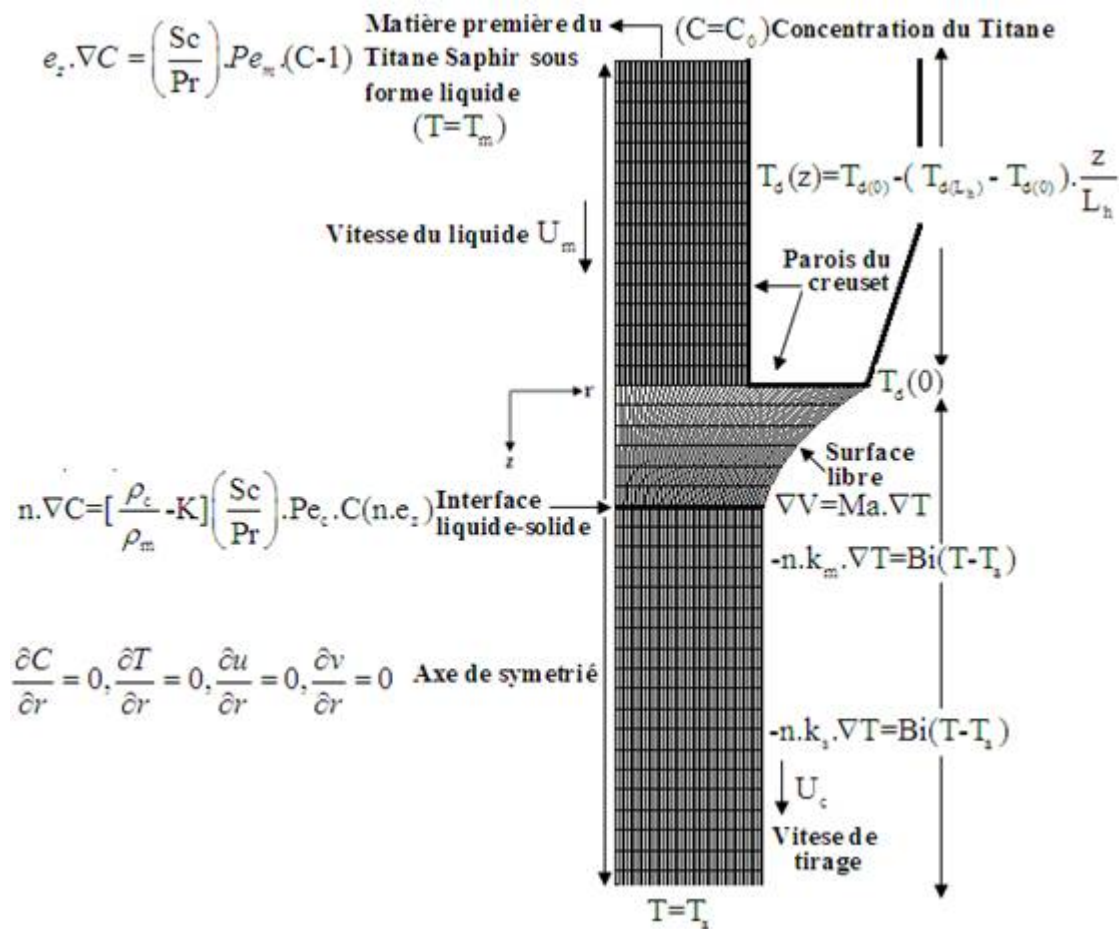


Figure IV.5 : Représentation du maillage et de conditions aux limites du domaine d'étude.

IV.5- Les conditions aux limites :

Les conditions aux limites sont appliquées à toutes les frontières externes du domaine du calcul, les conditions de Dirichlet, et de Cauchy sont utilisées à l'entrée du creuset. Sur les parois du creuset les conditions aux limites pour les vitesses et la concentration sont du type de Neumann, mais la température est une fonction linéaire de la distance axiale. Sur l'axe de symétrie, la condition de la continuité est imposée c.-à-d. la dérivée est nulle pour toutes les variables (la température, la concentration, les vitesses), la condition dans ce cas est de type de Neumann. Dans cette partie, nous présentons les conditions aux limites pour notre domaine d'étude :

A l'entrée supérieure du creuset

$$e_z \cdot \nabla C = Sc/Pr Pe_m (C - 1) \quad (IV. 7)$$

e_z : Vecteur d'unité pour l'axe de croissance (z) ; ∇C : Gradient de la concentration.

$Pe_m = v_m R_d / \alpha_m$: Nombre de Peclet pour le liquide.

A l'interface liquide –solide

La condition de la concentration sur l'interface L/S se donne par:

$$n \cdot \nabla C = \left[\left(\frac{\rho_c}{\rho_m} \right) - K \right] \left(\frac{Sc}{Pr} \right) Pe_c C (n \cdot e_z) \quad (IV. 8)$$

K : Coefficient de ségrégation.

$Pe_c = v_c R_d / \alpha_m$: Nombre de Peclet pour le solide.

n : Vecteur d'unité normal au front de croissance.

Pour la surface libre (condition de Cauchy) : La surface libre subite à un grand gradient thermique c.-a-d. Il y a une convection de Marangoni, donc nous imposons la condition suivante :

$$\nabla V = Ma \cdot \nabla T \quad (IV. 9)$$

$Ma = (\partial \gamma / \partial T) R_d T_f / (\mu_m \alpha_m)$: Nombre de Marangoni.

$\partial \gamma / \partial T$: Coefficient température-tension superficielle ; μ_m : Viscosité du fluide.

La paroi droite du creuset :

La température de la paroi droite du creuset, est donnée comme une fonction linéaire de la distance axiale z longitudinalement à la paroi:

$$T_d(z) = T_d|_0 - (T_d|_{L_h} - T_d|_0) z / L_h \quad (IV. 10)$$

A la surface du matériau (condition de Cauchy) :

Le transfert thermique du système au milieu externe (à l'ambient) est traduit par le terme de conduction-convection, selon le bilan énergétique ci-dessous :

$$-n \cdot k_i \nabla T = Bi (T - T_a) \quad (IV. 12)$$

n : Vecteur d'unité normal sur la surface du liquide ou du solide se dirigeant à l'extérieur.

k_i : Rapport de la conductivité thermique de la phase i sur la phase liquide.

$Bi = h R_d / k_m$: Nombre de Biot.

T_a : Température ambiante.

$i=m$ pour le liquide ; $i=c$ pour le cristal

A l'extrémité de la fibre (condition de Dirichlet et de Neumann) :

Dans la fin du domaine ($z = L$) , la condition du flux nul est employée. la température ambiante est utilisée comme une condition à la limite : $T = T_a$.

La discrétisation

L'écoulement, le transfert thermique et le transfert massique dans le système de croissance sont modélisés en utilisant la méthode de volumes finis (MVF) avec une discrétisation par le schéma Hybride.

IV.5-1- La forme générale des conditions aux limites :

Pour satisfaire la propriété de la conservation, on écrit les conditions aux limites sous la forme générale ci-dessous et nous faisons un résumé pour la forme de ces derniers comme il est montré dans le tableau ci-dessous. La forme générale des conditions aux limites s'écrit comme suit :

$$a. \phi + b. \frac{\partial \phi}{\partial n} = c \quad (\text{IV. 13})$$

Où :

a, b, c : Constantes ; n : La normale.

Condition de Dirichlet :

Pour la condition de Dirichlet, la propriété physique prend une valeur constante (Par exemple : $\phi(U, T, P) = \text{cte}$).

Condition de Neumann :

On impose une condition de flux de la solution à la frontière de la région sous la forme :

$$a. \phi = b. \frac{\partial \phi}{\partial n} \quad (\text{IV. 14})$$

Condition de Cauchy :

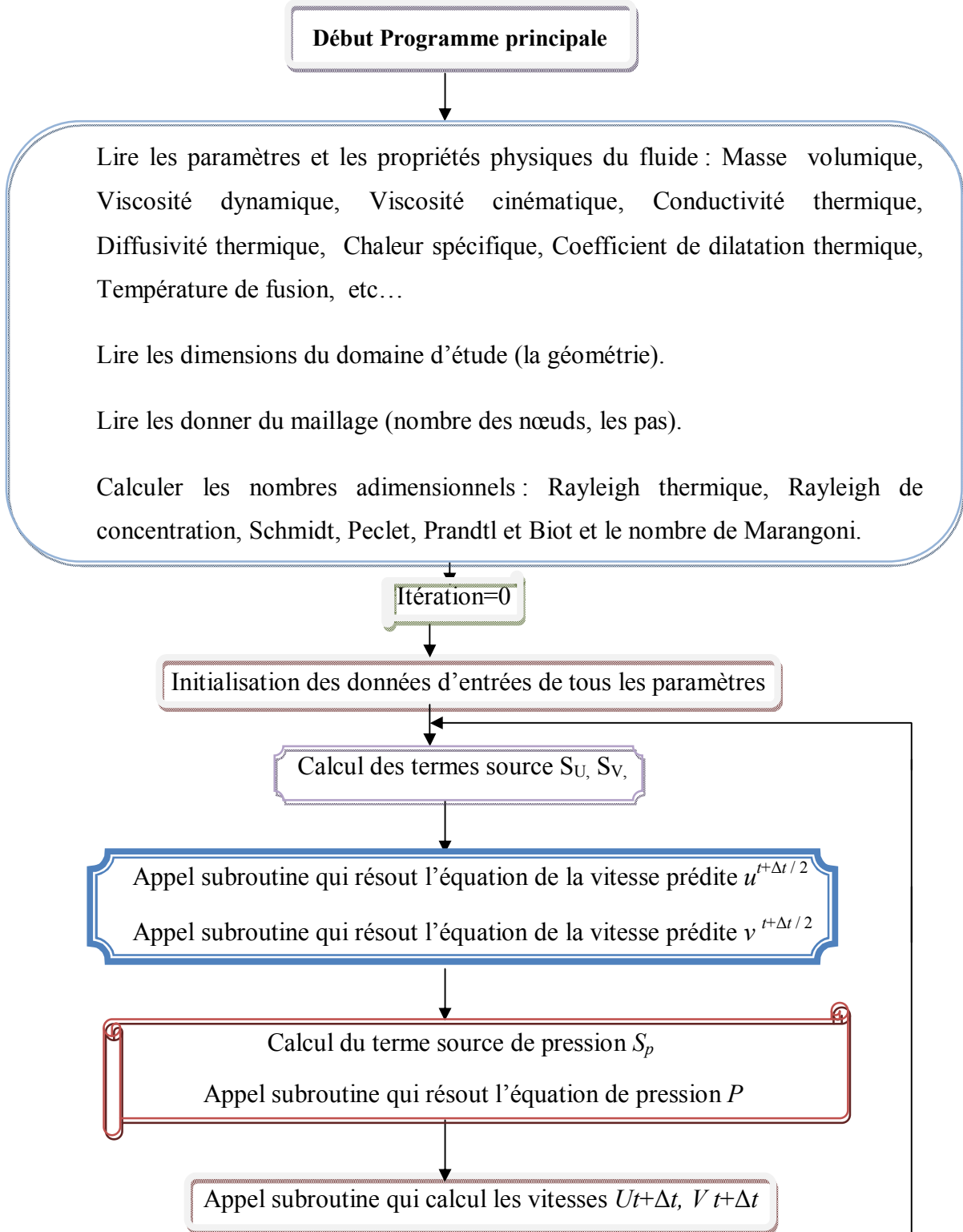
Une condition de Cauchy est une condition qui fait le couplage entre la condition de Dirichlet et la condition de Neumann, c.-à-d. on impose une condition de la forme :

$$a. \phi + b. \frac{\partial \phi}{\partial n} = c \quad (IV. 15)$$

Tableau IV.1 : Forme générale des conditions aux limites.

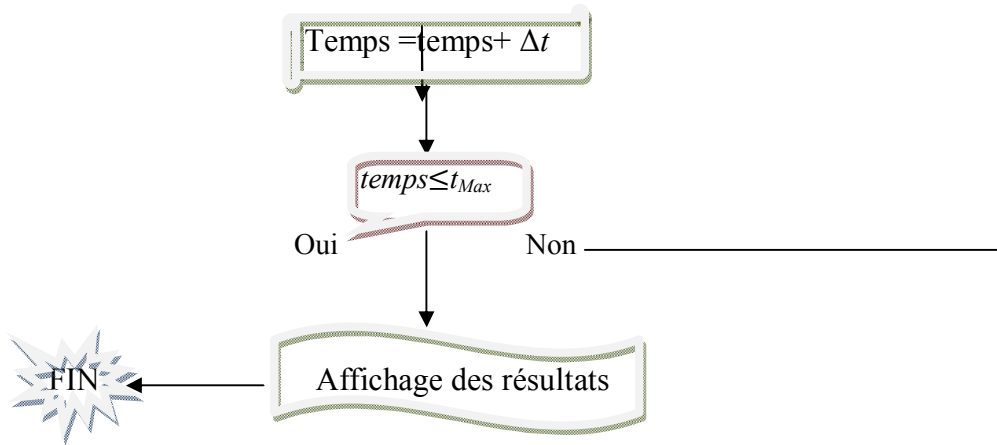
La condition à la limite	La forme $a. \phi + b. \frac{\partial \phi}{\partial n} = c$	a	b	c
A l'entrée : $e_z \cdot \nabla C = \left(\frac{Sc}{Pr}\right) Pe_m$ $(C - 1)$	$\left(\frac{Sc}{Pr}\right) Pe_m \cdot C - \frac{\partial C}{\partial z}$ $= \left(\frac{Sc}{Pr}\right) Pe_m$	$\left(\frac{Sc}{Pr}\right) Pe_m$	-1	$\left(\frac{Sc}{Pr}\right) Pe_m$
A la surface du matériau, le transfert thermique :	$Bi \cdot T + k_i \frac{\partial T}{\partial r} = Bi \cdot T_a$	Bi	k_i	0
A La fin du domaine, le flux thermique est nul :	$0 \cdot T + \frac{\partial T}{\partial r} = 0$	0	1	0
Sur l'axe de symétrie, il ya la condition de continuité pour toutes les variables.	$\frac{\partial C}{\partial r} = 0 ; \frac{\partial T}{\partial r} = 0$ $\frac{\partial u}{\partial r} = 0 ; \frac{\partial v}{\partial r} = 0$	0	1	0

VI.6-L'organigramme



Appel subroutine qui résout les équations :

De l'énergie et des espèces



SUBROUTINE A_WESN

Le but de cette subroutine est de calculer les coefficients de *MVF*

Début de subroutine

Lire les paramètres nécessaires pour la résolution de l'équation de transport à partir du programme principal : Coefficient de diffusion, les coefficient du terme source, le pas du maillage, nombre du point du maillage, etc....

Calcul des coefficients de *MVF* dans le domaine intérieur :

$$F_e = 0.5(uc_{(i,j+1)} - uc_{(i,j)}) \cdot r_e \cdot \Delta z$$

$$F_w = 0.5(uc_{(i,j-1)} - uc_{(i,j)}) \cdot r_w \cdot \Delta z$$

$$F_n = 0.5(vc_{(i+1,j)} - vc_{(i,j)}) \cdot r_p \cdot \Delta r$$

$$F_s = 0.5(vc_{(i-1,j)} - vc_{(i,j)}) \cdot r_p \cdot \Delta r$$

$$D_e = \Gamma_e r_e \cdot \Delta z / \Delta r_{PE}, \quad D_w = \Gamma_w r_w \cdot \Delta z / \Delta r_{WP}$$

$$D_n = \Gamma_n r_p \cdot \Delta r / \Delta z_{NP}, \quad D_s = \Gamma_s r_p \cdot \Delta r / \Delta z_{PS}$$

$$a_e = \max(-F_e; D_e - 0.5 F_e; 0)$$

$$a_w = \max(F_w; D_w + 0.5 F_w; 0)$$

$$a_n = \max(-F_n; D_n - 0.5 F_n; 0)$$

$$a_s = \max(F_s; D_s + 0.5 F_s; 0)$$

$$a_p^0 = r_p \Delta r \Delta z / \Delta t = \Delta V / \Delta t$$

$$a_p = a_p^0 + a_w + a_e + a_n + a_s - a \cdot r_p \Delta r \Delta z + F_e - F_w + F_n - F_s$$

SUBROUTINE TRANSPORT

Le but de cette subroutine est la résolution de l'équation de transport :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial r u \phi}{\partial r} + \frac{\partial v \phi}{\partial z} = \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(\Gamma r \frac{\partial \phi}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\Gamma \frac{\partial \phi}{\partial z} \right) \right] + S_\phi$$

Début de subroutine transport

Appel subroutine a-wesn qui calcule les coefficients de MVF

Principe du schéma ADI

Implicite suivant r :

```

Do i=2, il-1 : DP(1)=ap(i,1) ; DS(1)=-ae(i,1) ; b(1)=s(i,1)

Do J=2, NJ-1, 1 : DI(J-1)= -aw(i,j) ; DP(J)=ap(i,j) ; DS(J)= -ae(i,j)
  b(J)          =(ap0(i,j)*phi(i,j))+an(i,j)*phi(i+1,j))+as(i,j)*phi(i-1,j))+
(s(i,j)*rr(i,j)*dr(i)*dz
End Do

DI(Nj-1)=-aw(i,nj) ; DP(Nj)=ap(i,nj) ; b(Nj)=s(i,nj)
Call SOLUTION (Nj,DI,DP,DS,b,sol)
phic(i,:nj)=sol(:nj)
End Do

phic(1,2:nj-1)=((an(1,2:nj-1)*phic(2,2:nj-1))+s(1,2:nj-1))/ap(1,2:nj-1)
phic(il,2:nj-1)=((as(il, 2:nj-1)*phic(il-1,2:nj-1))+s(il,2:nj-1))/ap(il,2:nj-1)

```

Implicite suivant z:

```

Do j=2,nj-1,1 : DP(1)=ap(1,j) ; DS(1)=-an(1,j) ; b(1)=s(1,j)

Do i=2, il-1, 1 : DI(i-1)=-as(i,j) ; DP(i)= ap(i,j) ; DS(i)= -an(i,j)
  b(i) =(ap0(i,j)*phic(i,j))+ae(i,j)*phic(i,j+1))+aw(i,j)*phic(i,j-1))+
(s(i,j)*rr(i,j)*dr(i)*dz)
End Do

DI (il-1)=-as (il,j) ; DP(il)=ap (il,j) ; b(il)=s (il,j)
Call SOLUTION (il,DI,DP,DS,b,sol)
Phic (:il,j)=sol(:il)
End Do

```

$$\text{phic}(:,1) = ((\text{ae}(:,1)) * \text{phic}(:,2)) + \text{s}(:,1)) / \text{ap}(:,1)$$

$$\text{phic}(:,\text{nj}) = ((\text{aw}(:,\text{nj})) * \text{phic}(:,\text{nj}-1)) + \text{s}(:,\text{nj})) / \text{ap}(:,\text{nj})$$

SUBROUTINE SOLUTION

Le but de cette subroutine est la résolution du système tridiagonal
par la méthode de Gauss

$$D_{P(L_1)} \phi_{(1)} + D_{S(L_1)} \phi_{(2)} = c_{(L_1)}$$

$$D_{i(I)} \phi_{(I-1)} + D_{P(L_I)} \phi_{(I)} + D_{S(L_I)} \phi_{(I+1)} = c_{(I)} ; I = 2, N - 1$$

$$D_{i(L_{N-1})} \phi_{(I-1)} + D_{P(L_N)} \phi_{(N)} = c_{(L_N)}$$

SUBROUTINE SOLUTION (N, DI, DP, DS, c, PHI)

REAL DI(N),DP(N),DS(N),V(N),PHI(N)

!-----

DO I=1, N-1

R= DI (I)/DP (I)

DP (I+1) =DP (I+1)-(R*DS (I))

c (I+1) =V (I+1) - (R*V (I))

END DO

!-----

PHI (N) =V (N)/DP (N)

DO I=N-1, 1,-1

PHI (I) = (V (I)-(DS (I)*PHI (I+1)))/DP (I)

END DO

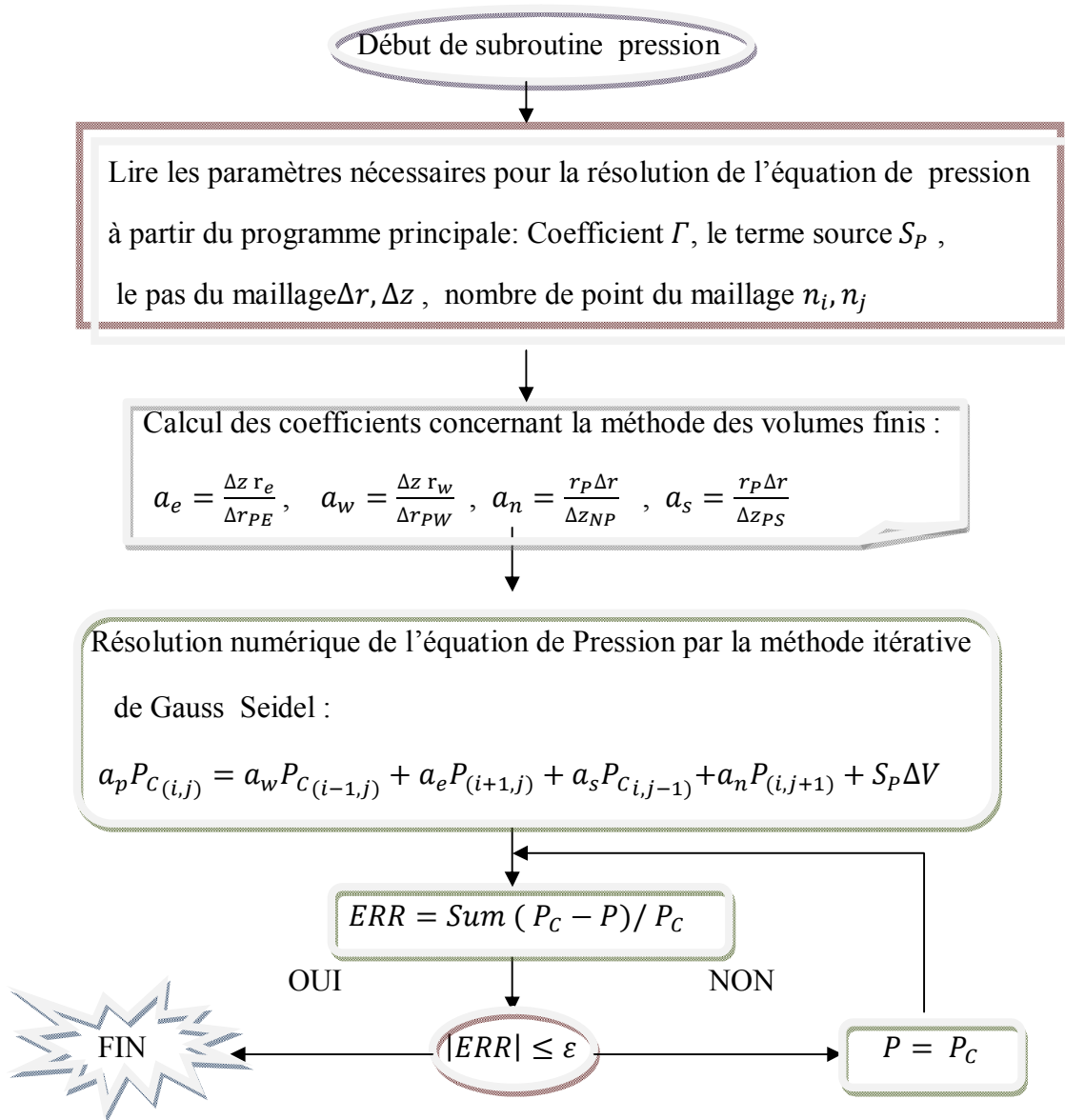
END

SUBROUTINE PRESSION

Le but de cette subroutine est la résolution de l'équation de pression

$$\Gamma \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial P}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\partial P}{\partial z} \right) \right] = S_P$$





IV.7-Résultats et Discussions

Notre étude est basée surtout sur les résultats de la concentration du dopant (titane) dans la fibre monocristalline du saphir tirée. Nous intéressons à cette étude à cause de la grande importance de la distribution des dopants dans les performances de fibre considérée comme milieu actif qui est un élément essentiel dans la fabrication des lasers. Pour optimiser le couplage entre l'onde laser et les ions du dopant il faut avoir une concentration de dopant élevée ce qui donne la plus haute puissance possible en sortie du laser. Dans cette partie nous avons étudié l'effet de la vitesse de tirage sur la concentration des dopants, où nous avons fixé la concentration de titane dans le liquide du saphir à 0,1% [1]. Les propriétés physiques de $Ti^{3+}: Al_2O_3$, sont cités dans les références [1,7, 61]

IV.7-1- Effet de la vitesse de tirage sur la distribution des dopants

IV.7-1-1-La distribution des dopants dans la zone fondue

Notre simulation se concentre sur la distributions des dopants dans la partie solide qu'est la fibre monocristalline tirée ainsi que dans la zone fondue. Tout d'abord, nous commençons par la représentation de la distribution axiale de la concentration des dopants dans la zone fondue, pour différentes vitesses de tirage :

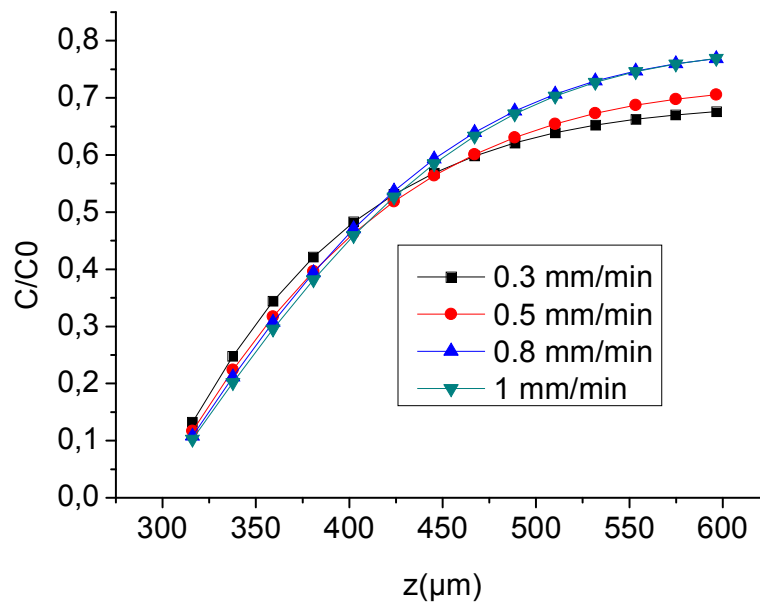


Figure IV.6 : Distribution axiale de Ti^{3+} , pour différentes vitesses du tirage dans la zone fondue.

D'après cette figure, nous remarquons que la concentration des dopants pour la vitesse 0.3mm/min est élevée relativement par rapport aux autres valeurs de concentrations pour les vitesses de tirage 0.5, 0.8, 1 mm/min respectivement. Après une hauteur de la zone fondue correspond à une valeur de 420 μm , nous notons que la distribution de la concentration des dopants de titane augmente proportionnellement avec l'augmentation de la vitesse de tirage.

Il faut remarquer que les figures ci-dessus, représentent la concentration à l'intérieur de la zone liquide qui n'est pas accessible expérimentalement. La valeur de la concentration pour $z = H = 600 \mu\text{m}$ (H : la longueur de la zone fondue) correspond à la concentration à l'interface solide liquide c.-à-d. de la fibre solide. Seul à partir de ce point la valeur de la concentration est accessible expérimentalement.

IV.7-1-2-La distribution axiale des dopants dans la fibre tirée

Ces figures montrent la distribution de la concentration le long l'axe de croissance dans la fibre cristalline du saphir dopé au titane (solide) et ceci pendant le processus de la solidification.

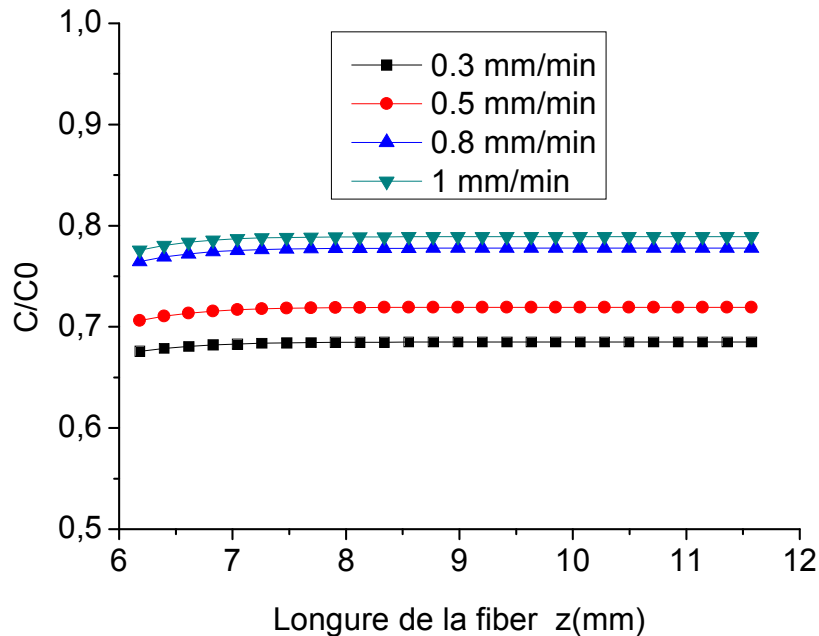


Figure IV.7 : Distribution axiale de Ti^{3+} , pour différentes vitesses du tirage.

D'après les résultats représentés dans la figure ci-dessus on constate que la concentration des dopants augmente lorsque la vitesse de tirage augmente. Ce résultat est en accord avec les résultats expérimentaux de la distribution axiale des dopants rapportés dans la figure ci-dessous [1]. Ici aussi on constate que, conformément à l'expérimentale, lorsque la vitesse de tirage est plus élevée, les impuretés rassemblent dans le centre de la fibre tirée.

D'un autre côté nous remarquons que la valeur de la concentration est stable le long de la distance axiale et la distribution des dopants est homogène. On conclut que la méthode de micro-pulling down donne une distribution axiale constante et homogène le long de la fibre. Ceci est en accord avec les résultats expérimentaux de Mr A. Laidoune [1]. Ce résultat est l'un des avantages de cette technique de croissance.

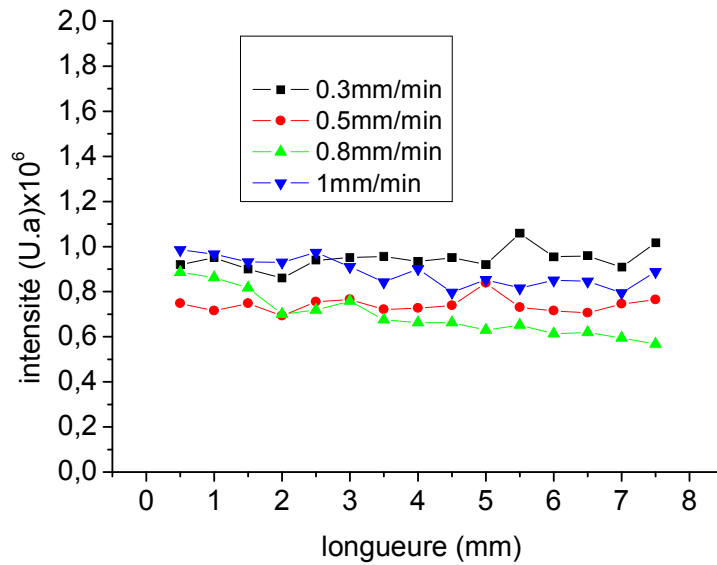


Figure IV.8 : Distribution de titane selon l'axe de la fibre. Expérimental:
A. Laidoune [1].

D'après ces résultats expérimentaux, nous avons remarqué que la distribution longitudinale du Ti^{3+} est homogène le long de l'axe de la fibre même pour des vitesses de tirage relativement élevées par rapport à d'autres techniques de croissance [3]. La vitesse de tirage élevée est l'une des conditions favorables à la distribution axiale des dopants homogènes pour la technique de croissance micro-pulling-down [86].

IV.7-1-3-Étude de la qualité cristalline des fibres du saphir

Les fibres que nous avons simulé leur croissance ont été tirées expérimentalement par Dr A. Laidoune. Les spectres de diffraction des Rayons X (DRX) qu'il a obtenus montre une bonne qualité cristalline dans la phase α . De plus il a procédé à une homogénéité optique des fibres à l'aide d'un faisceau laser He/Ne émettant à 632.8nm avec une transmission sans guidage dans les fibres. La figure suivante montre le dispositif expérimental utilisé [1].

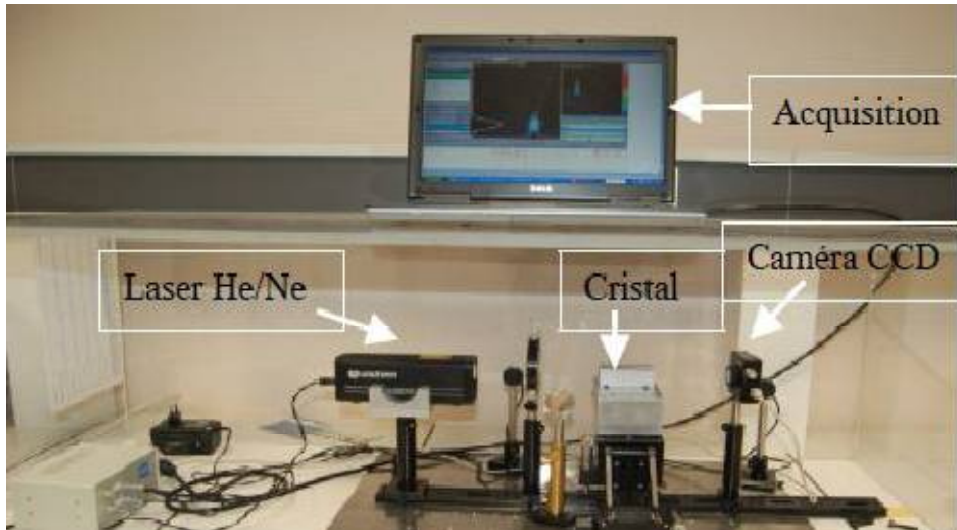


Figure IV.9 : Dispositif expérimental (visualisation par camera CCD) [1].

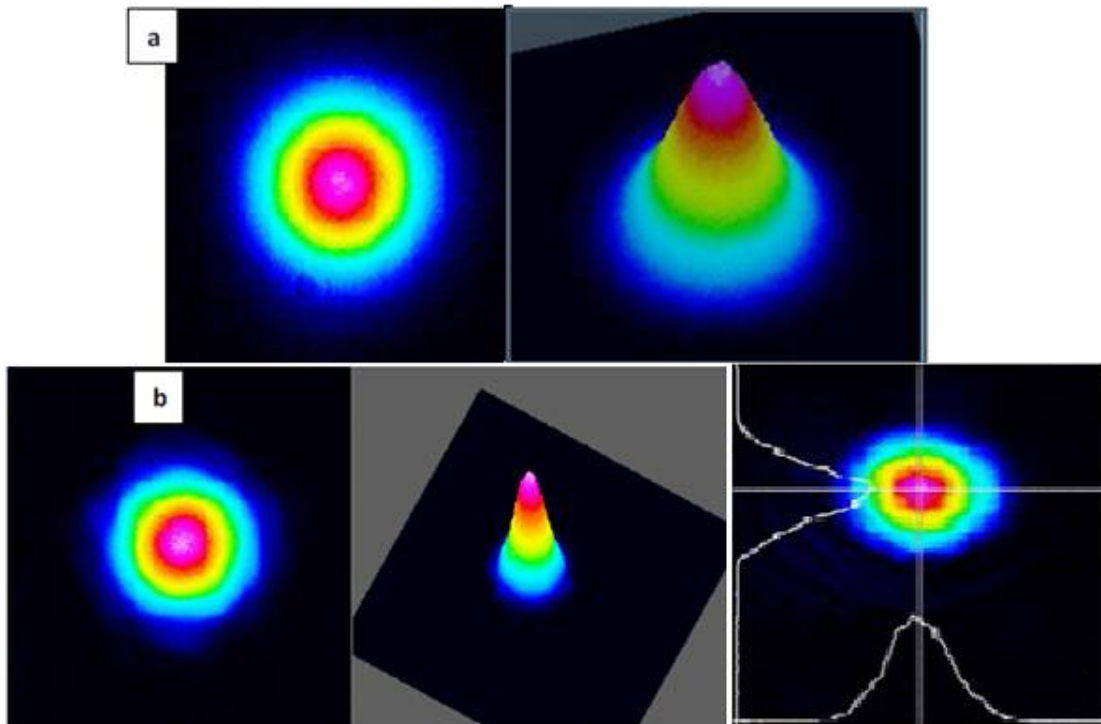


Figure IV.10 : Faisceau laser transmis dans l'air (a), dans une fibre Saphir dopé au Titane (b) [1].

La figure ci-dessus montre le profil du faisceau laser en absence de la fibre (air (a)) et le faisceau traversant la fibre de Saphir : Ti^{+3} . Ces figures montrent la non déformation du faisceau He/Ne ce qui donne une indication qualitative sur la qualité des fibres de saphir. La gaussienne du faisceau est bien clair et ne présente pas de déformation majeure ce qui confirme la bonne qualité des fibres.

IV.7-2-La distribution radiale des dopant dans le centre de la fibre

Dans la figure ci-dessous, on représente la distribution radiale des impuretés pour différentes vitesses de tirage, dans le but d'étudier l'effet de vitesse du tirage sur la concentration radiale du Ti^{3+} .

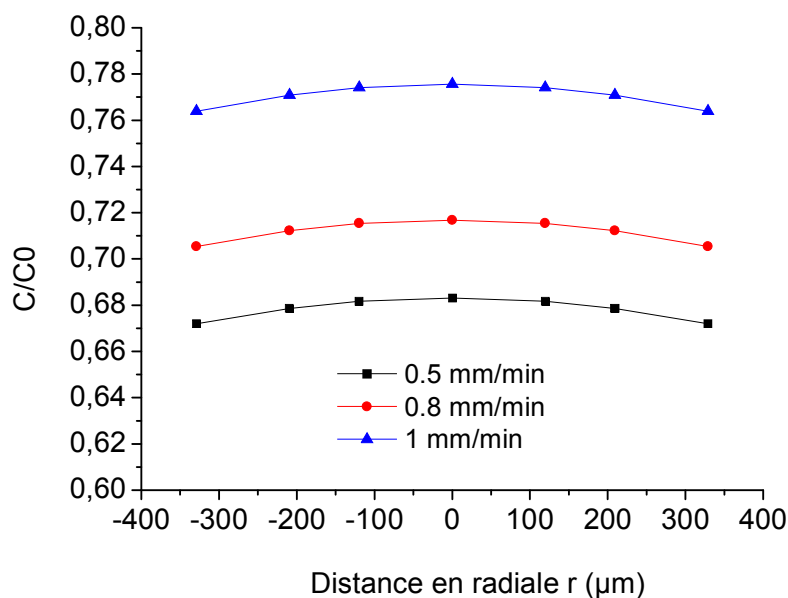


Figure IV.11 : Distribution radiale des dopants pour différents vitesses de tirage.

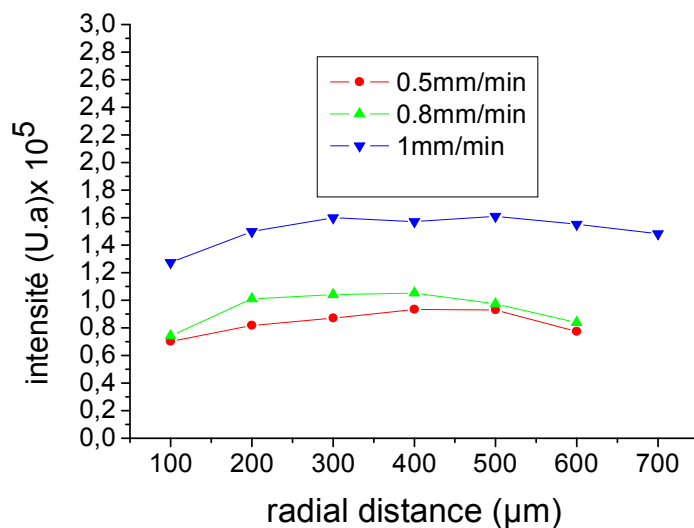


Figure IV.12 : Mesures de luminescence montrant la distribution radiale de Ti^{3+} [1].

On note qu'il y a une proportionnalité entre la concentration radiale du titane et la vitesse de tirage, tel que lorsque la vitesse du tirage augmente le pourcentage du titane au centre de fibre augmente. Nos résultats sont en bon accord avec les mesures

expérimentales de la luminescence qui montrent la distribution radiale de titane et ça pour les trois vitesses de tirage 0.5, 0.8, et 1mm/min (Résultats expérimentaux [1]).

IV.7-3-Étude de la ségrégation de Ti^{3+} en fonction de la vitesse de tirage :

La figure ci dessous montre la variation de la concentration du titane en fonction de la vitesse de tirage.

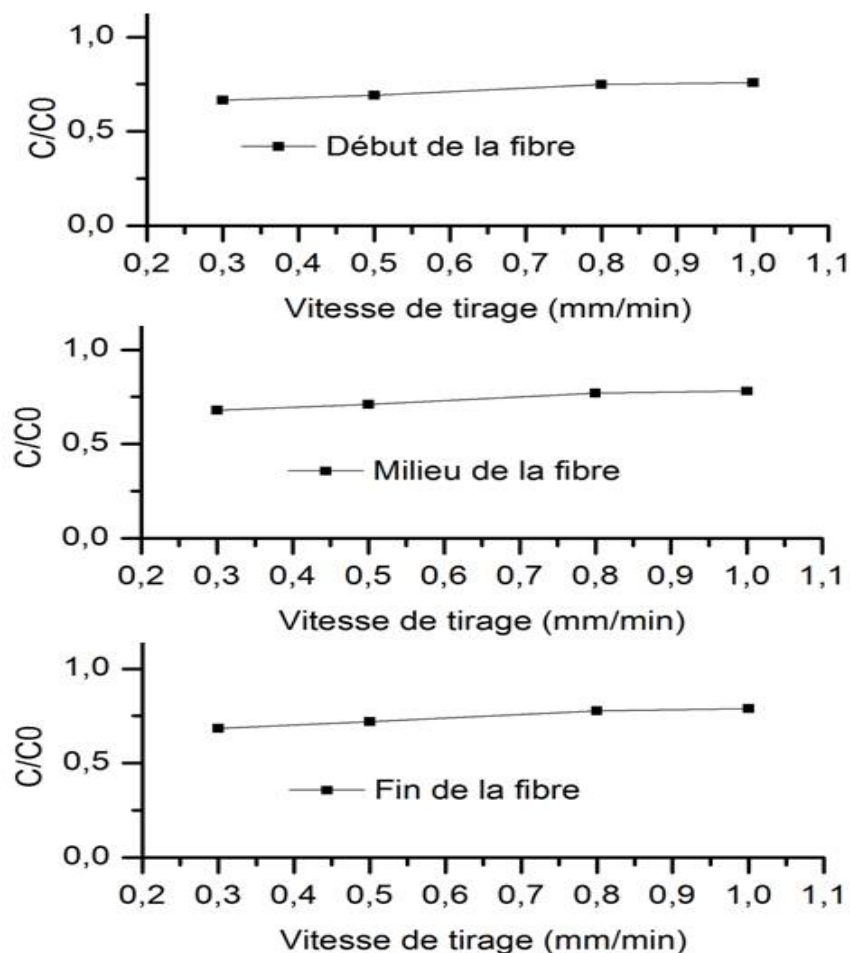


Figure IV.13 : Mesures de luminescence montrant la concentration de dopants dans trois parties de la fibre en fonction du taux de traction différent [1].

L'évolution de la concentration du titane en fonction de la vitesse de tirage est suivie à travers les résultats d'absorption expérimentale [1]. La figure suivante montre l'évolution de l'intensité max de la bande Ti^{3+} ($\lambda = 480nm$) en fonction de la position longitudinale dans la fibre. Dans tous les cas la concentration du titane est homogène [1].

Ce résultat obtenu est en bonne accord avec les résultats de l'expérience obtenus à partir des mesures de luminescence (Figure IV.13) [1]. Ceci montre que la méthode de micro pulling down évite le problème de ségrégation vers les périphéries.

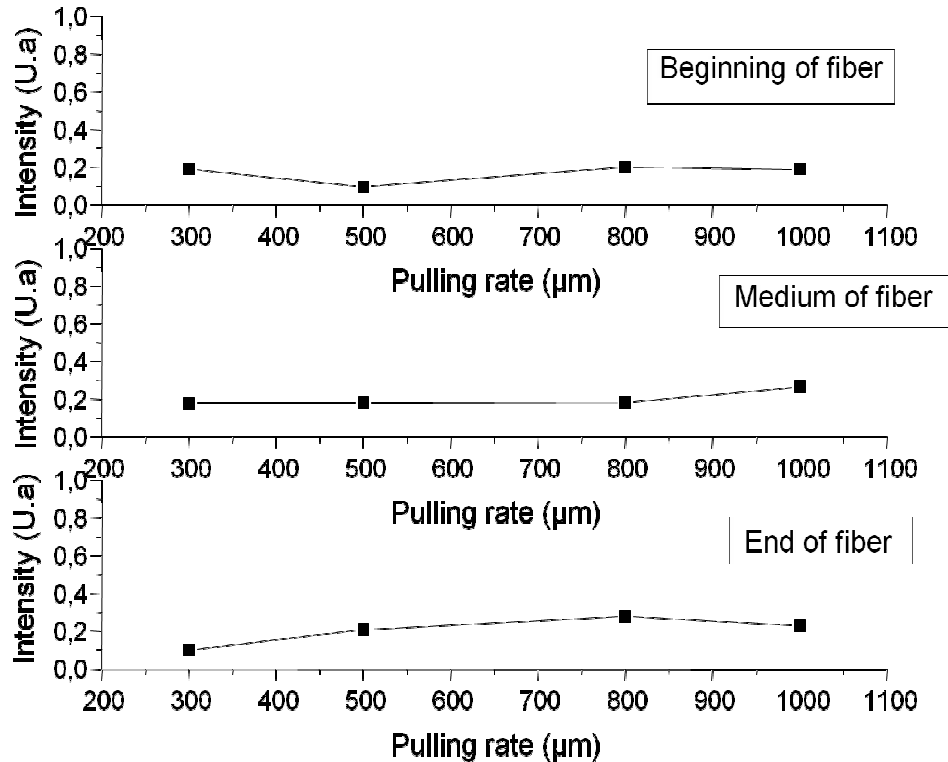


Figure IV.14 : Concentration de titane dans la fibre en fonction de vitesse de tirage pour trois parties de la fibre.

IV.7-4-Etude de la forme de l'interface liquide-solide

La forme de l'interface liquide/solide est déterminée principalement par le transfert de chaleur dans le système de la croissance [77]. Cette figure montre le contour de température (transfert de chaleur) dans le système de croissance. La couleur bleue présente le cristal du saphir (le solide) et la couleur rouge présente le saphir fondue (liquide). La couleur verte représente la zone entre le liquide et le solide.

D'après cette figure, nous observons que l'interface liquide/solide a une forme presque plane. Ce résultat obtenu est très important et ceci est confirmée l'observation expérimentale [1] comme il est montré dans la figure ci-dessous. Ceci montre que les conditions de croissance sont stables et les fibres monocristallines tirées sont de bonne qualité.

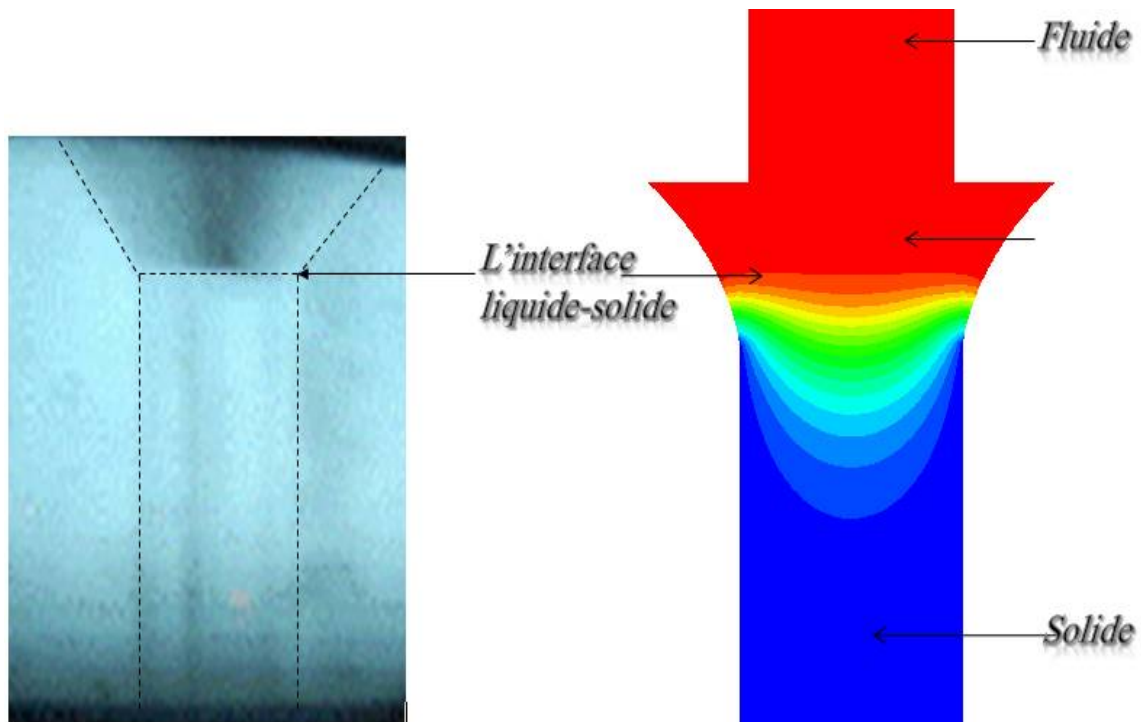


Figure IV.15 : Représentation de transfert de chaleur dans le domaine d'étude.

IV.8-Fibre préformées de section carrée par la μ -PD

Dans cette partie nous représentons les résultats obtenus pour la croissance d'une fibre préformée de section carrée à l'aide de la méthode de micro pulling down. Cette étude est réalisée en utilisant un modèle tridimensionnel en les coordonnées cartésiennes. L'utilisation de la technique de micro-pulling-down (μ -PD) pour la croissance des fibres et des monocristaux préformés est basée principalement sur l'utilisation du capillaire où la forme de la fibre tirée dépend directement à la forme du capillaire (section transversale).

Nous avons étudié le transfert de chaleur et la forme de l'interface de cristallisation dans le domaine d'étude lors de la solidification d'une fibre préformée de saphir de section carré ($2 \times 2 \text{ mm}^2$). Nous basons nos simulations sur les dimensions des fibres préformées tirées expérimentalement en utilisant cette technique (la μ -PD) par A. Nehari, A. Laidoune et al à l'institut Lumière-Matière (ILM) [70]. Les fibres que nous avons modélisées sont de forme carrée et non colorants (transparentes) comme il est montré ci-dessous. La caractérisation en utilisant un faisceau laser He/Ne indique la bonne qualité de fibres préformées du saphir non dopé[70] comme il est montré à gauche de la figure ci-dessus.

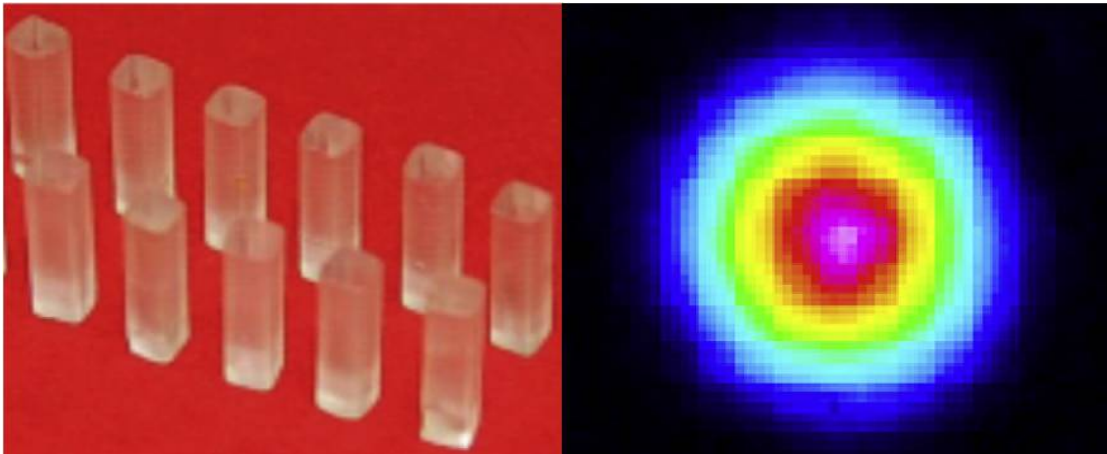


Figure IV.16 : Fibres préformées du saphir non dopé (transparentes).

IV.8-1-Le maillage

Le maillage utilisé pour cette étude est montré sur la figure ci-dessous, il représente deux zones, la zone la plus raffinée est la zone fondue (liquide) qui a une hauteur de $200 \mu\text{m}$ [70] et la deuxième zone représente la fibre.

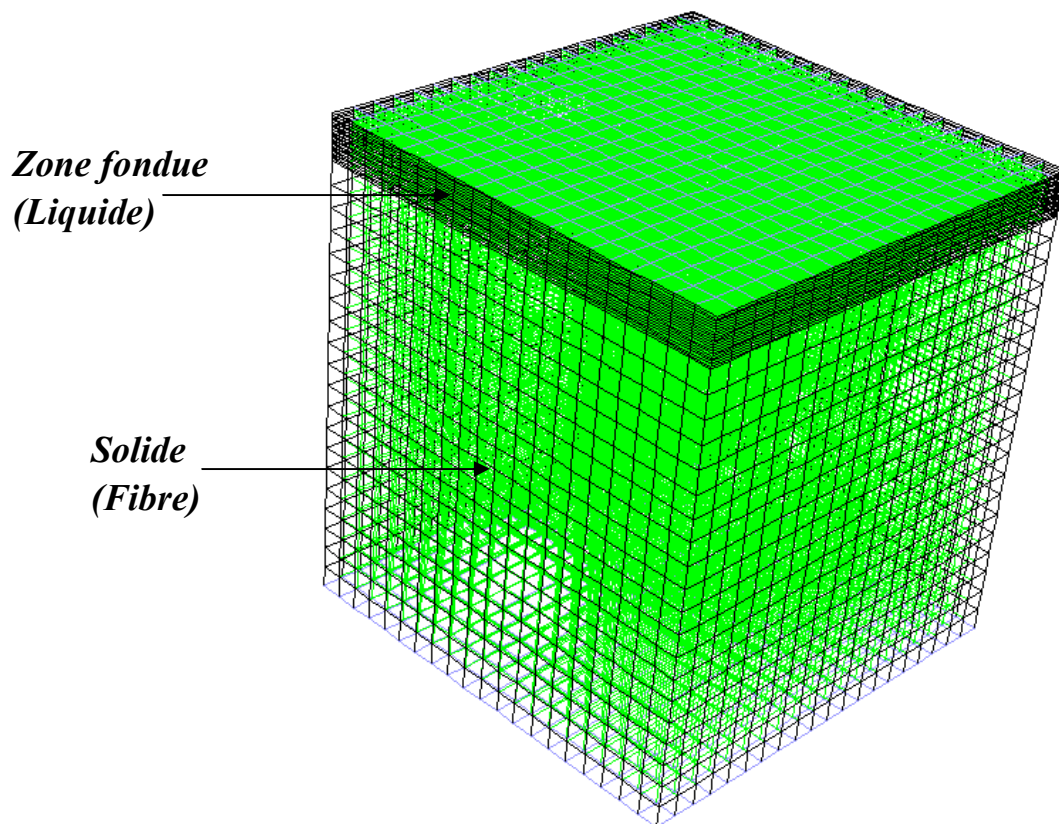


Figure IV.17 : Maillage du domaine d'étude pour une fibre préformée de section carrée ($2 \times 2 \text{ mm}^2$).

Tout le domaine d'étude considéré comme un fluide qui se solidifie, où nous cherchons la forme de l'interface liquide-solide qui sépare entre le fluide et le cristal ainsi que l'effet de vitesse de tirage sur le transfert de chaleur en autre terme sur la forme de l'interface.

IV.8-2-Les conditions aux limites

-A l'entrée du domaine d'étude

La température : $T = 2368 K$

La vitesse : $u_z = -0.33, -1, -5, -10 mm/min$

-A la surface libre (Sur les quarts façades de la zone fondue)

Le transfert de chaleur au niveau de la surface libre du liquide vers le milieu ambiant est contrôlé par le rayonnement et la convection. Trois phénomènes transfert thermique rentrent en jeu: la convection, la radiation et la convection de Marangoni. Dans cette étude nous n'intéressons pas au rayonnement.

La convection au niveau de cette surface est exprimée par la relation:

$$n \cdot k_m \vec{\nabla} T = -Bi(T - T_a) \quad (IV. 16)$$

n : Vecteur unitaire normal à la surface du liquide dirigée vers l'extérieur.

k_m : Conductivité thermique du fluide.

$Bi = hH/k_m$: Nombre de Biot pour le liquide, pour le saphir $Bi = 0.28$.

h : Coefficient de transfert de chaleur (pour le saphir $h = 10 - 15 W/m^2.K$).

T_a : Température ambiante (dans cette étude la température ambiante est considérée comme constante $T_a = 500 K$).

Le phénomène le plus connu qui intervient à la surface libre est la convection de Marangoni. La condition à la surface libre doit satisfaire l'équilibre des contraintes tangentielles [111]:

$$ns: \bar{\mathbf{t}} = Ma(s \cdot \nabla T) \quad (IV. 17)$$

s : Vecteur unitaire tangentiel à la surface libre.

$\bar{\mathbf{t}}$: Tenseur de contrainte de cisaillement.

Ma : Nombre de Marangoni.

$\partial\gamma/\partial T$: Coefficient de tension superficielle thermique.

μ_m : Viscosité dynamique du fluide.

α_m : Diffusivité thermique du fluide.

-Aux parois de la fibre

La température égale à la température ambiante $T = T_a$.

-A la sortie (la fin du domaine d'étude)

La température : $T = T_a = 500 K$

Les vitesses de tirage : $u_z = -0.33, -1, -5, -10, -20 mm/min$.

Les propriétés physiques et thermiques du saphir utilisées dans toutes les simulations réalisées dans ce travail (chapitre III et IV) sont montrées dans le tableau ci-dessous :

Tableau IV.2 : Propriétés Physiques et thermiques du saphir [1, 7].

$$C_{p_c} = 1300 \text{ (J/KgK)}$$

$$C_{p_m} = 765 \text{ (J/KgK)}$$

$$D = 5 \times 10^{-9} \text{ (m}^2 \text{ /s)}$$

$$k_c = 17.5 \text{ W/mK}$$

$$k_m = 3.5 \text{ W/mK}$$

$$\partial\gamma/\partial T = (-3.5) \times 10^{-5} \text{ Nm}^{-1} \text{ K}^{-1}$$

$$\mu_m = 0.0475 \text{ Kg/ms}$$

$$T_m = 2323 \text{ K}$$

$$\Delta H = 1.1 \times 10^6 \text{ J/Kg}$$

$$\beta_T = 1.8 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$$

$$\rho_c = 3960 \text{ Kg/m}^3$$

$$\rho_m = 3500 \text{ Kg/m}^3$$

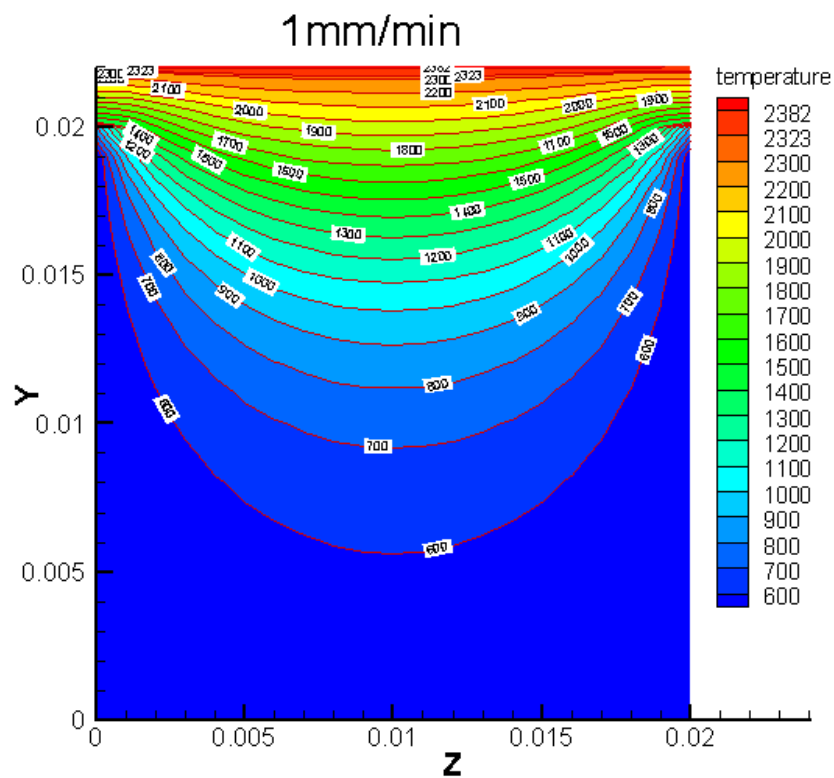
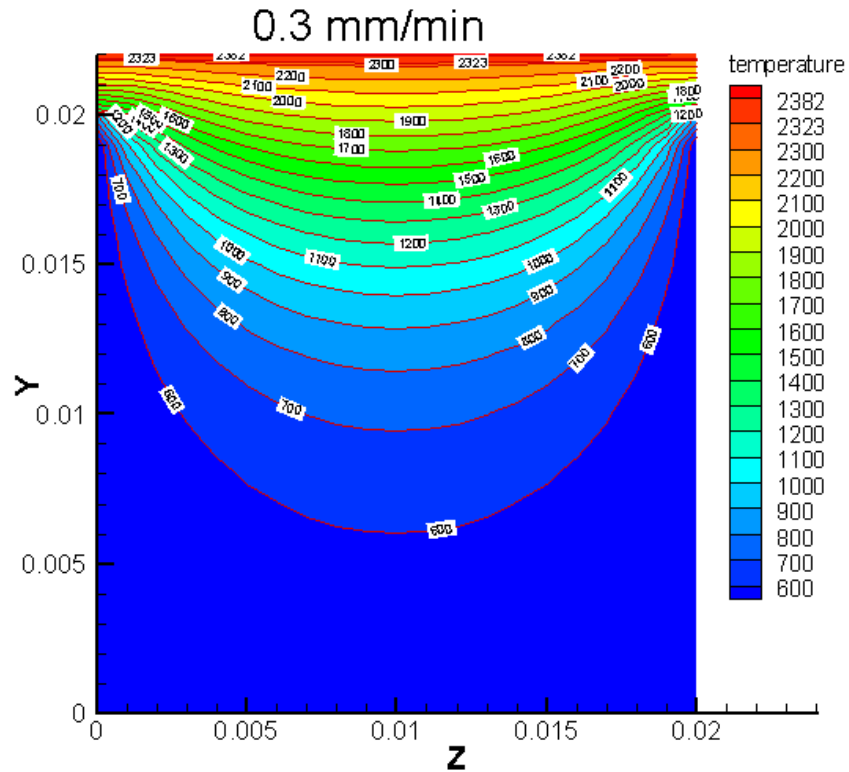
$$K = 1$$

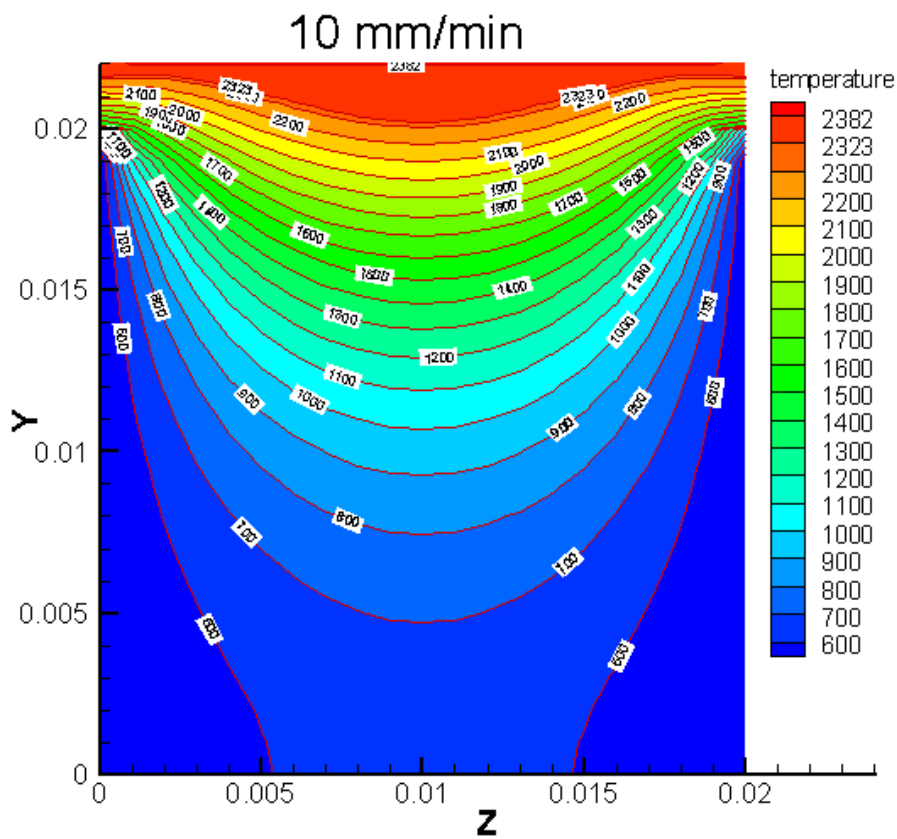
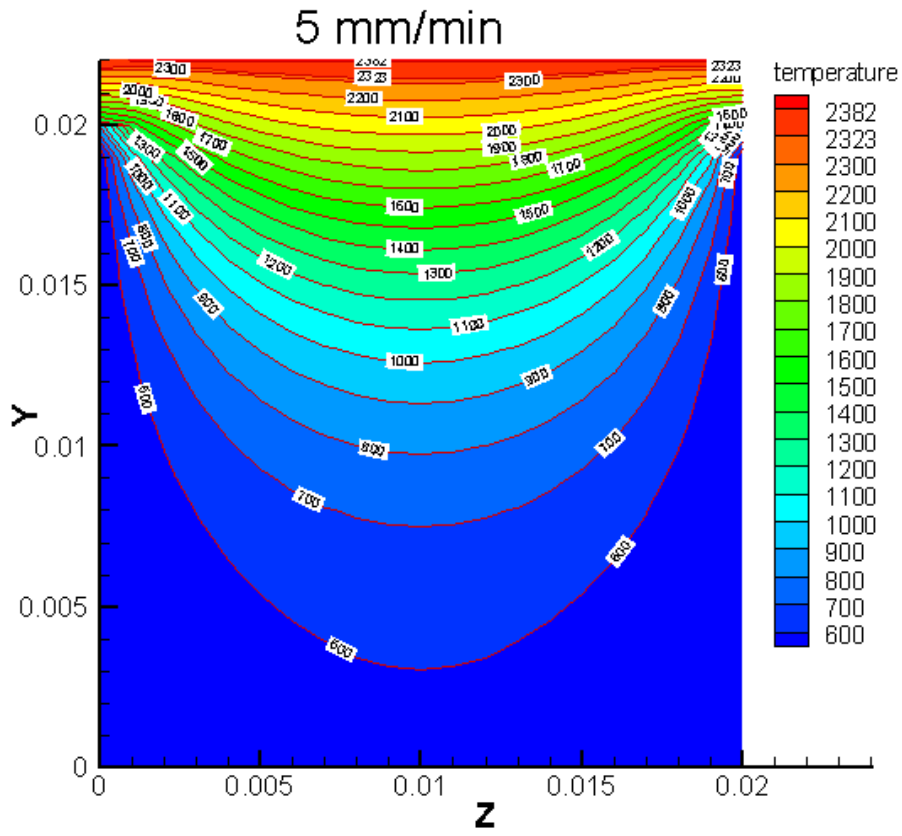
$$\phi_0 = 17^\circ$$

IV.9-Résultats et Discussion

IV.9-1-Le transfert de chaleur dans le domaine de croissance

Ces figures montrent le transfert de chaleur dans le plan vertical méridien, lors de la solidification de la fibre carrée du saphir pour différentes vitesses de tirage.





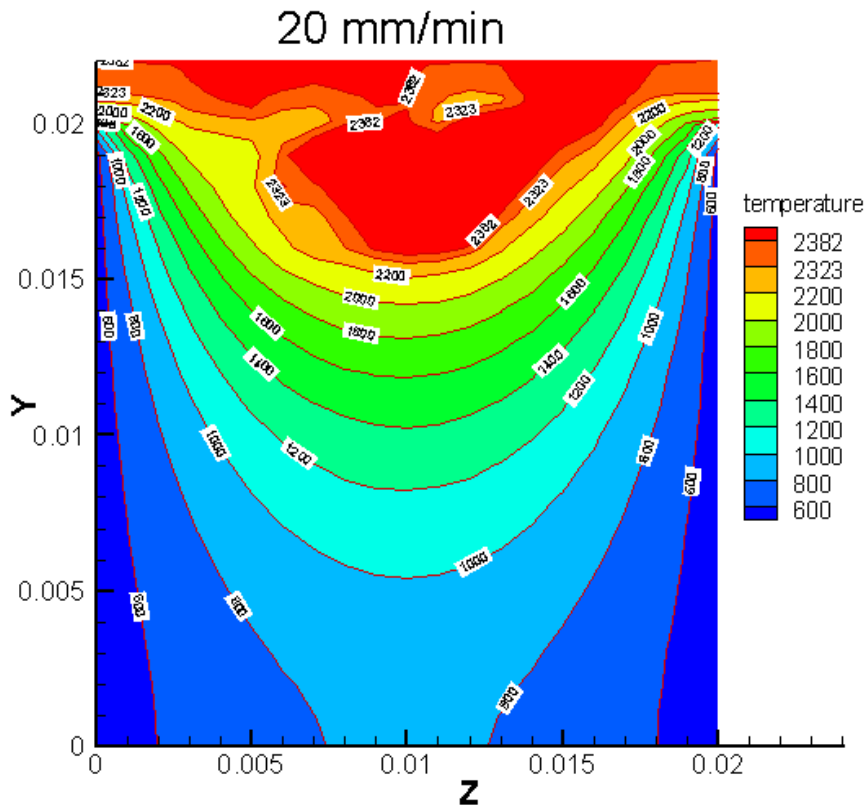


Figure IV.18 : Transfert de chaleur dans le plan vertical méridien pour différentes vitesses de tirage.

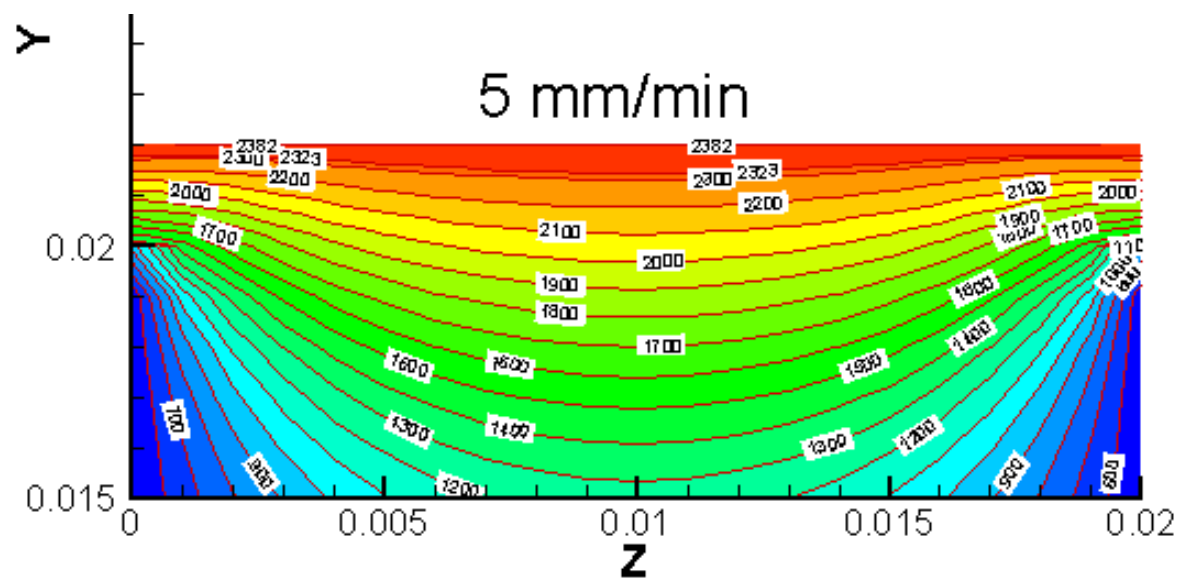
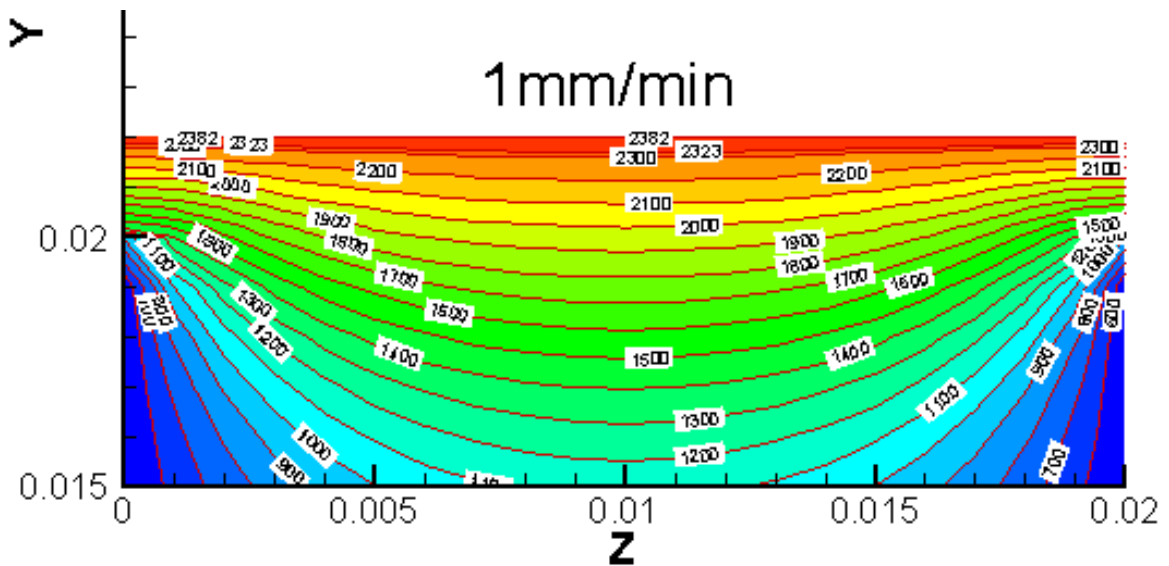
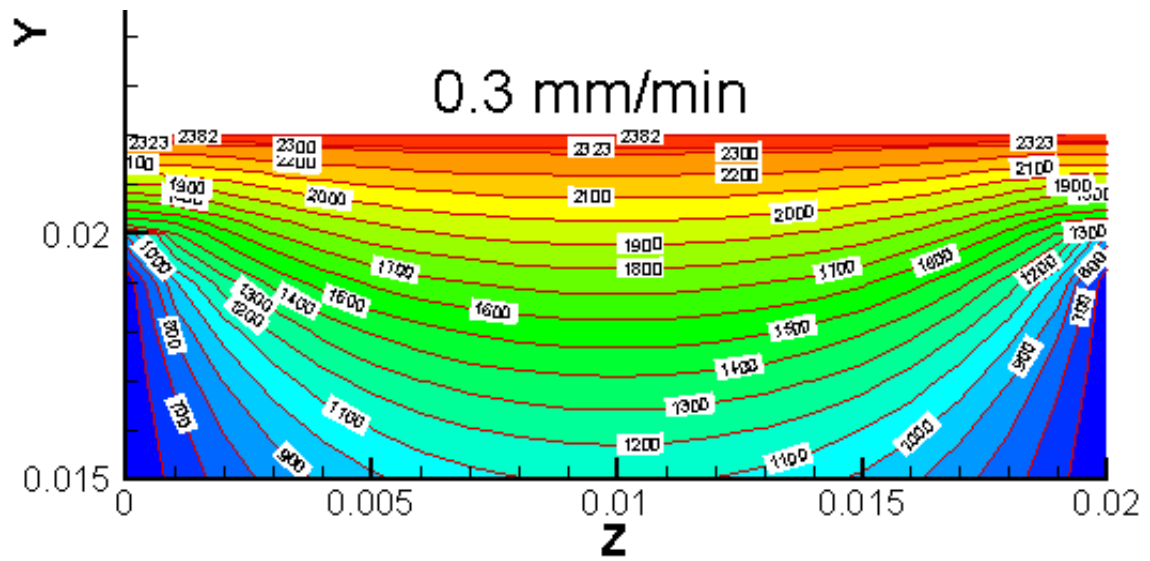
D'après ces résultats nous remarquons que la variation de la vitesse de tirage a un effet sur le transfert de chaleur lors de processus de la croissance. Il est bien claire que lorsque la vitesse de tirage augmente (est plus élevée supérieure à 1mm/min) le renforcement de transfert de chaleur dans la partie solide augmente. Ce renforcement a un effet d'une façon directe sur la forme de l'interface liquide-solide que nous représentons dans les figures suivantes.

Pour la gamme des vitesses de 0.3-10 mm/min Le transfert de chaleur indique une symétrie de l'écoulement dans le domaine de croissance. Pour la vitesse de tirage 20 mm/min la non symétrie est bien présentée par le transfert de chaleur dans le domaine d'étude. Dans ce cas la forme de l'interface de cristallisation n'est pas claire (une forme complexe) ce qui produit des défauts dans les fibres et les cristaux tirés. Un grand renforcement de transfert de chaleur vers le cristal.

IV.9-2-La forme de l'interface liquide-solide

Dans la figure suivante nous représentons les isothermes de la température qui nous permet de déterminer la forme de l'interface liquide-solide qui correspondant à la température du fusion du saphir qui égale à 2323 K .

Ces isothermes sont représentées pour différentes vitesse de tirage.



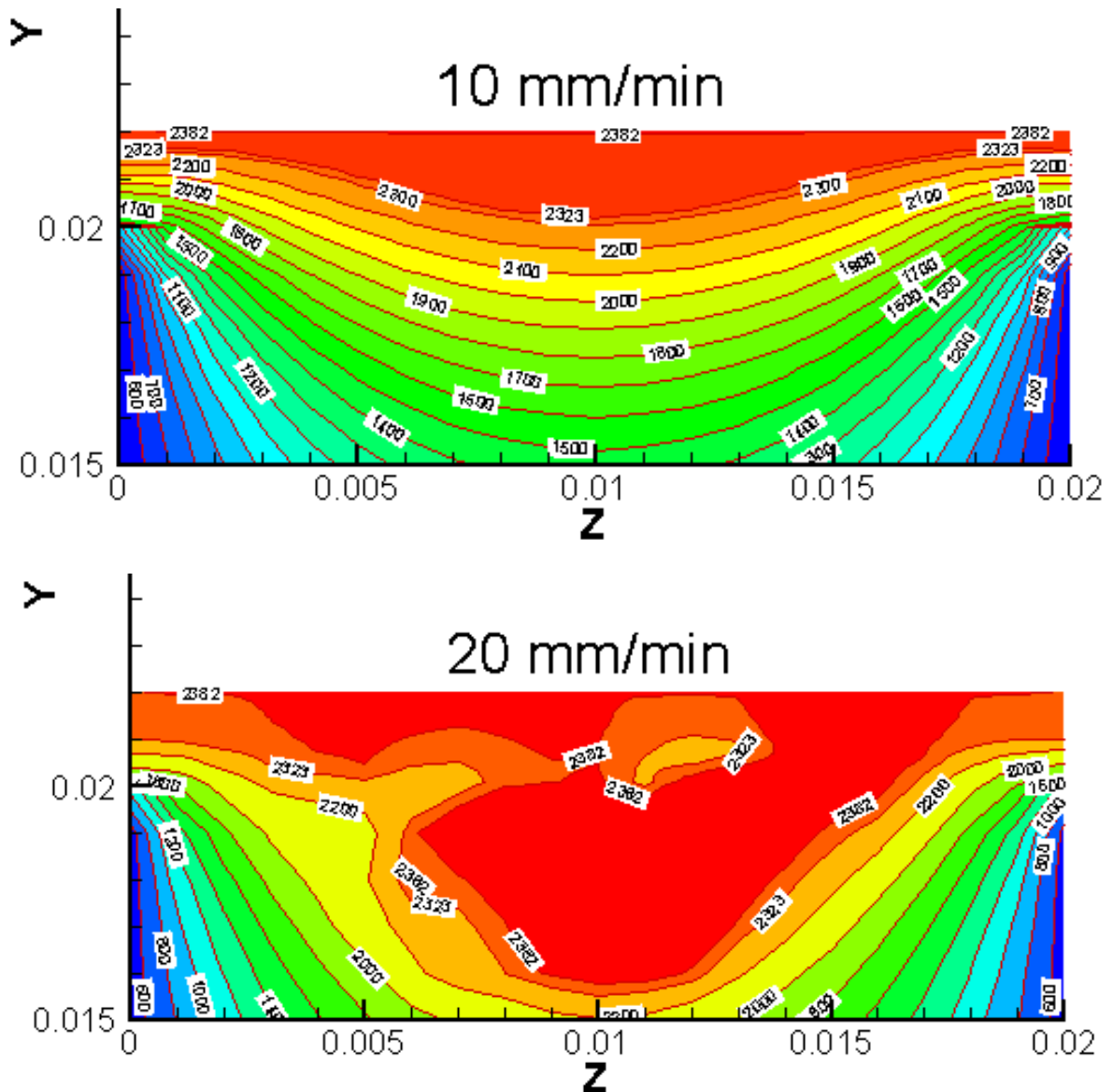


Figure IV.19 : Effet de vitesse de tirage sur la forme de l'interface liquide-solide.

D'après ces résultats nous remarquons que l'interface de cristallisation est presque plane pour les vitesses de tirage inférieures ou égale à 1 mm/min par contre pour les grandes vitesses de tirage l'interface liquide-solide prend une forme convexe.

D'après les résultats expérimentaux obtenus dans la référence [70], les monocristaux du saphir tirés par la technique micro-pulling down ont une bonne qualité à haute transparence sans défauts. Ça nécessite une petite hauteur de ménisque (20-200 μm) et une vitesse de tirage rapide (1 mm / min). L'utilisation d'une vitesse de tirage plus élevée (> 5 mm / min) change les conditions de croissance à l'interface de solidification vers la région de surfusion [70].

Conclusion

Dans le cadre des applications lasers, la forme de l'interface liquide-solide et l'homogénéité de la concentration des dopants le long de l'axe de la fibre tirée sont des facteurs très importants et nécessaires pour la performance des milieux amplificateurs. Pour ce but, dans la première partie de ce chapitre nous avons établie un modèle bidimensionnel axisymétrique pour la simulation de la croissance des fibres monocristallines de saphir dopé au titane à l'aide de la méthode de micro-pulling down. Cette étude montre que la distribution radiale du titane augmente avec la vitesse du tirage. La distribution axiale de la concentration du titane le long de l'axe de la fibre tirée est uniforme et homogène et augmente aussi avec l'augmentation de vitesse de tirage. Pour la méthode de μ -PD, en plus de la vitesse de tirage rapide la convection de Marangoni contribue de geler le titane dans la zone fondu et permet de le conserver dans la fibre, ce qui minimise les problèmes de ségrégation.

La forme de l'interface liquide-solide est plane ce qui confirme l'observation expérimentale. Un résultat important est le fait que la géométrie du problème et la vitesse du tirage dans le cas de la méthode μ -PD favorise le rassemblement des impuretés dans le centre de la fibre et évite le problème de ségrégation vers les périphéries. Ce que montre l'avantage de cette technique par rapport aux autres méthodes de croissances.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous avons utilisé un modèle tridimensionnel en coordonnées cartésiennes pour modéliser la solidification des fibres monocristallines préformées de section carrée en utilisant la méthode micro-pulling down. Cette étude montre que pour les vitesses de tirage $\leq 1\text{mm}/\text{min}$ la forme de l'interface liquide-solide est plane. Pour les vitesses $> 5\text{mm}/\text{min}$ nous remarquons un renforcement de transfert de chaleur vers le cristal, dans ces cas l'interface prend une forme convexe. Pour la vitesse de tirage $20\text{ mm}/\text{min}$ l'écoulement devient totalement non symétrique (chaotique).

D'après les résultats obtenus expérimentalement, le tirage des monocristaux du saphir de bonne qualité à haute transparence sans défauts nécessite une vitesse de tirage rapide ($1\text{ mm} / \text{min}$). L'utilisation d'une vitesse de tirage plus élevée ($> 5\text{ mm} / \text{min}$) change les conditions de croissance à l'interface de solidification vers la région de surfusion [70].

Conclusion générale

Dans ce travail, nous avons établi un modèle tridimensionnel pour la simulation de la croissance des fibres préformées monocristallines de saphir non dopé et dopé au titane à l'aide de la méthode de Czochralski et de micro-pulling down. Nous avons effectué un travail de simulation qui nous a permis l'optimisation de la croissance cristalline de saphir pour les deux techniques de croissances étudiées.

Dans la première partie de ce travail, nous avons réalisé une simulation numérique tridimensionnelle du procédé de croissance du saphir avec la méthode de Czochralski. Le but de la simulation est de trouver la vitesse de rotation du cristal optimale qui donne une interface liquide-solide plane pour les conditions expérimentales utilisées. D'autres parts la simulation nous a permis de visualiser le type d'écoulement, les fluctuations de la température, la convection libre, forcée et le transfert de chaleur dans le creuset. Nous avons montré que :

- Pour les vitesses de rotation supérieures à 20 tr/min, nous notons que les spectres de température deviennent instables et les fluctuations de plus en plus élevées. la vitesse de rotation doit être inférieure à 20 tr/min dans le but de diminuer les fluctuations de température.
- Pour minimiser les amplitudes des modes des instabilités de température de basse fréquence, la gamme des vitesses de rotation $\omega_{cri} \leq 16$ tr/min est une région convenable pour donner les bonnes conditions de croissance. Ce résultat montre que cette gamme de vitesse déterminée par la simulation est la même gamme de vitesse de rotation du cristal utilisée par l'expérimentateur.
- Pour $\omega_{cri} = 13$ tr/min, la forme de l'interface liquide-solide est plane. Dans les conditions expérimentales étudiées, cette vitesse de rotation 13 tr / min est la vitesse de rotation optimale qui permet le tirage d'un cristal de bonne qualité. Cette vitesse optimale augmente avec le nombre du Rayleigh. Ce qui veut dire que si l'écart de température entre les parois du creuset et le point de fusion du saphir augmente il faut augmenter la vitesse de rotation du cristal pour avoir des conditions de croissances optimales.
- Pour les vitesses de rotation $\omega_{cri} > 40$ tr/min les fluctuations augmentent significativement et l'écoulement perd totalement la symétrie cylindrique.

Concernant la méthode de micro-pulling down (μ -PD), dans le cas des fibres de section circulaire la simulation numérique montre :

- une homogénéité de la distribution axiale de la concentration du Ti^{+3} le long de la fibre $Al_2O_3 : Ti^{+3}$.
- La distribution radiale du titane augmente avec l'augmentation de la vitesse du tirage, où la concentration des dopants dans le centre de la fibre est élevée que les périphéries.
- La forme de l'interface liquide-solide est plane ce qui confirme l'observation expérimentale.
- pour la méthode de μ -PD, en plus de la vitesse de tirage rapide la convection de Marangoni contribue de geler le titane dans la zone fondu et permet de le conserver dans la fibre, ce qui minimise les problèmes de ségrégation.
- Un résultat important est le fait que la géométrie du problème et la vitesse du tirage dans le cas de la méthode micro-pulling down favorise le rassemblement des impuretés dans le centre de la fibre et évite le problème de ségrégation vers les périphéries. Ce qui est très important dans les performances de fibre considérée comme milieu actif ou milieu amplificateur et qui est un élément essentiel dans la fabrication des lasers. Ce qui montre un avantage particulier de cette technique par rapport aux autres méthodes de croissances en plus du faible coût et du temps de croissance relativement rapide.

Dans le cas des fibres préformées de section carrée, nous montrons que :

- Pour les vitesses de tirage ≤ 1 mm/min la forme de l'interface liquide-solide est plane.
- Pour les vitesses > 5 mm/min nous remarquons un renforcement de transfert de chaleur vers le cristal, dans ce cas l'interface prend une forme convexe.
- D'après les résultats obtenus expérimentalement, le tirage des monocristaux du saphir de bonne qualité à haute transparence sans défauts nécessite une vitesse de tirage rapide (1 mm / min). L'utilisation d'une vitesse de tirage plus élevée (> 5 mm / min) change les conditions de croissance à l'interface de cristallisation.

Les Références

- [1] A. Laidoune. *Croissance des fibres cristallines pour usage dans l'optoélectronique*. Thèse de Doctorat. Université de Batna1(2010).
- [2] A. Laidoune. *Croissance de fibres monocristallines par la technique laser heated pedestal growth (LHPG) pour des applications spécifiques [compositions eutectique](2005)*.
- [3] T. Duffar. *Crystal Growth Processes Based on Capillarity Czochralski, Floating Zone, Shaping and Crucible Techniques*. © John Wiley & Sons Ltd (2010).
- [4] T. Fukuda; V.I. Chani. *Shaped Crystals- Growth by Micro-Pulling-Down Technique*. © Springer-Verlag Berlin Heidelberg (2007).
- [5] J. Didierjean. *Développement de systèmes laser à fibres cristallines*. Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique Campus Polytechnique, (Équipe Lasers Solides et Applications. RD 128, 91127 Palaiseau. (2011).
- [6] Site Internet (<https://www.juwelo.fr/guide-des-pierres/saphir/>) 20 Juin -15h : 23min-(2018).
- [7] A. Nehari . *Etude et caractérisation de la synthèse de milli-billes d'alumine alpha et de la cristallogénèse du saphir pur et dopé titane (Ti³⁺)*. Thèse De Doctorat. Université De Lyon-France. (2011).
- [8] E. Ghezal. *Croissance cristalline de saphir non dopé préformé et étude des effets de la matière première et des vitesses de tirage sur la distribution des bulles et la qualité cristalline*. Thèse de doctorat. Université Mohamed Khider-Biskra (2013).
- [9] C. Khattak, F. Schmid. *Growth of World's largest Sapphire Crystals*. *Journal of Crystal Growth*. 2001, vol.225, p.572-579. (2001).
- [10] Harris. *Infrared Window and Dome Materials*, SPIE Optical Engineering Press, 1992, vol.10, p.29.(1992).
- [11] W.Koehler; M.Bass. *Solid-State Lasers*. Springer-Verlag New York. (2003).
- [12] J. Czochralski, *Z. Physik Chem*. 92 (1918) 219.
- [13] [Site cradley-crystals] Site internet de cradley, "Methods of Growth", <http://www.cradley-crystals.com>.
- [14] A.M. Lejus. *Sur la formation à haute température de spinelles non stœchiométriques et de phases dérivées dans plusieurs systèmes d'oxydes à base d'alumine et dans le système alumine-nitride d'aluminium*", Thèse de Doctorat, Paris (1964), *Rev. Hautes Températures et Refractaires*. vol.1, p.53.(1964).

- [15] Kasper J.S., Lonsdale K., *International Tables for X-ray crystallography*, 1972, vol.II.
- [16] *Handbook of Chemistry and Physics*, 49TH Edition (1968-1969), p.B-173.
- [17] Lee C.H., Kröger F.A. *Electrical conductivity of polycrystalline Al₂O₃ doped with silicon. Journal of the American Ceramic Society*, , vol.68, n°.2, p.92–99. (1985).
- [18] B.V. Dutt; F.A. Kröger. *High-temperature defect structure of iron doped α -Alumina. Journal of the American Ceramic Society. Vol.58, n°11-12, p.474–476.(1975).*
- [19] W.E. Lee, Lagerlof K.P.D., *Structural and electron diffraction data for sapphire. (α - Al₂O₃), Journal of electron microscopy technique. Vol.2, p.247-258.(1985).*
- [20] E. Fritsch, G.R. Rossmann. *An update on colors in gems. Part 1: Introduction and colors caused by dispersed metal ions, Gems and Gemmology. Vol.23, n°3, p.126-139.(1987).*
- [21] A.M. Fox. *Atomic and Laser Physics.*
- [22] P.F. Moulton. *Spectroscopic and laser characteristics of Ti: Al₂O₃, J. Opt. Soc. Am. Vol.3, n°1.(1986).*
- [23] S.M. Lang; C.L. Fillmore; L.H. Maxwell. *Research Natl Bur J. Standards. Vol.48, p.301. (1952).*
- [24] I. H Jung; G. Eriksson; P.WU; and A. Pelton. *Thermodynamic Modeling of the Al₂O₃ – Ti₂O₃ – TiO₂ System and Its Applications to the Fe–Al–Ti–O Inclusion Diagram. ISIJ International, Vol 49. No. 9, pp. 1290–1297(2009).*
- [25] R. Nubling; J. Harrington. *Optical properties of single crystal sapphire fibers Applied Optics, Vol. 36, No.24, (1997).*
- [26] B. Cockayne, M. Chesswas, D. Gasson, *Single Crystal Growth of sapphire. Journal of Material Science. Vol.2 , p.7-11,(1967).*
- [27] T. Paskova ; E.B. Svedberg ; A. Henry, et al, *Physica Scr.Vol.T79, p.67-71, (1999).*
- [28] J.Marie Fourmigue ; F. Balembois ; K. Lebbou. *Procédé de fabrication de fibres monocristallines. Référence IN81. (2008).*
- [29] W.C.WINEGARD. *Introduction a la solidification des métaux. DUNOD.Paris 1971.*
- [30] P. Papon ; J. Leblond .*Physique des transitions de phases. Paul.H.E.Meijer.(1999).*

Les références

- [31] Lacmann, Herden, Mayer. *Kinetics of nucleation and Cristal growth*, chem. Eng. Technology 22, (1999).
- [32] Patricia Dery. *Étude de la croissance des grains à l'aide d'un appareil de mesure électrique. Thèse de Doctorat. Université du Québec à Chicoutimi. (2001).*
- [33] T. Fukada; P.Rudolph; S.Uda. *Fiber Crystal Growth from the melt. Springer(2003).*
- [34] A. Verneuil, *Annales de Chimie et de Physique 8e série III (1904), 20.*
- [35] T.H. Maiman, *Nature 187- 493 (1960).*
- [36] K. Nassau, *J. Crystal Growth, 13/14, 12 (1972).*
- [37] D. C. Harris. *A Century of Sapphire Crystal Growth. Proceedings of the 10th DoD Electromagnetic Windows Symposium Norfolk, Virginia, May 2004*
- [38] S. K. Popov. *Growing Synthetic Corundum as Rods and Boules in Growth of Crystals, English translation by Consultants Bureau, New York. Vol.2, p.103-135(1959).*
- [39] A. V. Shubnikov; N. N. Sheftal. *S. K. Popov in Growth of Crystals. Chapman & Hall, London, 1959, pp 104-135 (1959).*
- [40] H. Azoui. *Etude des propriétés de la zone liquide lors de la croissance cristalline par la technique micro pulling down. Mémoire de Magistère. Université Batna 1. (2012).*
- [41] D. Elwell et H.J. Scheel, *Crystal growth from high-temperature solutions, New York Academic Press (1975).*
- [42] Jie Liu, Wen-Qiang Lu. *Numerical investigation of non-isothermal phase change phenomena in vertical Bridgman crystal growth. International Journal of Heat and Mass Transfer 52 (2009) 124–132.*
- [43] A.Hautcoeur, L.Buffard, A.Eberhardt. *Utilisation de monocristaux sous forme de fil pour la réalisation de pièces mécanique. Institut Supérieur de Génie Mécanique Productique, Université de Metz, Lie du Saulcy 57045 METZ Cedex 1, France.*
- [44] J.C. Brice “*Crystal Growth process*“, 295 pp, (Blackie Halsted press), (1986).
- [45] Bridgman P, *Proc.Amer.Acd.Scie, 1941, vol.60, p.30.*

- [46] R. Schirmaier; D. Meiser ; J. Mertens; K. Schweie; S. Pabot (HÜTTINGER Elektronik). *Générateurs De Puissance Pour La Production Des Monocristaux*. © HÜTTINGER Elektronik GmbH + Co. KG. (2003).
- [46] Khattak, C. P.; Schmid, F. J. *Cryst. Growth*, 225, 572(2001).
- [47] Schmid F., *Dream A. That Came True: Reminiscences of Fred Schmid on the Occasion of Crystal Systems 25th Anniversary*, Crystal Systems, Salem, Massachusetts, 1997.
- [48] Schmid F, Rogers H.H, Khattak C.P, Felt D.M., *Growth of very large sapphire crystals for optical applications*, *Proc.Soc.Photo–Opt.Instrum.Eng.*, 1998, vol.3424, p.37-46.
- [49] C.P. Khattak et F. Schmid, *SPIE 505, Advances in Optical Materials (1984) 4*.
- [50] A. Ocafrain, *Mise en oeuvre et utilisation de la méthode de l'échangeur thermique (HEM) pour l'obtention de monocristaux à applications spécifiques et de céramiques supraconductrices orientées*, Thèse, Université Bordeaux, France (1997).
- [51] Feigelson R.S., Kway W.L. and Route R.K. *Proc. SPIE*, 1984, vol.484, p.133.
- [52] A. Laidoune, H. Lahrach, Y. Kagamitani, K. Lebbou, F. Carrillo, C. Goutaudier et O. Tillement. *Croissance de fibres polycristallines de composition eutectique $Al_2O_3 - Y_3Al_5O_{12}$ pour renforcement de composite*. *J.Phys. IV. France 113(2004) 129 -134*, (2004).
- [53] Fejer M., Nightingale J.L., Magel G.A., Byer R.L., *Rev. Sci. Instrum. Vol.618*, p.55. (1984).
- [54] Foulon G. Brenier A. Ferriol M. Cohen-Adad M.T. Boulon G. *Chem.Physics Letters*, vol.245, p.555. (1995).
- [55] A.Laidoune, K.Lebbou, D.Bahloul, M.Smadi, M.Zereg. *Ytria stabilized $Al_2O_3-ZrO_2$ eutectic crystal fibers grown by the laser heated pedestal growth (LHPG) method*. *Optical Materials 32 (2010) 731–734*.
- [56] LaBelle H.E., "Experimental Work Leading to EFG," *Am. Assoc. Crystal Growth Newsletter*, 1980, vol.50, p.8-17.
- [57] H.E. LaBelle, *J. Cryst. Growth 50 (1980) 8*.
- [58] F. Théodore, *Préformage de cristaux de saphir optique*, Thèse, INP Grenoble, France (1998).
- [59] V.A. Tartachenko, *J. Cryst. Growth 37 (1977) 272*.
- [60] A.V. Stepanov, S.V. Tsivinskii, *Sov. Physics Solid State*, vol.8, p.148. (1965).
- [61] H. S. Fang, Z. W. Yan, and E. D. Bourret-Courchesne. *Numerical Study of the Micro-Pulling-Down Process for Sapphire Fiber Crystal Growth*. *CRYSTAL GROWTH & DESIGN Article. Vol. 11, 121 129*. (2011).
- [62] T. Fukuda, *Advances IN materials Research 8*, (2007).

- [63] K. Lebbou, *Mater Research Bull* 35, 1277, (2000).
- [64] Yoshikawa, A. Nikl, M. Boulon, G. Fukuda, T. *Opt. Mater.* 30 (1), 6–10. (2007).
- [65] N. Aubry, J. Didierjean, D. Perrodin, J.-M. Fourmigué. *Fibres cristallines dopées à l'ytterbium. DGA REI. Newmat . Brevet EP1966856.* (2009).
- [66] A. Karek, K. Lebbou, M. Diaf, A. Brenier, G. Boulon. *Yb³⁺ - doped NaBi(WO₄)₂ fibre single crystals grown by the micro-pulling down technique and emission spectroscopic characterization. Materials Research Bulletin.* 532–543. 42 (2007).
- [67] J.B. Ricard, 4565600. *Processes for the continuous preparation of single crystals»,* (1983).
- [68] D.Sangla; N. Aubry; A. Nehari; A. Brenier; O. Tillement; K. Lebbou; F. Balembois; P. Georges; D. Perrodin; J. Didierjean; J. M.Fourmigue. *Yb-doped Lu₃Al₅O₁₂ fibers single crystals grown under stationary stable state for laser application. Journal of Crystal Growth* 312 125–130,(2009).
- [69] A. Fick. *On liquid diffusion,Philos. Mog., Vol. 4. No. 10, 1855. pp. 30-39 ; reprinted in J.Membrane Science. pp 33-38. 100,(1995).*
- [70] A. Nehari, A. Laidoune, M. Khetib, L. Grosvalet , A. Brenier , G. Panczer , G. Godfroy , S. Labor , K. Lebbou . *Fibers and square sapphire shaped single crystals grown from the melt and optical characterization. Optical Materials* 34 365–367.(2011).
- [71] V.A. Tatarchenko; V.S. Uspenski b; E.V. Tatarchenko b; J.Ph. Nabot; T. Duffaff; B. Roux d. *Theoretical model of crystal growth shaping process. Journal of Crystal Growth* 180, 615-626. (1977).
- [72] E. A. Ghezal, H. Li, A. Nehari, G. Alombert- Goget, A. Brenier, K. Lebbou, M. F. Joubert, and M. T. Soltani, *Crystal growth & design.* 4098–4103. 12 (2012).
- [73] H. Azoui; A. Laidoune; D. Haddad; D. Bahloul and F. Merrouchi. *Numerical simulation of the crystal growth of Ti:Al₂O₃ material by the μ -PD Technology Journal of New Technology and Materials(JNTM). Vol. 06, N°02 102-110. (2016).*
- [74]P.Papon ; J. Leblond .*Physique des transitions de phases. Paul. H.E. Meijer.*(1999).
- [75] C. W. Lan; C. C. Liu; and C. M. Hsu. *An Adaptive Finite Volume Method for Incompressible Heat Flow Problems in Solidification. Journal of Computational Physics* 178, 464–497 (2002).

- [76] A.Raufeisen, M.Breuer, T.Botsch, A.Delgado. *Transient 3D simulation of Czochralski Crystal growth considering diameter variations. Journal of Crystal Growth* 311 (2009) 695–697.
- [77] C.-Wei Lu; J.C. Chen; C.H. Chen; C.H. Chen; W.C. Hsu; C.M. Liu. *Effects of RF coil position on the transport processes during the stages of sapphire Czochralski crystal growth. Journal of Crystal Growth* 312 (2010) 1074–1079.
- [78] P. Capper .*Bulk Crystal Growth of Electronic, Optical and Optoelectronic Materials. Properties of Group-IV, III-V and II-VI Semiconductors, S. Adachi. Wiley Series in Materials for Electronic and Optoelectronic Applications. John Wiley & Sons, Ltd.(2005).*
- [79] National Ignition Facility Project. Livermore CA, <http://www.llnl.gov/nif/nif.html>.
- [80] D. Elwell et H.J. Scheel, *Crystal growth from high-temperature solutions, New York Academic Press (1975).*
- [81] W. Tolksdorf, *J. Cryst. Growth* 42 (1977) 275.
- [82] D. Elwell, P. Capper et M. D'Agostino, *J. Cryst. Growth* 29 (1975) 263.
- [83] R.A. Laudise et J.W. Nielsen, *Solid State Physics* 12 (1961) 149.
- [84] S.Wenjia; T.Duffar; A.Nehari; V.Kononets and K. Lebbou. *Modeling of Dopant Segregation in Sapphire Single Crystal Fibre Growth by Micro-Pulling-Down Method. Journal of Crystal Growth*, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.12.075>.(2016).
- [85] Z. Zeng, L. Qiao, Y.Liu, Y. Yokota, Y. Kawazoe and A. Yoshikawa. *Numerical Study on the Radial Dopant Distribution in Micro-Pulling-Down Crystal Growth, Journal of Crystal Growth*,<http://dx.doi.org/10.1016/j.jcrysgro.10.029>.(2015).
- [86] A. Nehari; T. Duffar; E.A. Ghezal; and K. Lebbou. *Chemical Segregation of Titanium in Sapphire Single Crystals Grown by Micro-Pulling-Down Technique: Analytical Model and Experiments. dx.doi.org/10.1021/cg5013582 | Cryst. Growth Des. 14, 6492–6496.(2014).*
- [87] K. A. Jackson. *Kinetic Processes. (Crystal Growth, Diffusion, and Phase Transitions in Materials).* © WILEY-VCH Verlag GmbH & Co.KGAA, Weinheim (2004).
- [88] M. Spiesser ; J.Czochralski. *La méthode du tirage des cristaux, Bulletin GFCC(1999).*
- [89] P.E. Tomaszewski. *Jan Czochralski and His Method, Institute of Low Temperature and Structural Research P.A.S. and Atut Publishing House, Wroclaw-Kcynia, (2003).*
- [90] M. H. Tavakoli. *Numerical analysis of seeding process during Czochralski growth of oxide single crystals. Thèse de Doctorat. Université Cottbus.(2006).*

Les références

- [91] H. J. Scheel and P. Capper. *Crystal Growth Technology (From Fundamentals and Simulation to Large-scale Production)*. © WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim. (2008).
- [92] R.F. Belt, R.C. Puttbach et D.A. Lepore, *Crystal growth and perfection of large Czochralski Nd:YAG single crystals*, *J. Cryst. Growth* 13/14 (1972) 268.
- [93] M. Spiesser; J. Czochralski. *La méthode du tirage des cristaux*, *Bulletin GFCC*. (1999).
- [94] C.D. Brandle et D. C. Miller, *J. Cryst. Growth* 24/25 (1974) 432.
- [95] N. B. Benabdallah. *Propriétés physiques des semi-conducteurs (Si monocristallin et Ge) et Simulation des cellules solaires à base de Si et SiGe*. Thèse de Doctorat. Université de Tlemcen-2006.
- [96] L.F. Johnson et K. Nassau, *Proc. IRE* 49 (1961) 1704.
- [97] M.H. Tavakoli, *Computational Study of Convective and Radiative Heat Transport in Czochralski Growth of Oxides*. *SOP TRANSACTIONS ON APPLIED PHYSICS. VOLUME 1, NUMBER 2*, (2014).
- [98] Z. Yan; T. Shalapska; E.D. Bourret. *Czochralski growth of the mixed halides BaBrCl and BaBrCl:Eu*. *Journal of Crystal Growth* 435(2016)42–45.
- [99] C. Stelian.; A. Nehari; I. Lasloudji; K. Lebbou; M. Dumortier; H. Cabane; T. Duffar. *Modeling the effect of crystal and crucible rotation on the interface shape in Czochralski growth of piezoelectric langatate crystals*, *Journal of Crystal Growth* (2017).
- [100] Tavakoli, M.H: *Numerical study of heat transport and fluid flow during different stages of sapphire Czochralski crystal growth*. *Journal of Crystal Growth*, vol. 310, pp. 3107– 3112. (2008).
- [101] B. Cockayne; J.G. Plant et R.A. Clay; *J. Cryst. Growth* 54 (1981) 407.
- [102] G. Müller; J. Métois; P. Rudolph. *Crystal Growth - From Fundamentals to Technology*, Elsevier, p.259.(2004).
- [103] L. SYLLA. *Etude expérimentale et thermodynamique du procédé de démouillage appliqué aux semi-conducteurs*. Thèse de doctorat de L'INPG.(2008).
- [104] M. REN Jinlei. *Élaboration et caractérisation de monocristaux de borate pour la conversion de fréquence laser dans le domaine UV* Thèse de doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie- France.(2017).

Les références

- [105] L. Gheorghe. *Les oxoborates non linéaires $Gd_{1-x}R_xCa_4O(BO_3)_3$, $R = (Lu, Sc, Nd)$: croissance cristalline et propriétés optiques. Thèse de doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie.* (2007).
- [106] C. Stelian. G. A. Goget; G. Sen; N. Barthalay. K. Lebbou. T. Duffar. *Interface effect on titanium distribution during Ti-doped sapphire crystals grown by the Kyropoulos method. Optical Materials.* 73-80. 69 (2017).
- [107] M. Tavakoli and H. Wilke. "Numerical investigation of heat transport and fluid flow during the seeding process of oxide Czochralski crystal growth part 2: rotating seed," *Crystal Research and Technology*, vol. 42, no. 7, pp. 688–698. (2007).
- [108] N. Soltani; and S. Rahal. *Control of the Convective Flow Instabilities in a Simulated Czochralski Growth System. FDMP: Fluid Dynamics & Materials Processing, Vol.13, no.1, pp.1-17.* (2017).
- [109] S. Raha; P. Cerisier; and H. Azuma. *Application of the proper orthogonal decomposition to turbulent convective flows in a simulated Czochralski system. International Journal of Heat and Mass Transfer. Vol 51, pp. 4216–4227.* (2008).
- [110] T. SUREK, B. CHALMERS and A.I. MLAVSKY. *Journal of Crystal Growth* 42 453—465 (1977).
- [111] C.W. Lan, S. Uda, T. Fukuda. *Theoretical analysis of the micro-pulling-down process for Ge_xSi_{1-x} fiber crystal growth. Journal of Crystal Growth* 193 (1998) 552–562. June 1998.
- [112] D.A. Andersen, R.H. Pletcher. *Computational fluids mechanics and heat transfer. John C. Tannehill, Second Edition. ISBN 1-56032-046-X.*
- [113] MALITSON; H. IRVING; J.R. MURPHY; V. FREDERICK; RODNEY; S. WILLIAM. *Refractive Index of Synthetic Sapphire. Journal of the Optical Society of America Volume 48 issue 1 (1958).*

Résumé

Dans cette étude, nous avons réalisé une simulation numérique tridimensionnelle de la croissance cristalline des fibres de cristaux du saphir non dopé et dopé au titane tirés par les techniques de micro-pulling down (μ -PD) et de Czochralski (Cz). L'objectif de ce travail est l'optimisation des conditions de croissance pour le tirage de cristaux de bonne qualité pour l'application laser et photonique. Notre modèle donne des résultats qui concordent avec les données expérimentales. Nous avons pu montrer que la méthode de μ -PD peu rassembler les conditions nécessaires pour l'optimisation de la distribution de la concentration des dopants pour augmenter le couplage entre l'onde laser et les ions du dopant afin de donner la plus haute puissance lumineuse possible en sortie du laser. Pour la méthode de Cz nous avons pu déterminer les conditions optimales minimisant les instabilités de la température, conservant la symétrie de l'écoulement à l'intérieur du creuset et donnant lieu à une interface de cristallisation plane. Le lien entre la vitesse de rotation optimale avec le nombre du Rayleigh est aussi étudié. Nous avons trouvé que la vitesse de rotation optimale augmente avec la température du four.

Mots clés : Croissance cristalline, Fibres préformées, Saphir, Titane, Convection libre, Convection forcée, Transfert de chaleur, Transfert de masse, Simulation numérique.

Abstract

In this study, we have established a three-dimensional numerical simulation of the crystal growth of non doped and titanium doped sapphire grown by micro-pulling down (μ -PD) and Czochralski (Cz) techniques. The aim of this work is to optimize the growing conditions to pull high quality crystals for the laser and photonics application. Our model is in good agreement with experimental results. We have been able to show that the μ -PD method can gather the necessary conditions for optimization of the dopants concentration distribution for increasing the coupling between the laser wave and the ions of the doping agent in order to give the highest possible luminous power at the output of the laser. For the Cz method we have been able to find the optimal conditions that minimize the temperature instabilities, keep the flow symmetric inside the crucible and lead to a flat crystallization interface. The relation between the optimal relation speed and Rayleigh number is also study. We found that the optimal rotation speed increases with the temperature of the furnace.

Keywords: Crystal growth, Preformed fibers, Sapphire, Titanium, Free convection, Forced convection, Heat transfer, Mass transfer, Numerical simulation.

ملخص

في هذه الدراسة قمنا بإجراء محاكاة ثلاثية الأبعاد للنمو البلوري لألياف وبلورات الياقوت (Saphir) الغير المحقون والسفير المحقون بالتيتان (Titane) وذلك باستعمال طريقتين طريقة السحب المجهري نحو الأسفل (μ -PD) و pulling down وطريقة السحب نحو الأعلى والمعروفة بطريقة تشوخرالسكي Czochralski(Cz). الهدف من هذا العمل هو إيجاد الشروط المثالية للقيام بعملية السحب وتحسين نوعية البلورات التي لها الكثير من التطبيقات في مجال الليزر والضوئيات. النتائج المتحصل عليها تتوافق مع النتائج التجريبية. استطعنا إثبات أن طريقة السحب المجهري نحو الأسفل (μ -PD) قادرة على جمع الشروط اللازمة لزيادة الترابط بين موجة الليزر والايونات المحقونة من أجل إعطاء أكبر استطاعة مضيئة ممكنة عند مخرج الليزر. فيما يخص النتائج المتحصل عليها بطريقة Cz لقد تمكنا من تحديد الشروط التحسينية التي تقلل من التغيرات العشوائية و تحتفظ بتناظر الجريان داخل البوتقة وتعطي شكلا مستويا للسطح الفاصل بين السائل المذاب والبلور. تمت ايضا دراسة العلاقة بين سرعة الدوران التحسينية و عدد رايلي حيث Rayleigh . وجدنا ان السرعة التحسينية للدوران تتزايد مع حرارة الفرن.

الكلمات المفتاح : النمو البلوري ، الألياف مسبقة التشكيل ، الياقوت ، التيتانيوم ، الحمل الحر ، الحمل المفعل ، التحويل (النقل) الحراري، النقل الكتلي ، المحاكاة العددية.