



HAL
open science

**INJECTION DE CHARGES DANS LE
POLYETHYLENE TEREPHTALATE A PARTIR DE
LA METHODE DE L'ONDE DE PRESSION INDUITE
PAR IMPACT LASER (LIPP) : MODELISATION
PHYSIQUE ET OPTIMISATION DE LA METHODE,
INFLUENCE DES PARAMETRES DE L'INTERFACE
METAL-ISOLANT**

Hoan Tran Van

► **To cite this version:**

Hoan Tran Van. INJECTION DE CHARGES DANS LE POLYETHYLENE TEREPHTALATE A PARTIR DE LA METHODE DE L'ONDE DE PRESSION INDUITE PAR IMPACT LASER (LIPP) : MODELISATION PHYSIQUE ET OPTIMISATION DE LA METHODE, INFLUENCE DES PARAMETRES DE L'INTERFACE METAL-ISOLANT. Energie électrique. Institut Polytechnique de Grenoble, 2010. Français. NNT : . tel-02295972

HAL Id: tel-02295972

<https://hal.science/tel-02295972>

Submitted on 24 Sep 2019

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

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

**UNIVERSITE DE GRENOBLE
INSTITUT POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE**

N° attribué par la bibliothèque

□□□□□□□□□□□□□□□□

T H E S E

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'Université de Grenoble
délivré par l'Institut polytechnique de Grenoble**

Spécialité : « Génie électrique »

préparée au Laboratoire de Génie Electrique de GRENOBLE
dans le cadre de l'Ecole Doctorale « **Electronique, Electrotechnique, Automatique & Traitement du Signal** »
présentée et soutenue publiquement

par

TRAN VAN Hoan

Le 24 Juin 2010

TITRE

**INJECTION DE CHARGES DANS LE POLYETHYLENE TEREPHTALATE A PARTIR
DE LA METHODE DE L'ONDE DE PRESSION INDUITE PAR IMPACT LASER (LIPP) :
MODELISATION PHYSIQUE ET OPTIMISATION DE LA METHODE, INFLUENCE
DES PARAMETRES DE L'INTERFACE METAL-ISOLANT**

DIRECTEURS DE THESE

Jean-Louis AUGE, Pascal RAIN

JURY

M. Philippe DELAPORTE	Rapporteur
M. Stéphane HOLE	Rapporteur
M. Gilbert TEYSSÉDRE	Examinateur
M. Jean-Luc REBOUD	Examinateur
M. Jean-Louis AUGE	Examinateur
M. Pascal RAIN	Examinateur

**UNIVERSITE DE GRENOBLE
INSTITUT POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE**

N° attribué par la bibliothèque

□□□□□□□□□□□□□□□□

T H E S E

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'Université de Grenoble
délivré par l'Institut polytechnique de Grenoble**

Spécialité : « Génie électrique »

préparée au Laboratoire de Génie Electrique de GRENOBLE
dans le cadre de l'Ecole Doctorale « **Electronique, Electrotechnique, Automatique & Traitement du Signal** »
présentée et soutenue publiquement

par

TRAN VAN Hoan

Le 24 Juin 2010

TITRE

**INJECTION DE CHARGES DANS LE POLYETHYLENE TEREPHTALATE A PARTIR
DE LA METHODE DE L'ONDE DE PRESSION INDUITE PAR IMPACT LASER (LIPP) :
MODELISATION PHYSIQUE ET OPTIMISATION DE LA METHODE, INFLUENCE
DES PARAMETRES DE L'INTERFACE METAL-ISOLANT**

DIRECTEURS DE THESE

Jean-Louis AUGE, Pascal RAIN

JURY

M. Philippe DELAPORTE	Rapporteur
M. Stéphane HOLE	Rapporteur
M. Gilbert TEYSSÉDRE	Examinateur
M. Jean-Luc REBOUD	Examinateur
M. Jean-Louis AUGE	Examinateur
M. Pascal RAIN	Examinateur

SOMMAIRE

<u>LISTE DES SYMBOLES</u>	<u>7</u>
<u>INTRODUCTION.....</u>	<u>11</u>
<u>CHAPITRE 1. ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE SUR L'INJECTION DES CHARGES DANS LES POLYMERES</u>	<u>14</u>
1.1. GENERALITES	14
1.1.1. DEFINITIONS	14
1.1.1.1. Charges d'espace.....	14
1.1.1.2. Charges capacitives.....	14
1.1.1.3. Charges induites.....	14
1.1.1.4. Homocharges et hétérocharges	15
1.1.2. MECANISMES DE GENERATION DES CHARGES D'ESPACE	15
1.1.3. INFLUENCE DES CHARGES D'ESPACE SUR LES COMPORTEMENTS DES ISOLANTS	16
1.2. INJECTION DE CHARGES DANS LES POLYMERES SOUS TENSION CONTINUE.....	17
1.2.1. INJECTION DE CHARGES A L'INTERFACE METAL/ISOLANT : CAS D'UNE INTERFACE PARFAITE	17
1.2.1.1. Hauteur de la barrière.....	17
a. Pour l'injection d'électron.....	17
b. Pour l'injection de trou	20
1.2.1.2. Contacts aux interfaces	20
a. Contacts ohmiques	20
b. Contacts bloquants.....	20
1.2.1.3. Effet Schottky	21
1.2.1.4. Effet tunnel.....	22
1.2.2. INJECTION DES CHARGES AUX INTERFACES AVEC PRESENCE D'ETATS DE SURFACE	23
1.2.3. INFLUENCE D'UNE METALLISATION	26
1.2.4. INFLUENCE DE LA NATURE DE LA METALLISATION.....	27
1.2.4.1. Polyéthylène naphthalate (PEN)	28
1.2.4.2. Polyéthylène téréphthalate (PET)	28
1.2.3.3. Polyéthylène (PE)	30
1.2.4.4. Polyéthylène à base densité (PEBD).....	30
1.2.4.5. Autres polymères.	31
1.2.4.6. Conclusions.....	32
1.2.5. INFLUENCE DE L'ETAT DE SURFACE	34

1.2.5.1. Influence de la rugosité de la surface du polymère	34
1.2.5.2. Influences du traitement de surface par rayonnement ultraviolet (UV).....	35
1.2.5.3. Influence de l'oxydation	35
1.3. INJECTION DES CHARGES SOUS TENSION ALTERNATIVE.....	36
1.3.1. MODELE BIPOLAIRE	37
1.3.2. INFLUENCE DE LA FREQUENCE	38
1.3.3. INFLUENCE DU CHAMP ELECTRIQUE.....	40
1.3.4. INFLUENCE DE LA PHASE	40
1.3.5. INFLUENCE DE LA DUREE D'APPLICATION DE LA TENSION.....	41
1.3.6. INFLUENCE DE LA NATURE DU MATERIAU UTILISE COMME ELECTRODE.....	42
1.3.7. CONCLUSIONS.....	44
<u>CHAPITRE 2 : METHODE DE L'ONDE DE PRESSION LIPP</u>	<u>45</u>
2.1. PRESENTATION DE LA METHODE	45
2.1.1. PRINCIPE DE LA METHODE	45
2.1.2. GENERATION DE L'ONDE DE PRESSION	46
2.2. EXPRESSION DU SIGNAL	47
2.2.1. EN CONDITION DE CIRCUIT OUVERT	47
2.2.2. EN CONDITION DE COURT-CIRCUIT.....	48
2.3. ANALYSE DES SIGNAUX OBTENUS EN CONDITION DE COURT-CIRCUIT.....	49
2.3.1. MESURES SOUS CHAMP AVEC UN ECHANTILLON VIERGE.....	49
2.3.2. SIGNAL OBTENU PAR LES MESURES HORS CHAMP.....	52
2.3.2.1. Cas où l'onde de pression pénètre dans l'échantillon	52
a. Cas où la largeur de l'onde de pression est infiniment fine	53
b. Cas où la largeur de l'onde de pression n'est pas assimilable à un Dirac.....	53
2.3.2.2. Cas où l'onde de pression est complètement dans l'échantillon.....	53
a. Cas où la largeur de l'onde de pression est infiniment fine	54
b. Cas où la largeur de l'onde de pression n'est pas assimilable à un Dirac.....	54
2.3.2.3. Cas où l'onde de pression sort de l'échantillon.....	54
a. Cas où la largeur de l'onde de pression est infiniment fine	54
b. Cas où la largeur de l'onde de pression n'est pas assimilable à un Dirac.....	54
2.4. TRAITEMENT DU SIGNAL	55
2.4.1. SIGNAL DE CALIBRATION	55
2.4.1.1. Calcul de la vitesse.....	55
2.4.1.2. Calcul du coefficient d'atténuation	56
2.4.1.3. Elargissement de l'onde de pression.....	57
2.4.2. MESURES HORS CHAMP	57
2.4.2.1. Mesures hors champ brute	57

2.4.2.2. Correction du signal	57
2.4.3. CALCUL DES CHARGES D'ESPACE.....	58
2.4.3.1. Analyse des signaux.....	58
a. Signal de calibration.....	58
b. Signal de mesure hors champ.	59
2.4.3.2. Calcul de la densité des charges.....	60
2.4.3.3. Calcul du champ.....	61
2.4.3.4. Calcul approximatif des charges d'espace	61
a. Principe de la méthode.	61
b. Application.....	62
<u>CHAPITRE 3 : DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX</u>	64
3.1. LIPP EN DC	64
3.1.1. SYSTEME D'ORIGINE.....	64
3.1.2. NOUVEAU SYSTEME.....	66
3.2. DEVELOPPEMENT DU DISPOSITIF EN AC.....	68
3.2.1. SCHEMA DE PRINCIPE	68
3.2.1.1. Description.....	68
3.2.1.2. Fonctionnement du système sous tension alternative.	70
3.2.2. CELLULE	70
3.3. AUTRES DISPOSITIFS DE CARACTERISATION ET DE MESURES	72
3.3.1. MESURE DU COURANT	72
3.3.2. MESUREUR D'ENERGIE LASER	72
3.3.3. MESURE DU PROFIL TEMPOREL DE L'IMPULSION LASER	73
3.3.4. SPECTROPHOTOMETRES	74
3.3.5. SYSTEME DE VIEILLISSEMENT UV.....	75
3.3.6. PROFILOMETRE.....	76
3.3.7. MATERIAUX.....	76
<u>CHAPITRE 4 : ETUDE PHYSIQUE DE LA GENERATION DE L'ONDE DE PRESSION ET OPTIMISATION DES CONDITIONS EXPERIMENTALES.....</u>	78
4.1. ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE.....	78
4.1.1. LIQUIDES TRANSPARENTS	78
4.1.1.1. Phénoménologie.....	78
a. Energie inférieure au seuil de nucléation.....	79
b. Energie supérieure au seuil de nucléation.....	79
4.1.1.2. Analyse qualitative.....	80

4.1.1.3. Estimation du seuil d'ébullition	80
a. Energie absorbée par la cible	80
b. Seuil d'ébullition.....	81
4.1.2. LIQUIDES OPAQUES.....	82
4.1.2.1. Les différents mécanismes de génération.....	82
4.1.2.2. Dilatation thermique du liquide	84
a. Amplitude de l'onde de pression.....	84
b. Forme de l'onde de pression.....	87
4.1.2.3. Vaporisation.....	90
4.2. RESULTATS ET DISCUSSION POUR LES LIQUIDES TRANSPARENTS	92
4.2.1. RESULTATS	92
4.2.1.1. Influence de la hauteur de liquide	92
4.2.1.2. Influence de la nature des liquides	93
4.2.1.3. Influence de l'absorptivité de la surface de la cible	98
4.2.2. DISCUSSION	99
4.2.2.1. Discussion sur le seuil de nucléation	100
4.2.2.2. Discussion sur la réponse linéaire de la LIPP	101
a. Pente de la partie linéaire.	101
b. Seuil de dilatation thermique.	103
c. Influence du liquide.....	103
4.2.2.3. Influence de l'absorptivité de la cible	103
4.2.2.4. Conclusion	104
4.3. RESULTATS ET DISCUSSIONS POUR LES LIQUIDES OPAQUES.....	104
4.3.1. RESULTATS	104
4.3.1.1. Caractérisation de l'encre de chine à 1064 nm	104
4.3.1.2. Résultats pour une couche d'encre de 20 µm.....	105
4.3.1.3. Résultats pour une couche d'encre de 320 µm.....	109
4.3.1.4. Résultats pour une couche d'encre de 960 µm.....	111
4.3.1.5. Résultats pour une couche d'encre de 1600 µm.....	112
4.3.1.6. Synthèse des résultats.....	114
a. Comparaison des amplitudes du pic positif en fonction de l'énergie laser	114
b. Estimation de la vitesse de l'onde de pression.....	115
4.3.2. DISCUSSION	115
4.3.2.1. Couche d'encre de 20 µm	115
4.3.2.2. Couche d'encre de 320 µm	116
4.3.2.3. Couches d'encre de 960 µm et 1600 µm.....	117
4.3.2.4. Conclusions.....	118
4.4. OPTIMISATION A LA TEMPERATURE 60°C.....	118
4.5. CONCLUSIONS.....	120

<u>CHAPITRE 5 : RESULTATS ET DISCUSSIONS SUR L'INJECTION DE CHARGE</u>	
<u>D'ESPACE.....</u>	<u>121</u>
5.1. INJECTION DE CHARGES SOUS TENSION CONTINUE.....	121
5.1.1. RESULTATS	121
5.1.1.1. Dynamique des charges d'espace.....	121
5.1.1.2. Mesure de courant.....	122
5.1.2. DISCUSSION	122
5.1.2.1. Analyse.....	122
5.1.2.2. Comparaisons charges d'espace/courant.....	123
5.1.2.3. Analyse du courant transitoire	125
5.1.2.4. Analyse du régime permanent.....	126
5.1.2.5. Estimation de la hauteur de la barrière de potentiel.....	127
5.2. PARAMETRES MODIFIANT L'INJECTION.....	128
5.2.1. INFLUENCE DE LA NATURE DES ELECTRODES METALLISEES	128
5.2.1.1. Résultats.....	128
5.2.1.2. Discussion.....	130
5.2.2. INFLUENCE D'UN VIEILLISSEMENT PAR UV	130
5.2.2.1. Résultats.....	130
5.2.2.2. Discussion.....	132
5.2.3. RUGOSITE DE LA SURFACE.....	133
5.2.3.1. Résultats.....	133
5.2.3.2. Discussion.....	134
5.2.4. INFLUENCE DE L'EPaisseur.....	135
5.2.4.1. Résultats.....	135
a. Polarisation sous un champ de 5 kV/mm.....	135
b. Polarisation sous un champ de 10 kV/mm.....	137
5.2.4.2. Discussion.....	139
5.3. RESULTATS POUR L'INJECTION DES CHARGES SOUS LA TENSION	
ALTERNATIVE.....	139
5.4. CONCLUSIONS.....	140
<u>CONCLUSION GENERALE</u>	<u>142</u>
POUR L'ETUDE PHYSIQUE DE LA GENERATION DE L'ONDE DE PRESSION	142
POUR L'INJECTION DE CHARGE	144
<u>BIBLIOGRAPHIE</u>	<u>146</u>

BIBLIOGRAPHIE DE L'INTRODUCTION	147
BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 1	148
BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 2	156
BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 4	157
BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 5	162
<u>ANNEXE.....</u>	164
ANNEXE 1.....	164

LISTE DES SYMBOLES

$A_{\text{entrée}}$ [V]	Amplitude du signal de calibration à l'entrée
A_L [m ²]	Section du faisceau laser
A_{R-D} [A.m ⁻² .K ⁻²]	Constante de Richardson-Dushman
A_{sortie} [V]	Amplitude du signal de calibration à la sortie
c [m.s ⁻¹]	Vitesse du son dans le liquide
C_o [F]	Capacité de l'isolant non comprimé par l'onde de pression
C_p [J.kg ⁻¹ .K ⁻¹]	Chaleur spécifique du liquide à pression constante
C_v [J.kg ⁻¹ .K ⁻¹]	Chaleur spécifique à volume constant de la cible
d [m]	Epaisseur de l'isolant
D_c [m ² .s ⁻¹]	Coefficient de diffusion thermique de la cible
d_{c-i} [m]	Epaisseur de l'interface électrode/isolant §1.2.2
D_l [m ² .s ⁻¹]	Coefficient de diffusion thermique du liquide
e [C]	Charge électronique
E [V.m ⁻¹]	Champ électrique appliqué
$E(z)$ [V.m ⁻¹]	Champ électrique local à la position z
E_{anode} [V.m ⁻¹]	Champ électrique à l'anode
E_{cathode} [V.m ⁻¹]	Champ électrique à la cathode
E_g [eV]	Energie d'ionisation du polymère
E_L [J]	Energie laser
E_1 [J]	Energie absorbée par le volume du liquide
E_{sth} [J]	Energie laser minimale conduisant à l'ébullition du liquide
$F(z)$ [N]	Force de Coulomb entre deux électrons
F_L [J.m ⁻²]	Densité d'énergie surfacique du faisceau laser
$G(\epsilon_r)$ [sans dimension]	Coefficient produit par la variation de la permittivité relative du matériau avec la pression.
h	Constante de Planck
$i_{cc}(t)$ [A]	Courant en condition de court-circuit
$I_{cc-hc}(t)$ [A]	Courant hors champ en condition de court-circuit
$i_{cc-sc}(t)$ [A]	Courant sous champ en condition de court-circuit
$I_l(t)$ [W.m ⁻²]	Distribution temporelle de l'intensité de l'énergie laser
I_{n_anode} [A]	Courant à l'anode

$I_{n_cathode}$ [A]	Courant à la cathode
J [$A.m^{-2}$]	Densité de courant
k [$C.m^{-2}.V^{-1}.s^{-1}$]	Un coefficient défini au §2.4.3.2
k_B [$J.K^{-1}$]	Constante de Boltzmann
m [kg]	Masse de la couche solide de la cible absorbant l'énergie laser
m^* [kg]	Masse effective de l'électron
N_s [$m^{-2}.V^{-1}$]	Densité des états de surfaces dans la bande interdite du polymère §1.2.2
n_s [m^{-2}]	Densité d'états de surface dus à l'adsorption de molécules gazeuses
$P(z,t)$ [$N.m^{-2}$]	Intensité de l'onde de pression
$P_r(z,t)$ [$N.m^{-2}$]	Intensité de la pression réfléchie
Q_c [J]	Energie absorbée par la surface de la cible
R_a [sans dimension]	Coefficient de réflexion acoustique
R_o [sans dimension]	Coefficient de réflexion optique à la surface du liquide opaque
$R_{PET/air}$ [sans dimension]	Coefficient de réflexion acoustique à l'interface PET/air
S [$J.K^{-1}$]	Entropie du liquide
S [m^2]	Surface de l'électrode
S_c [V.s]	Surface du pic induit par les charges images §2.4.3.2
S_p [V.s]	Surface du pic d'entrée §2.4.3.2
T [K]	Température
t^* [sans dimension]	Temps caractéristique
T_a [sans dimension]	Coefficient de transmission acoustique
$T_{ébullition}$ [K]	Température d'ébullition du liquide
t_i [s]	Temps
$T_{initiale}$ [K]	Température initiale
t_p [s]	Durée de l'onde de pression
t_r [s]	Temps de relaxation ou de propagation de l'onde de pression dans le volume de liquide chauffé
$u(t_i)$ [V]	Tension mesurée hors champ à l'instant t_i
$u(t_i)_{corrigé}$ [V]	Tension mesurée hors champ à l'instant t_i corrigée du coefficient d'atténuation
$u_{cal}(t_i)$ [V]	Tension calibration mesurée lors du tir de calibration à l'instant t_i

v [m.s^{-1}]	Vitesse de l'onde de pression dans l'isolant
V [V]	Tension inter-électrodes appliquée
V_C [m^3]	Volume de la cible chauffé par l'absorption de l'énergie du laser
V_c [m^3]	Volume de la couche de la cible absorbant l'énergie
$v_{co}(t)$ [V]	Tension en condition de circuit ouvert
Vol [m^3]	Volume de liquide opaque absorbant l'énergie du laser
Z [Ω]	Impédance électrique de mesure
z [m]	Position dans l'épaisseur du matériau
Z_{air} [$\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$]	Impédance acoustique de l'air
z_f [m]	Position du front de l'onde de pression
z_i [m]	Position de l'onde à l'instant t_i
$Z_{isolant}$ [$\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$]	Impédance acoustique de l'isolant
z_{max} [m]	Position où l'énergie potentielle est maximale
Z_{PET} [$\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$]	Impédance acoustique du PET
z_q [m]	Position de la queue de l'onde de pression
α_a [m^{-1}]	Coefficient d'atténuation de l'onde acoustique
β [sans dimension]	Coefficient de renforcement du champ
β_l [K^{-1}]	Coefficient de dilatation thermique du liquide
β_s [$\text{C.V}^{-1}.\text{m}^{-1}$]	Constante Schottky
ΔP [N/m]	Variation de pression
ΔT [K]	Variation de température à la surface de la cible
Δt [s]	Période d'échantillonnage lors de l'acquisition du signal
ϵ [F.m^{-1}]	Permittivité diélectrique
ϵ_a [sans dimension]	Absorptivité de la surface de la cible
ϵ_r [sans dimension]	Permittivité relative
μ_{opt} [m^{-1}]	Coefficient d'absorption optique du liquide
μ_{th} [m]	Profondeur de pénétration thermique pendant la durée de l'impulsion laser
ρ_{air} [kg.m^{-3}]	Densité volumique de l'air
ρ_c [kg.m^{-3}]	Densité volumique de la cible
ρ_l [kg.m^{-3}]	Densité volumique du liquide
ρ_o [C.m^{-3}]	Une densité de charge volumique donnée §1.1.3
ρ_{PET} [kg.m^{-3}]	Densité volumique du PET
ρ_v [kg.m^{-3}]	Densité volumique de l'isolant

$\rho(z)$ [C.m ⁻³]	Densité de charges volumique à la position z
σ_A, σ_B [C.m ⁻²]	Densités surfaciques de charges sur les électrodes A et B
χ [eV]	Affinité électronique du polymère
χ_c [Pa ⁻¹]	Compressibilité du matériau
χ_l	Coefficient de compressibilité du liquide
Γ [sans dimension]	Coefficient de Grüneisen
$\Phi(z)$ [eV]	Energie potentielle d'un électron hors champ à la position z
$\Phi_c(\text{gaz})$ [eV]	Barrière de potentiel avec adsorption de molécules gazeuses
$\Phi_c(\text{vide})$ [eV]	Barrière de potentiel sans adsorption de molécules gazeuses
Φ_{eff} [eV]	Hauteur effective de la barrière de potentiel
$\Phi_{\text{hc}}(z)$ [eV]	Energie potentielle d'un électron hors champ en tenant compte de la charge image
Φ_{is} [eV]	Travail de sortie du polymère
Φ_m [eV]	Travail de sortie du métal
Φ_o [eV]	Barrière de potentiel à franchir pour l'électron à l'interface électrode/isolant sans tenir compte de la charge image et du champ
$\Phi_{\text{sc}}(z)$ [eV]	Energie potentielle d'un électron sous champ en tenant compte de la charge image
Φ_t [eV]	Barrière de potentiel pour un trou au contact électrode/isolant
κ_c [W.m ⁻¹ .K ⁻¹]	Conductivité thermique de la cible
τ [s]	Durée de l'impulsion laser

INTRODUCTION

Lorsque le champ électrique auquel il est soumis est élevé, un matériau diélectrique est le siège d'injection de charges électriques. Ces charges sont susceptibles de se déplacer et/ou de s'accumuler, en particulier à proximité des interfaces. Ces accumulations de charges modifient la distribution du champ électrique dans le matériau. Les renforcements locaux de champ peuvent engendrer des phénomènes supplémentaires d'injections de charges, voire des phénomènes d'arborescences électriques au sein du matériau. Celles-ci peuvent conduire à plus ou moins long terme à la rupture diélectrique de l'isolation. De façon générale, la présence d'une accumulation locale de charges est considérée comme un facteur à l'origine du vieillissement d'un isolant [0.1]. Vis-à-vis du vieillissement du matériau, la notion de champ seuil d'injection en découle.

Les études des mécanismes d'injection et de transport de charges ont connu un essor depuis une vingtaine d'années grâce au développement de techniques permettant de mesurer sous champ ou hors champ la distribution des charges dans l'épaisseur d'un isolant. Ces études ont été consacrées en particulier à l'étude des câbles souterrains de transport d'énergie qui remplacent de plus en plus souvent les câbles aériens non isolés. Pour les matériels sous tension continue, la corrélation entre l'accumulation de charges d'espace et le claquage a été établie et des facteurs de renforcement du champ jusqu'à 8 fois le champ moyen ont été observés grâce à ces techniques [0.2].

La plupart des isolations fonctionnant sous tension alternative, les études se sont également consacrées à établir dans quelles conditions des charges d'espace peuvent être injectées sous tension alternative [0.3]. Un des objectifs de cette thèse est donc de faire évoluer le dispositif de mesure de charges d'espace existant au laboratoire afin de pouvoir soumettre les échantillons à des tensions alternatives.

La température favorise les processus d'injection et de transport des charges. L'injection de charges d'espace a été mise en évidence dans un grand nombre de conditions de champs et de températures. Néanmoins, les théories communément admises en physique du solide (effet Schottky ou effet Fowler-Nordheim) ne permettent pas d'expliquer les phénomènes observés dans les polymères. En particulier, ces théories ne permettent pas l'interprétation de l'injection des charges pour les faibles niveaux de champs électriques appliqués. De plus, les défauts de répétabilité parfois constatés sur des matériaux de même origine [0.4] conduisent à s'interroger sur l'importance de certains paramètres des interfaces

injectrices (nature du métal de l'électrode, rugosité du matériau, modification d'états de surface suite à un vieillissement).

La méthode de l'onde de pression, ou méthode LIPP (Laser-Induced Pressure Pulse), que nous utilisons, consiste à générer une onde acoustique impulsionnelle à partir d'un laser pulsé (YAG) qui tape sur une cible épaisse en métal. Cette onde en se propageant dans la cible puis dans l'isolant va induire un courant dans le circuit extérieur qui est l'image de la distribution des charges d'espace présentes dans l'isolant. Pour améliorer la sensibilité de la mesure, la cible est recouverte d'un liquide. Pour comparer quantitativement le rôle des paramètres d'interface, il est nécessaire que la sensibilité de mesure soit stabilisée.

Pour mener cette étude, un matériau de référence a été choisi. Il s'agit du polyéthylène téréphtalate (PET). Ce polyester est utilisé en électrotechnique pour l'isolation de moteurs ou de condensateurs. Il a été assez peu étudié contrairement aux polyéthylènes d'isolation des câbles.

Plutôt que de faire varier champ et température pour obtenir différents spectres de densité de charges dans le matériau, nous avons focalisé l'étude uniquement sur l'aspect injection, bien qu'il ne soit pas possible de faire abstraction du transport de charge. La température d'étude de 60°C permet d'accentuer les phénomènes d'injection par rapport à la température ambiante tout en restant en-dessous de la transition vitreuse. Le champ faible de 6 kV/mm permet de rester dans une gamme réaliste vis-à-vis des applications.

Cette thèse se compose de cinq chapitres :

Le premier chapitre est consacré à une étude bibliographique sur l'injection des charges dans les polymères sous tension continue et tension alternative. Nous présenterons les théories sur l'injection des charges dans les solides et les paramètres gouvernant l'injection des charges dans les polymères.

La technique LIPP utilisée est présentée dans le deuxième chapitre. L'analyse mathématique des signaux mesurés sous champ et hors champ lors de la propagation de l'onde de pression est rappelée. Nous présentons une méthode simple pour obtenir une estimation de la densité de charges à l'intérieur de l'isolant.

Le troisième chapitre est consacré aux différentes techniques expérimentales. Nous présentons en particulier les évolutions de la cellule d'essai et le nouveau système de mesure de charges qui fonctionne en continu et en alternatif

Afin d'optimiser la résolution spatiale et la reproductibilité de la mesure, l'interaction laser-liquide a été approfondie pour différents liquides (transparents ou pas à la longueur d'onde du laser) et selon son énergie. Ceci constitue le quatrième chapitre.

Le cinquième chapitre compare dynamique des charges d'espace et transitoire de courant et examine l'influence sur l'injection de divers paramètres d'interface.

CHAPITRE 1. ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE SUR L'INJECTION DES CHARGES DANS LES POLYMERES

1.1. GENERALITES

Les matériaux utilisés dans l'isolation électrique ne se comportent jamais comme des isolants parfaits. Ils sont susceptibles de se charger électriquement par des mécanismes dont la nature est connue et décrite théoriquement dans certaines situations idéalisées. Dans les situations concrètes rencontrées dans les applications industrielles, il est difficile voire impossible, d'avoir une approche théorique tant les systèmes sont complexes et souvent mal définis au niveau microscopique. Il est donc essentiel, dans le cadre d'une application, de conduire des essais selon des techniques permettant la mesure de la charge générée ou susceptible de l'être, pour des conditions expérimentales données [1.1].

1.1.1. Définitions

1.1.1.1. Charges d'espace

Les charges d'espace sont constituées de charges réelles, positives ou négatives, de nature électronique ou ionique contenues dans l'isolant. Leur concentration est telle que l'électro-neutralité n'est plus respectée dans le volume qu'elles occupent. Le champ électrique macroscopique est donc modifié.

1.1.1.2. Charges capacitives

Les charges qui apparaissent sur les électrodes suite à l'application d'un champ aux bornes d'un matériau sont appelées charges capacitives.

1.1.1.3. Charges induites

Les charges induites par les charges d'espace sont localisées sur les électrodes. Dans le cas d'un diélectrique d'épaisseur d et de surface S muni de deux électrodes A et B, les charges induites sur les électrodes A et B par la densité de charge $\rho(z)$ sont respectivement σ_A et σ_B , données par les relations [1.2] :

$$\sigma_A = -\frac{d - \langle z \rangle Q}{d S} \quad \text{équation 1- 1}$$

$$\sigma_B = -\frac{\langle z \rangle Q}{d S} \quad \text{équation 1- 2}$$

$$\text{Où : } \langle z \rangle = \frac{\int_0^d z \cdot \rho(z) \cdot dz}{\int_0^d \rho(z) \cdot dz} \quad \text{équation 1- 3}$$

$$\frac{Q}{S} = \int_0^d \rho(z) dz \quad \text{équation 1- 4}$$

Avec : $\rho(z)$: Densité volumique de charges.

1.1.1.4. Homocharges et hétérocharges

Les homocharges et les hétérocharges correspondent aux charges d'espace à proximité des électrodes. Les homocharges ont la même polarité que l'électrode adjacente tandis que les hétérocharges ont un signe opposé (Figure 1- 1)

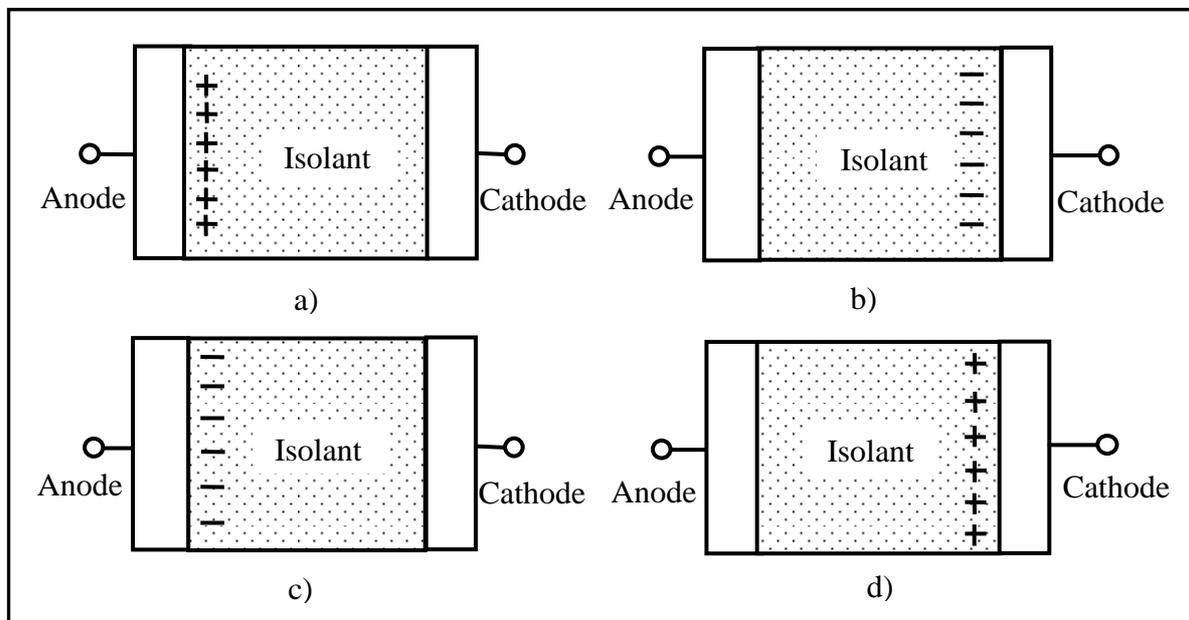


Figure 1- 1 : Homocharges : charges positives à l'anode (a), charges négatives à la cathode (b).

Hétérocharges : charges négatives à l'anode (c), charges positives à la cathode (d).

1.1.2. Mécanismes de génération des charges d'espace

Les charges d'espace dans l'isolant peuvent être générées par

- Injection à partir des électrodes.
- Electro-dissociation d'espèces neutres.
- Interaction de la matière avec des rayonnements ionisants ou des particules énergétiques.
- Lors du processus de fabrication du matériau (impuretés, additifs)

La Figure 1- 2 représente quelques mécanismes de génération de charges d'espace dans un isolant.

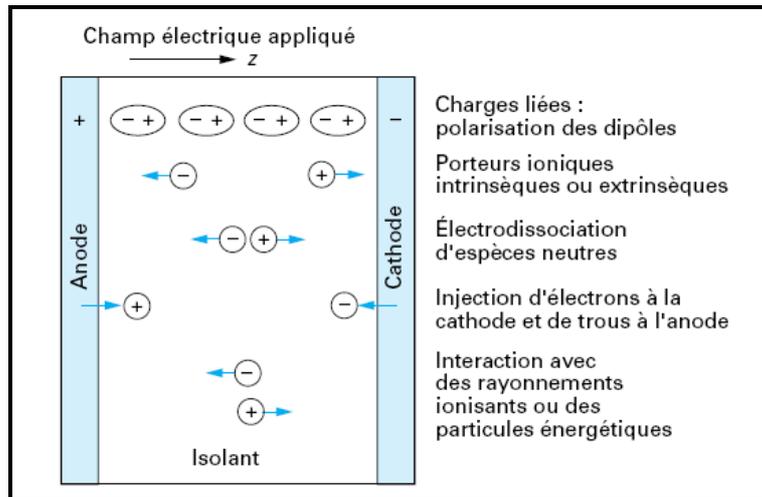


Figure 1- 2 : Mécanisme de génération des charges d'espace dans l'isolant [1.1]

1.1.3. Influence des charges d'espace sur les comportements des isolants

L'effet majeur de la présence de charges dans un diélectrique est la modification de la distribution interne du champ électrique.

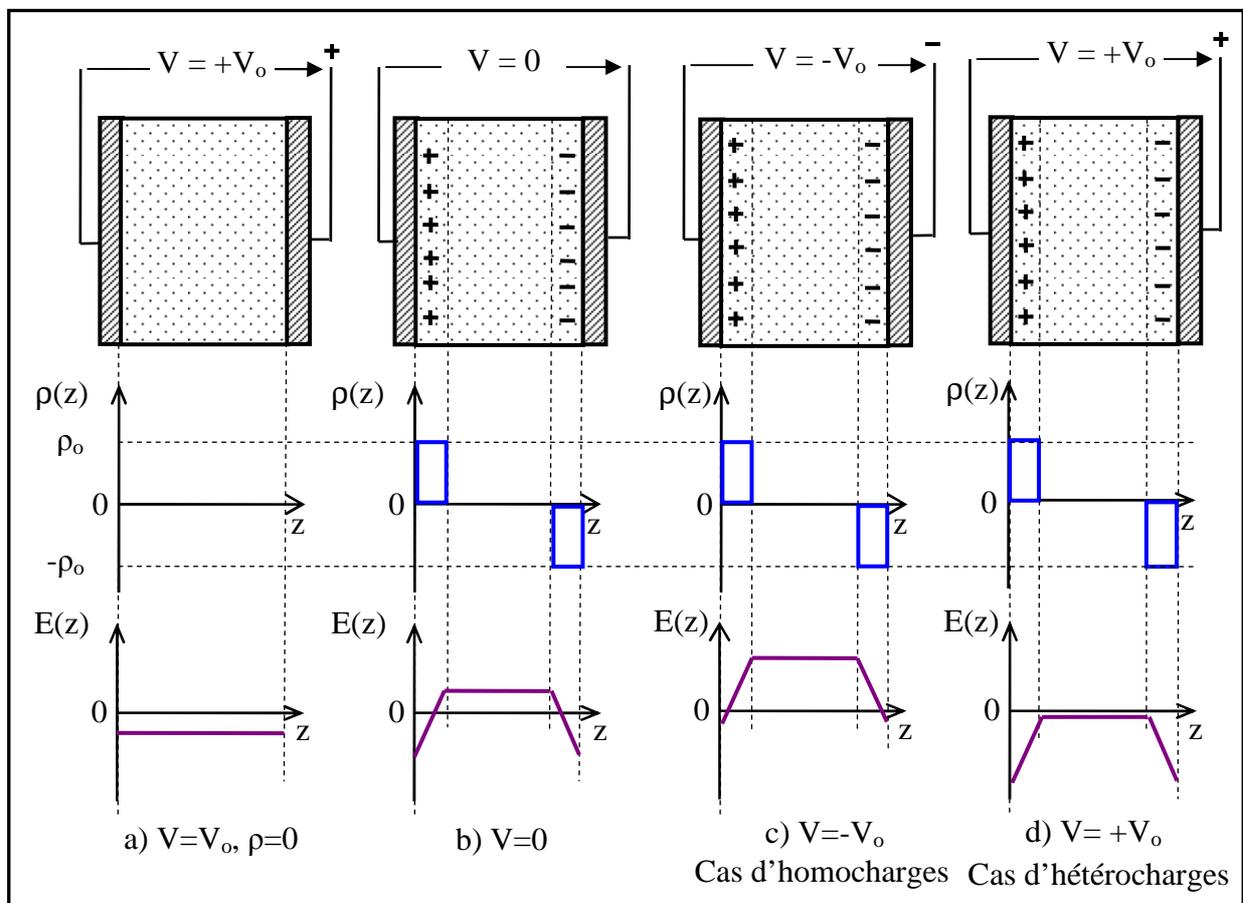


Figure 1- 3 : Charge d'espace et champ électrique [1.1]

La Figure 1- 3 illustre la modification du champ par la présence de charges dans un isolant.

En présence d'homocharges, le champ est renforcé dans le volume et atténué à l'interface. C'est l'inverse en présence d'hétérocharges.

Le champ électrique au voisinage des électrodes peut être renforcé de 5 à 8 fois par rapport au champ appliqué après application d'une tension continue [1.3]. Ces renforcements locaux du champ électrique peuvent être responsables de la dégradation rapide de l'isolant donnant lieu à des décharges partielles ou à des arborescences.

1.2. INJECTION DE CHARGES DANS LES POLYMERES SOUS TENSION CONTINUE

1.2.1. Injection de charges à l'interface métal/isolant : cas d'une interface parfaite

1.2.1.1. Hauteur de la barrière.

L'état des interfaces joue un rôle prépondérant dans l'injection de charges. La nature des matériaux constituant l'interface modifie les phénomènes d'injection étant donné que le travail de sortie de l'électron dépend du métal d'électrode. La présence d'impuretés, d'oxydes ou de liaisons pendantes aux interfaces peuvent se comporter comme des sites piègeurs de charges. Dans la suite de ce paragraphe nous allons négliger ces défauts d'interface et ne considérer que l'effet de la nature des matériaux d'interface. L'interface métal/isolant est considérée comme parfaite.

a. Pour l'injection d'électron

En l'absence de champ électrique, lors de la mise en contact de l'électrode métallique et du matériau isolant, selon la théorie des bandes [1.4-1.6], les niveaux de Fermi s'alignent. La Figure 1- 4 représente les niveaux énergétiques d'un électron près du contact métal/isolant parfait en l'absence d'un champ appliqué. Φ_m est le travail de sortie du métal qui représente la barrière de potentiel qu'un électron libre dans le métal doit franchir pour atteindre le niveau du vide. Après contact, les niveaux de Fermi du métal et de l'isolant sont alignés et la barrière de potentiel à franchir par l'électron est abaissée de l'affinité électronique de l'isolant χ . La nouvelle barrière de potentiel à franchir pour un électron du métal est $\Phi_o = \Phi_m - \chi$. Pour le polyéthylène, certains auteurs annoncent une affinité électronique négative [1.7]. C'est-à-dire, après contact avec le polyéthylène, la barrière de potentiel augmente.

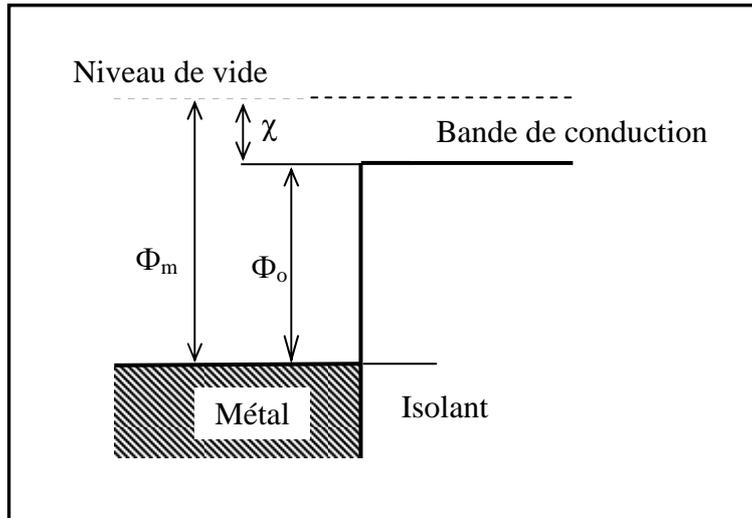


Figure 1- 4 : Diagramme d'énergie au contact métal - isolant

La présence du champ électrique renforce l'abaissement de cette barrière de potentiel. La force image représente l'interaction entre une charge et un plan métallique supposé infini. L'effet image et le potentiel induit par la charge image sont représentés sur la Figure 1- 5.

S'il y a un électron, de charge $-e$, à une distance z de l'électrode, dans l'isolant, la force d'interaction est déterminée par la loi de Coulomb :

$$F(z) = \frac{-e^2}{4\pi\epsilon(2z)^2} \quad \text{équation 1- 5}$$

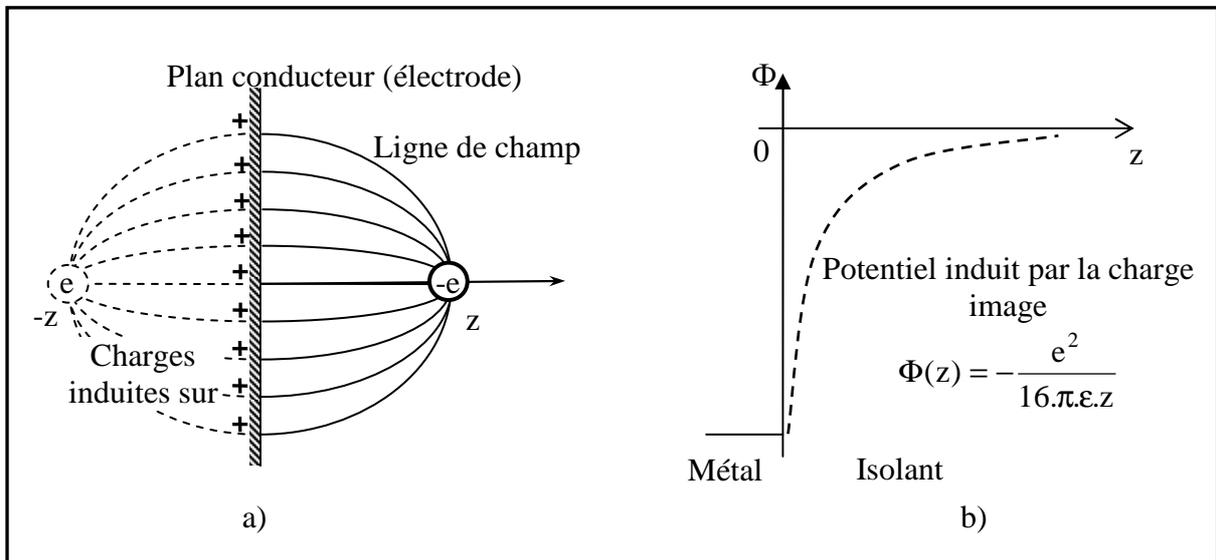


Figure 1- 5 : Illustration de l'interaction entre la charge injectée et l'électrode. (a) Ligne de champ entre la charge injectée et les charges induites sur le plan conducteur de l'électrode. (b) Diagramme énergétique illustrant la forme de la barrière de potentiel correspondante.

L'énergie potentielle d'un électron hors champ, où seule la charge image intervient, est déterminée par la relation suivante :

$$\Phi_{hc}(z) = \int_z^{\infty} F(z) dz = \int_z^{\infty} \frac{-e^2}{4\pi\epsilon(2z)^2} dz = -\frac{e^2}{16\pi\epsilon} \cdot \frac{1}{z} \quad \text{équation 1- 6}$$

L'énergie potentielle d'un électron sous champ électrique E est donc décrite par :

$$\Phi_{sc}(z) = \Phi_{hc}(z) - e.E.z \quad \text{équation 1- 7}$$

Cette énergie potentielle est maximale à $z=z_{max}$ pour $\frac{d\Phi_{sc}(z)}{dz} = 0$ ce qui donne :

$$z_{max} = \frac{1}{4} \sqrt{\frac{e}{\pi.\epsilon.E}} \quad \text{équation 1- 8}$$

L'équation 1- 7 pour $z=z_{max}$ s'écrit :

$$\Phi_{sc}(z_{max}) = -\frac{e\sqrt{e.E}}{2\sqrt{\pi.\epsilon}} \quad \text{équation 1- 9}$$

La hauteur de barrière Φ_o est donc abaissée de la quantité $\frac{e}{2} \sqrt{\frac{eE}{\pi\epsilon}}$

La hauteur effective Φ_{eff} de la barrière de potentiel à franchir pour l'électron est donc:

$$\Phi_{eff} = \Phi_o - \frac{e}{2} \sqrt{\frac{eE}{\pi\epsilon}} \quad \text{équation 1- 10}$$

La Figure 1- 6 représente l'abaissement de la barrière de potentiel d'un contact métal/isolant sous l'action d'un champ en tenant compte de la force image.

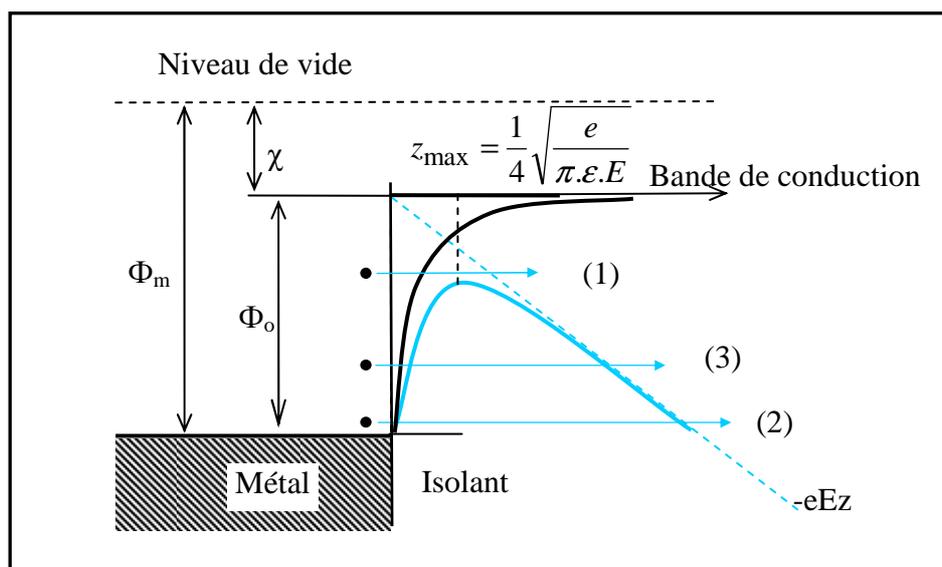


Figure 1- 6 : Abaissement de la barrière de potentiel d'un contact métal/isolant sous l'action du champ électrique en tenant compte de la force image. Illustration des mécanismes d'injection de charges : (1) injection Schottky, (2) injection par effet tunnel, (3) injection tunnel assisté thermiquement ou effet Fowler Nordheim

b. Pour l'injection de trou

Le modèle de l'injection des trous est présenté sur la Figure 1- 7. La hauteur de la barrière de potentiel des trous est donnée par:

$$\Phi_t = E_g + \chi - \Phi_m \quad \text{équation 1- 11}$$

Où : Φ_t : Hauteur de la barrière de potentiel pour les trous (eV).

E_g : Energie d'ionisation du polymère (eV).

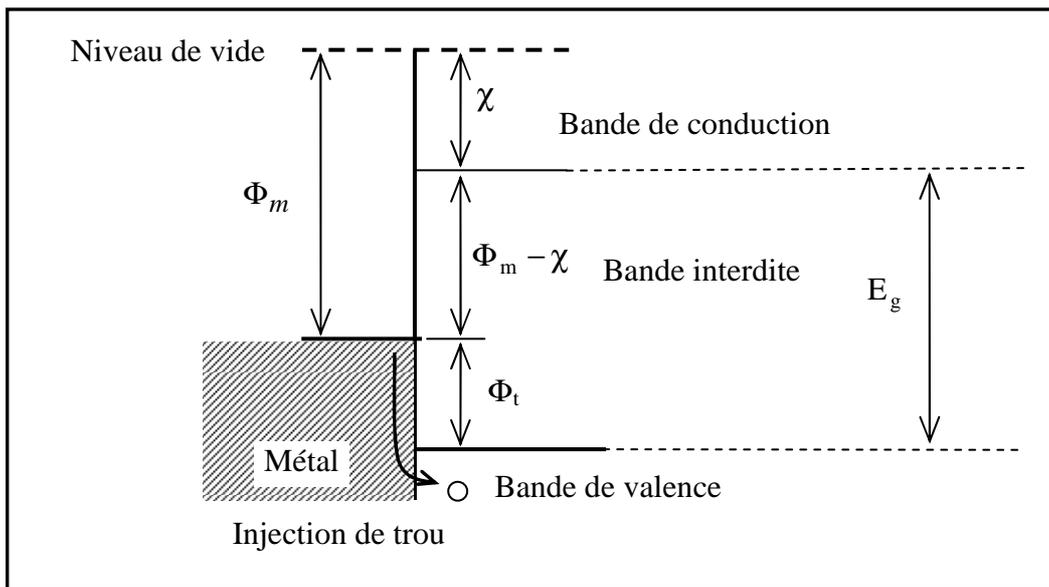


Figure 1- 7 : Diagramme en énergie du contact métal/polymère sans état de surface

1.2.1.2. Contacts aux interfaces

J.J. O'Dwyer [1.8] a rappelé qu'il existe deux types de contacts aux niveaux des interfaces : les contacts ohmiques et les contacts bloquants.

a. Contacts ohmiques

Un contact ohmique, respectivement à la cathode et à l'anode, est défini par :

$E_{\text{cathode}} = 0$ (sans tenir compte de l'émission d'électron à la cathode).

$E_{\text{anode}} = 0$ (sans tenir compte de l'émission de trous à l'anode).

Les contacts ohmiques apparaissent soit dans le cas où l'injection se fait sans barrière de potentiel à franchir, soit dans le cas de charges générées à l'interface lors de l'irradiation de l'échantillon.

b. Contacts bloquants

Un contact bloquant, respectivement à la cathode et à l'anode, est défini par les courants :

$$I_{n_cathode} = 0 \text{ (sans tenir compte du champ à la cathode).}$$

$$I_{p_anode} = 0 \text{ (sans tenir compte du champ à l'anode).}$$

Ces conditions correspondent au cas où les barrières de potentiel métal/isolant ne peuvent être franchies.

Les deux types des contacts décrits précédents n'ont pas été identifiés fréquemment en pratique. En effet, l'injection de charges dépend dans la majorité des cas du champ d'interface. Dans ces cas, les courants d'injection respectivement à la cathode et à l'anode s'écrivent :

$$I_{n_cathode} = f_n(E_{cathode}) \text{ pour l'injection des électrons à la cathode}$$

$$I_{p_anode} = f_p(E_{anode}) \text{ pour l'injection des trous à l'anode.}$$

f_p et f_n correspondent à des fonctions.

Pour l'injection des électrons à la cathode, il y a deux mécanismes qui ont été plus particulièrement étudiés : l'effet Schottky et l'effet tunnel.

1.2.1.3. Effet Schottky

L'injection Schottky est l'émission d'électrons à partir d'un métal (cathode) vers la bande de conduction d'un matériau. L'électron doit acquérir suffisamment d'énergie pour franchir la barrière de potentiel qui existe à l'interface métal-isolant.

La densité de courant générée par effet Schottky obéit à l'équation :

$$J = A_{R-D} T^2 \exp\left(-\frac{\Phi_o - \beta_s \sqrt{E_{cathode}}}{kT}\right) \quad \text{équation 1- 12}$$

A_{R-D} : Constante de Richardson-Dushman pour l'émission thermoélectrique,

$$A_{R-D} = \frac{4\pi e m^* k_B^2}{h^3} = 12.10^5 (A.m^{-2} K^{-2}) \text{ si l'environnement de l'électron n'intervient pas.}$$

h : Constante de Planck.

k_B : Constante de Boltzmann.

m^* : Masse effective de l'électron ($m^* = m_e$ si l'environnement de l'électron n'intervient pas).

e : Charge électronique.

Φ_o : Hauteur de la barrière de potentiel.

β_s : constante Schottky déterminé par la relation $\beta_s = \sqrt{\frac{e^3}{4\pi\epsilon}}$

E_{cathode} : Champ électrique à la cathode.

Cette loi est généralement vérifiée par la dépendance linéaire de la fonction logarithmique de la densité du courant J en fonction de la racine carrée du champ à la cathode. Le courant d'injection Schottky est très fortement dépendant de la température et n'intervient que pour les champs supérieurs à $100 \text{ kV}\cdot\text{mm}^{-1}$ [1.1].

La détermination du champ à la cathode est difficile en raison de la distorsion de champ produite par les charges d'espace. Taylor et Lewis [1.9] ont proposé une théorie plus complexe en se basant sur la théorie de Schottky. Ils ont tenu compte de l'influence des charges d'espace à la cathode en prenant en compte la force image induite sur l'électrode. Le potentiel d'image s'écrit sous la forme :

$$\Phi(z) = -\frac{K.e}{(a.z)^n} \quad \text{équation 1- 13}$$

K est une constante qui tient compte de l'influence des charges et de la permittivité diélectrique.

a et n sont des constantes positives ajustables.

La densité du courant devient alors :

$$J = A_{R-D} \cdot T^2 \cdot \exp\left(-\frac{\Phi_o - \beta^* e E^{\frac{n}{n+1}}}{kT}\right) \quad \text{équation 1- 14}$$

$$\text{Avec } \beta^* = \left(\frac{K}{a^n}\right)^{\frac{1}{n+1}} \left[\frac{n}{n+1} + n \frac{1}{n+1} \right] \quad \text{équation 1- 15}$$

Taylor et Lewis ont trouvé pour n les valeurs 0,15 et 0,45 pour le PET et le PE avec des électrodes en aluminium [1.9].

1.2.1.4. Effet tunnel

L'émission par effet tunnel de la surface d'un métal dans le vide a été décrite par Fowler et Nordheim en 1928 [1.10]. Ce phénomène est lié au caractère ondulatoire de l'électron qui a la possibilité de passer à travers une barrière énergétique sans avoir une énergie supérieure à celle-ci si sa longueur d'onde associée est plus grande que l'épaisseur de

barrière. C'est un effet purement quantique. Plus le champ appliqué est élevé, plus cet effet est favorisé (Figure 1- 8).

Avec le modèle le plus simple (barrière triangulaire, sans effet image) et à la température de 0 K la densité de courant Fowler - Nordheim obéit à [1.4, 1.8] :

$$J = AE^2 \cdot \exp\left(-\frac{B}{E}\right) \quad \text{équation 1- 16}$$

Où :

$$A = \frac{e^3}{8\pi\hbar\Phi_0} \quad \text{et} \quad B = \frac{4 \cdot (2m^*)^{1/2} \cdot \Phi_0^{3/2}}{3\hbar e}$$

La représentation en échelle log-log de J/E^2 permet de contrôler si le mécanisme d'injection peut être lié à l'effet tunnel.

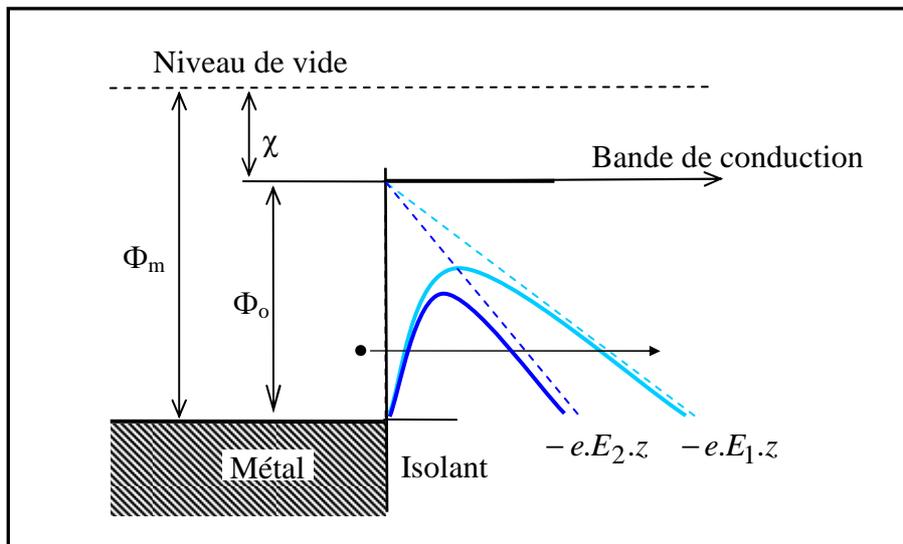


Figure 1- 8 : Plus le champ est élevé, plus l'effet tunnel est favorisé ($E_2 > E_1$)

L'effet tunnel ne se manifeste que lorsque le champ électrique dépasse des valeurs de l'ordre de 100 à 1000 $\text{kV}\cdot\text{mm}^{-1}$. En dessous de ces valeurs, le courant d'injection tunnel est négligeable [1.1].

Les effets Schottky et tunnel sont identifiés plutôt dans les matériaux dédiés à la microélectronique où les couches isolantes sont minces, typiquement au plus de l'ordre du micromètre.

1.2.2. Injection des charges aux interfaces avec présence d'états de surface

Par construction, un polymère possède dans la majorité des cas des états de surface avec des impuretés chimiques (oxydation, adsorption de molécules suite à la rupture de chaînes ...) et des défauts physiques. Ces états de surface qui correspondent à des pièges pour les porteurs

de charges positifs ou négatifs sont susceptibles de modifier les phénomènes d'injection en fonction de leur niveau énergétique [1.11, 1.12].

La Figure 1- 9 illustre les différentes barrières de potentiels que les porteurs de charges doivent franchir en fonction de l'état de surface du polymère. L'influence du champ n'est pas prise en compte. Deux types d'états de surface sont envisagés, un état de surface favorisant l'injection de charges négatives (cas b, Figure 1- 9) et celui facilitant l'injection de charges positives (cas c, Figure 1- 9)[1.18].

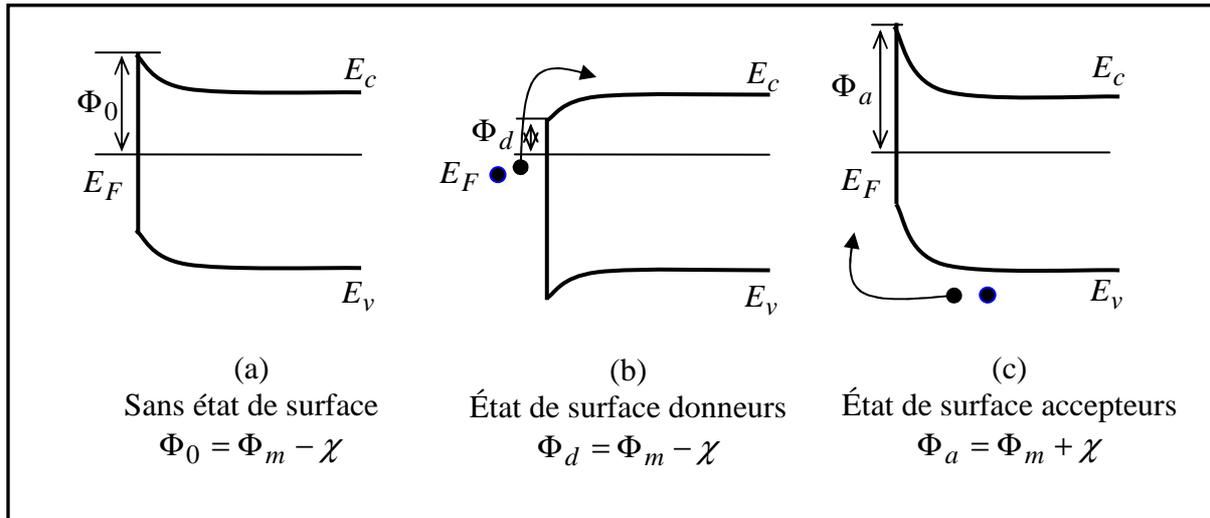


Figure 1- 9 : Comparaison de la barrière de potentiel dans le cas parfait et les cas avec des états de surface ; le rond sur les diagrammes représente les électrons. Le niveau inférieur et le niveau supérieur respectivement de la bande de conduction et de la bande de valence sont notés E_C et E_V .

Pour une interface parfaite, la barrière de potentiel Φ_0 est fixée uniquement par le travail de sortie du métal et l'affinité électronique de l'isolant $\Phi_0 = \Phi_m - \chi$. Lorsque des états de surface apparaissent, en fonction de leur nature, accepteur ou donneur, la barrière est abaissée ou augmentée. Cela peut expliquer que la nature du métal utilisé comme électrode n'a aucun effet dans certains cas. Ce sont les états de surface qui gouvernent l'injection plutôt que la barrière de potentiel intrinsèque au métal et à l'isolant parfait [1.18].

La Figure 1- 10 représente le diagramme énergétique de l'assemblage PET - électrode métallique en présence d'états de surface. Avant le contact, les états de surface de l'isolant sont remplis à une énergie Φ_{CO} en dessous du bas de la bande de conduction (Figure 1- 10 a). Lors du contact, si le travail de sortie de l'électrode métallique est inférieur à celui du PET les électrons du métal vont remplir les états de surface vides. Ces états de surface se situent à une énergie Φ_c au dessous de la bande de conduction. La densité des états de surface N_S dans la bande interdite peut être estimée par la formule [1.11] :

$$N_s = \frac{\epsilon_i}{d_{c-i} \cdot q} \frac{(\Phi_{is} - \Phi_m) - (\Phi_{co} - \Phi_c)}{\Phi_{co} - \Phi_c} \quad \text{équation 1- 17}$$

Où :

N_s : Densité des états de surfaces dans la bande interdite ($m^{-2} \cdot eV^{-1}$).

ϵ_i : Constante diélectrique de la couche d'interface.

d_{c-i} : Epaisseur de l'interface (m).

q : Charge (C).

Φ_{is} : Travail de sortie pour le polymère (eV).

Φ_m : Travail de sortie pour le métal (eV).

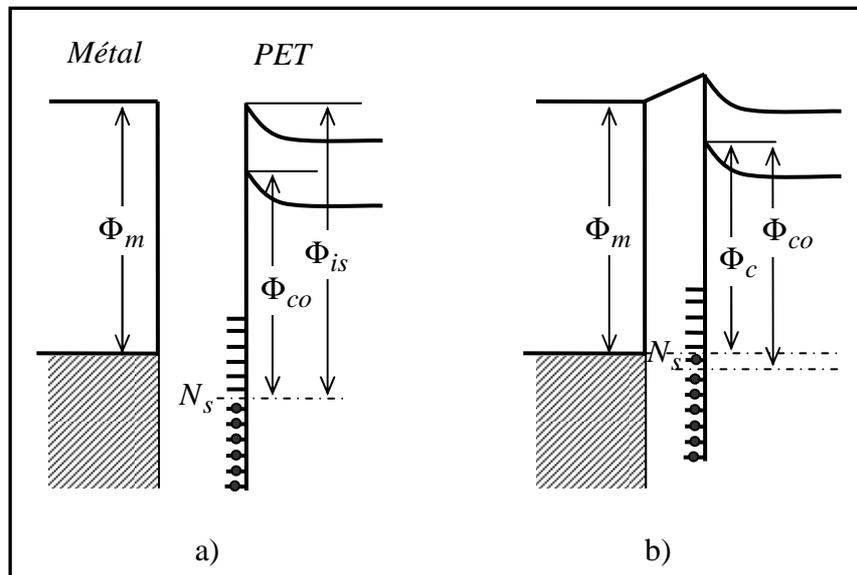


Figure 1 - 10 : Contact entre le PET présentant des états de surface et un métal. (a) Avant contact et (b) après contact [1.11]

La surface du polymère peut adsorber des molécules gazeuses, particulièrement l'oxygène. Ces molécules d'oxygène piègent facilement les électrons en raison de leur affinité électronique importante. Les phénomènes observés à l'interface métal-polymère en présence d'états de surface apparaissent également avec une interface polymère – gaz adsorbé (Figure 1- 11). Le nombre des états surfaciques peut être estimé par :

$$n_s = \frac{\epsilon}{q^2 d_{c-i}} (\Phi_c(\text{gaz}) - \Phi_c(\text{vid})) + \frac{N_s}{q} (\Phi_c(\text{gaz}) - \Phi_c(\text{vid})) \quad \text{équation 1- 18}$$

Où :

n_s : Nombre des états surfaciques dus à l'adsorption de molécules gazeuses ($m^{-2} \cdot eV^{-1}$).

$\Phi_c(vide)$: Barrière de potentiel sans l'adsorption de molécules gazeuses (eV)

$\Phi_c(gaz)$: Barrière de potentiel avec adsorption de molécules gazeuses (eV)

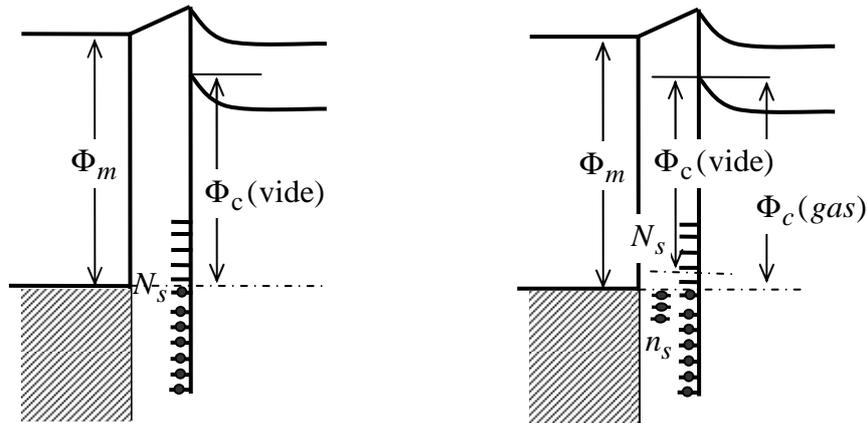


Figure 1- 11 : Effet de la présence des molécules gazeuses absorbées par la surface du polymère sur la barrière de potentiel

1.2.3. Influence d'une métallisation

Le contact métal polymère peut être réalisé à partir d'un contact direct électrode massive en métal - polymère ou par contact d'une électrode déposée par évaporation sur le polymère. Le type de contact peut modifier l'injection à l'interface métal/polymère.

Avec un contact direct, plusieurs phénomènes peuvent intervenir :

L'adsorption des molécules de gaz (par exemple l'oxygène) à la surface du polymère. Les sites d'adsorption jouent le rôle de sites piègeur et renforcent l'injection des charges [1.12].

Les microcavités à l'interface polymère-électrode massive génèrent des états de surface qui agissent sur l'injection [1.13-1.15].

Les micro-décharges susceptibles d'apparaître à l'interface électrode-polymère dans la couche de gaz agissent comme sources de charges.

L'évolution des distributions de charges dans le M-PP (polypropylène polymérisé en utilisant du métallocène comme catalyseur) en fonction du type d'électrodes utilisées (contact direct ou électrodes évaporées) est donnée sur la Figure 1- 12. Il apparaît clairement sur les distributions que l'injection est favorisée lorsque les électrodes ne sont pas métallisées.

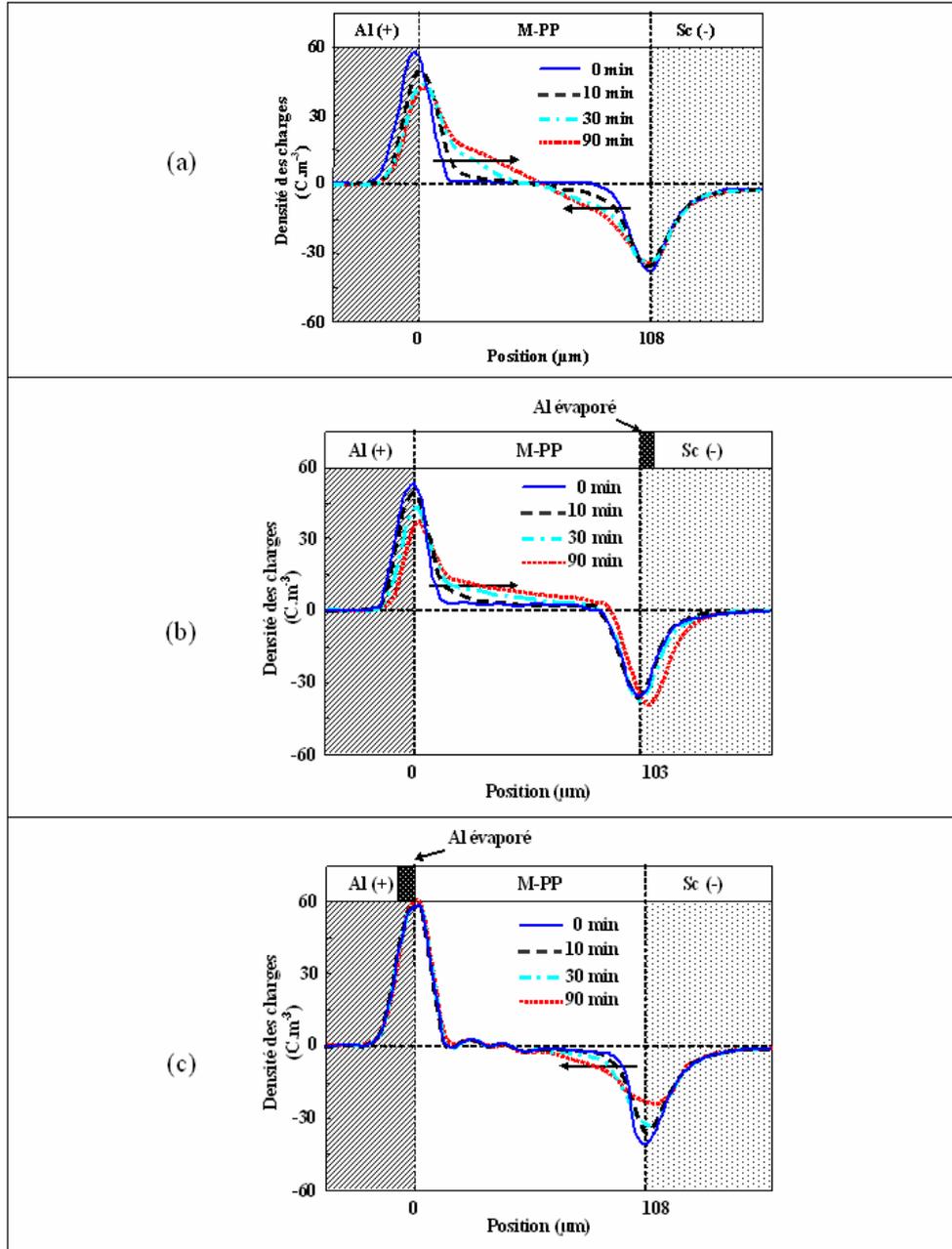


Figure 1- 12 : Distribution des charges d'espace obtenue par les mesures PEA dans (a) +Al/M-PP/-SC, (b) +Al/M-PP/Al évap/SC et (c) +Al/Al évap/M-PP au champ 0,5 MV/cm, 40°C ; SC : Semiconducteur [1.12].

1.2.4. Influence de la nature de la métallisation.

L'injection à l'interface métal/polymère dépend théoriquement du travail de sortie du métal et de l'affinité électronique du polymère. L'injection de charges dans le matériau est susceptible de changer en fonction de la nature du métal choisi comme électrode. En effet la barrière de potentiel au niveau de l'interface électrode isolant augmente donc avec le travail

de sortie du métal. Il existe plusieurs études de l'influence des métaux d'électrode sur l'injection des charges : type des charges injectées (électron ou trou) et quantité des charges.

1.2.4.1. Polyéthylène naphthalate (PEN)

Kojima et al [1.16] à partir de mesures de courants de conduction ont mis en évidence sur un film de PEN de 12 μm métallisé avec de l'aluminium et de l'or, pour des champs continus compris entre 10 à 100 kV/mm, que le courant de conduction est contrôlé par l'injection des électrons et que celle-ci est plus importante avec des électrodes en aluminium (Figure 1- 13).

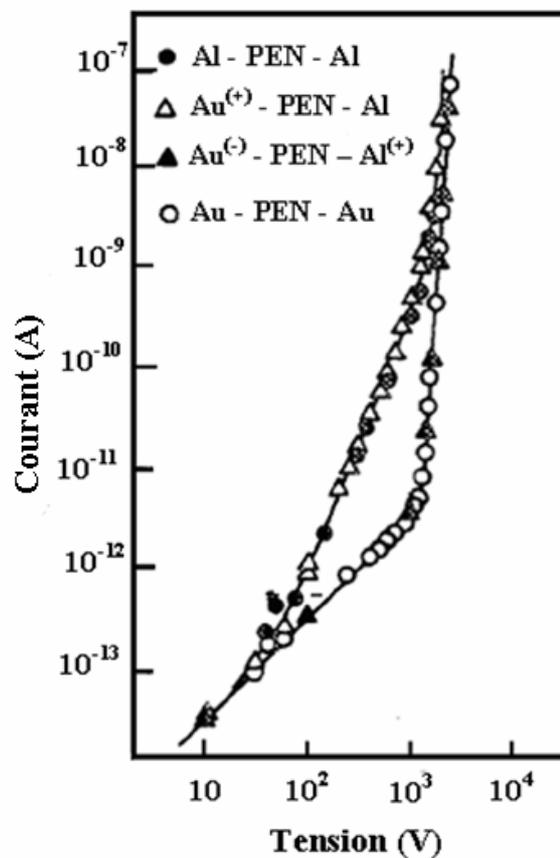


Figure 1- 13 : Courant en fonction la tension appliquée avec du PEN de 12 μm à 25°C[1.16]

1.2.4.2. Polyéthylène téréphthalate (PET)

Des mesures de courants de conduction sur un film de PET de 9 μm [1.17] ont montré également que l'injection était favorisée avec des électrodes en aluminium par rapport à celles en or (Figure 1- 14).

Takai et al [1.18] en étudiant les photo-courants sur un film de PET de 12 μm avec des électrodes de natures différentes ont montré que des cathodes en aluminium et en cuivre favorisaient l'injection des électrons dans le PET. La hauteur de la barrière de potentiel au contact Al/PET et Cu/PET est respectivement 2,83 et 2,90 eV (Figure 1- 15)

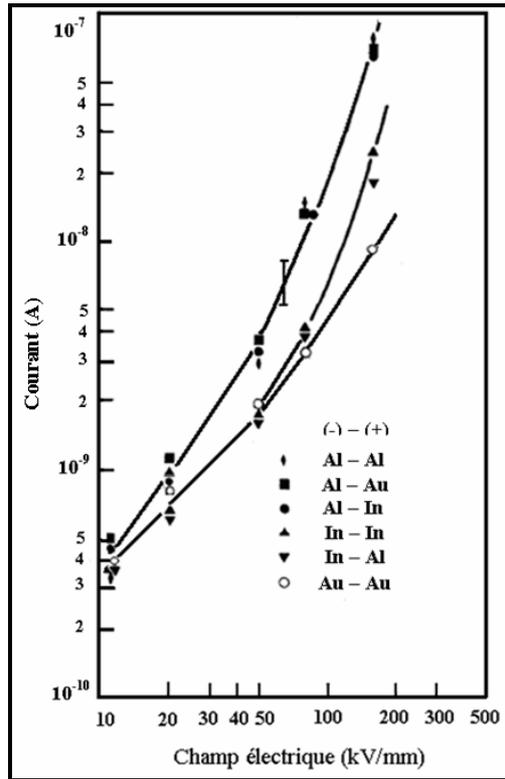


Figure 1- 14 : Courant d'absorption à 0,66 s en fonction du champ avec l'échantillon Melinex 442 (PET) de $9 \mu\text{m}$ avec la surface d'électrode $0,8 \text{ cm}^2$ à 100°C [1.17]

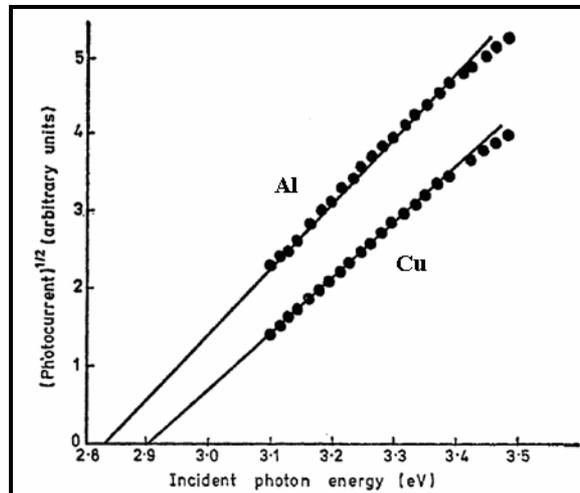


Figure 1- 15 : Caractéristiques pour l'injection à partir de la cathode Al et Cu [1.18]

D'autre part, dans [1.19], l'étude de photo-courants à partir d'une irradiation 300-475 nm sur un film de PET de $23 \mu\text{m}$ métallisé par évaporation avec de l'aluminium montre une injection de trous en accord avec les résultats de Comins et Wintle [1.20]. Par ailleurs, dans [1.17, 1.21] des mesures de courant thermo-stimulés et de dépolarisation par irradiation électronique sur du PET avec des électrodes en Al montre une double injection attribuée à des électrons et des trous ; par contre pour l'or, seule l'injection de trous est mise en évidence.

1.2.3.3. Polyéthylène (PE)

L'influence de la nature du métal d'électrodes a été étudiée par Mizutani et al [1.22] dans le PE sur la base de mesures de photo-courants avec des électrodes en aluminium et or sur un film PE de 12 μm . Ces auteurs ont indiqué qu'il n'y a que des charges négatives qui sont injectées dans le PE. Cependant, Y. Suzuoki et al en mesurant les charges d'espace dans un film PE de 100 μm métallisé avec des électrodes en Al et en Au à 60°C et sous 1,2 MV/cm pendant 80 minutes par la méthode LIPP [1.23] ont indiqué la dépendance de la nature du métal d'électrode sur le type de l'injection des charges. Avec les électrodes en Al, les électrons sont injectés dans le PE et avec les électrodes en Au, les charges injectées sont les trous. (Figure 1- 16)

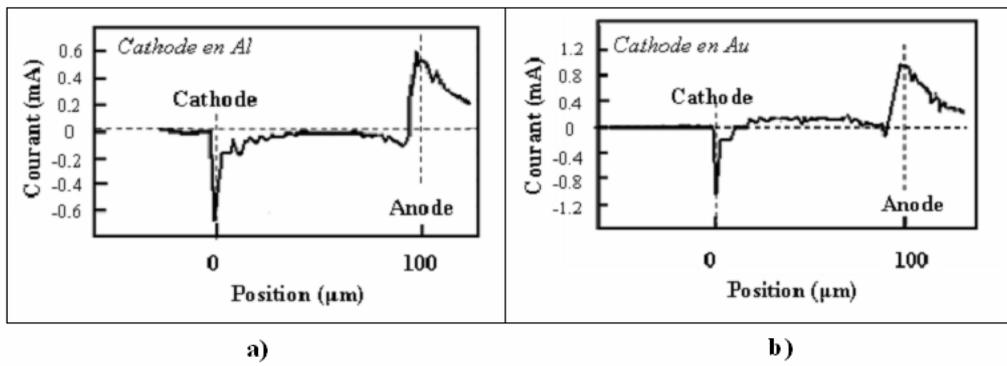


Figure 1- 16 : Mesures LIPP sous champs après 80 minutes de l'application de la tension avec les électrodes métallisés par Al (a) et Au (b) d'un film PE 100 μm , 60°C, 1.2 MV/cm

1.2.4.4. Polyéthylène à base densité (PEBD)

L'injection des trous est plus importante avec une électrode en aluminium qu'en or (Figure 1- 17). Cette différence est attribuée à un travail de sortie de l'aluminium inférieur à celui de l'or.

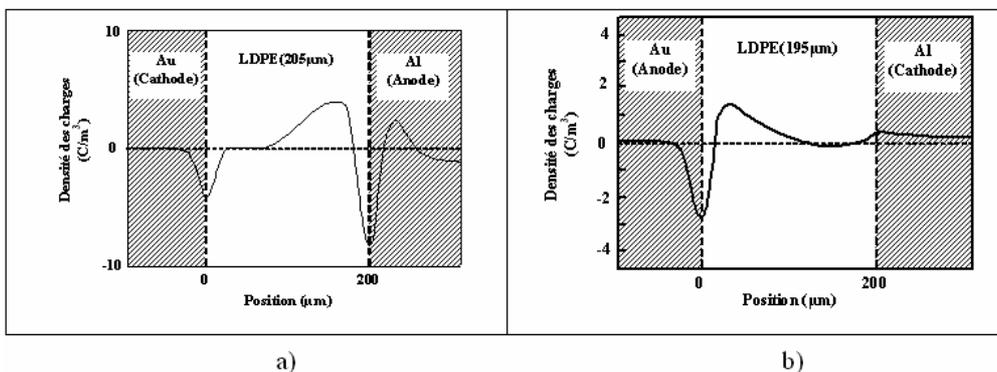


Figure 1- 17 : Distribution des charges d'espace dans la configuration (a) Au(-)/PEBD/Al(+) et (b) Al(-)/PEBD/Au(+) dans la condition du court-circuit après la polarisation par la tension 10kV avec l'épaisseur du film de PEBD 200 μm [1.30]

La Figure 1- 18 représente la densité du courant en fonction du champ électrique avec les différentes électrodes métallisées [1.24]. Il apparaît que la hiérarchisation des métaux varie avec le niveau de champ appliqué. L'aluminium possède le travail de sortie le plus faible mais son courant de conduction n'est jamais le plus grand. Sous champ électrique supérieur à 30 kV.mm⁻¹, des charges négatives sont injectées avec les électrodes en aluminium et en or, tandis que des charges positives et négatives sont injectées à la fois avec les électrodes en indium et argent [1.24].

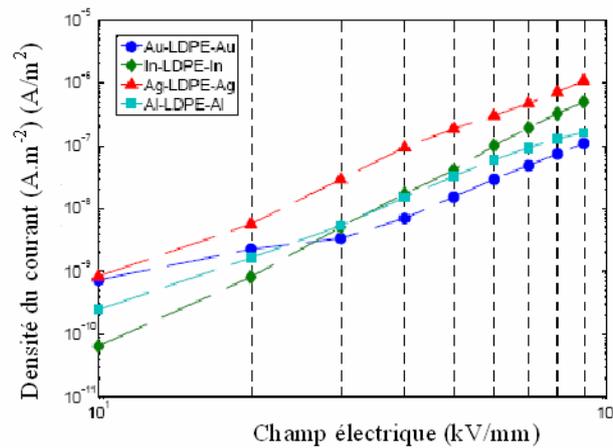


Figure 1- 18 : Densité du courant en fonction du champ électrique continu dans PEBD avec les différentes électrodes métallisées

1.2.4.5. Autres polymères.

Des mesures de photo-courant sur d'autres polymères (poly (2-chloro-p-xylylene) (PCPX)[1.25] et poly (p-xylylene) (PPX)[1.26]) soulignent également l'influence des métaux d'électrodes (cuivre, or, argent, étain, plomb, aluminium) sur l'injection des trous. (Figure 1-19).

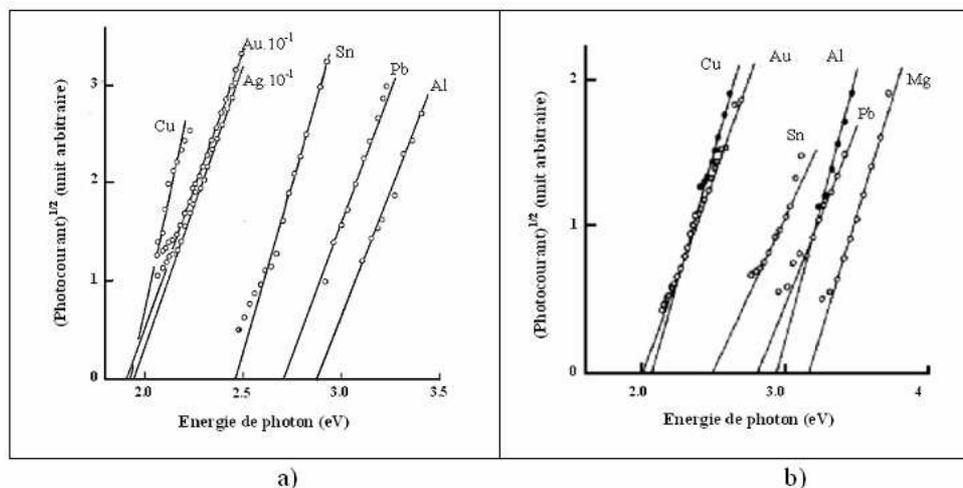


Figure 1- 19 : Caractéristique Fowler des photo-courants avec différentes anodes, cathode en Au transparent dans tous les cas ; 0,83MV.cm⁻¹ a) dans PCPX [1.25] ; b) dans PPX [1.26]

Il apparaît une tendance à l'augmentation de la barrière de potentiel avec la diminution du travail de sortie, ce qui est conforme à la théorie pour des trous, comme la Figure 1- 20.

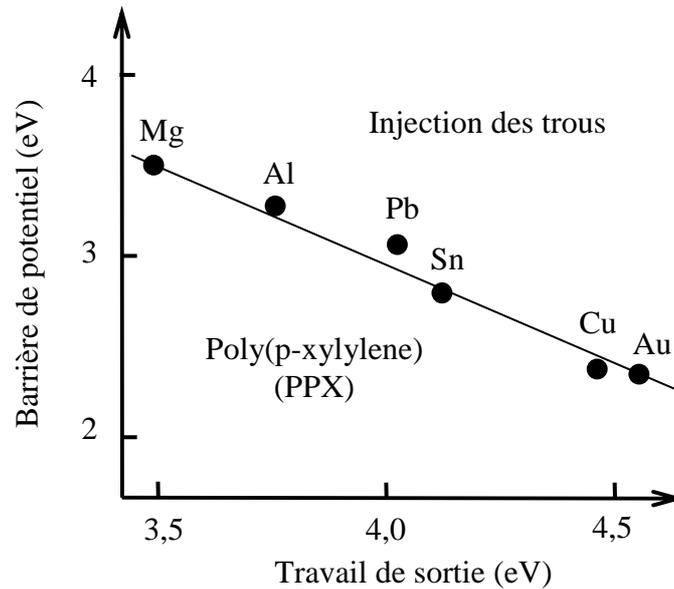


Figure 1- 20 : Barrière de potentiel avec différents métaux [1.26].

Pour le poly(N-Vinylcarbazole) (PVK) Reucroft et Ghosh [1.27] ont étudié l'influence des métaux utilisées comme les électrodes sur l'injection des charges par les mesures du photo-courant. Ces auteurs ont indiqué que le photo-courant est contrôlé par les trous et l'injection des trous n'apparaît que lorsque le travail de sortie des métaux est supérieur à 3,8 eV. L'injection des trous ne peut pas être obtenue à la cathode et si le travail de sortie est inférieur à ce seuil.

K.Kaneco et al [1.28, 1.29] ont étudié l'influence de la nature des électrodes sur l'injection des charges dans les polymides avec les mesures des charges d'espace par la méthode PEA. Ils ont indiqué que sous le champ électrique 50 MV/m (50 kV/mm) à la température ambiante, il n'y a pas d'influence du métal sur l'injection des charges. Les homocharges positives et négatives sont observées aux électrodes correspondantes.

1.2.4.6. Conclusions

A partir de cette étude bibliographique sur l'effet de la nature des électrodes, nous pouvons donner les conclusions suivantes :

Le type de charges (électron ou trou) injectées dépend des métaux utilisés comme électrode. Parfois, pour un polymère et un métal donné, les types de charges injectées ne sont pas identiques pour tous les auteurs. Le Tableau 1- 1 présente une synthèse des types des charges injectées avec certains polymères

Tableau 1- 1

Electrode \ Polymère	Au	Ag	Al	In	Cu	Sn
PEN	électron [1.16]	-	électron [1.16]	-	-	-
PET	-	-	Electron [1.18]	-	Electron [1.18]	-
	Trou [1.17, 1. 21]	-	Trou [1.19, 1.20]	-	-	-
	-	-	électron et trou [1.17, 1.21]	-	-	-
Poly(N-Vinylcarbazole) (PVK)	Trou avec les métaux ayant des travaux de sortie supérieurs 3,8 eV					
Poly (p-xylylene) (PPX)	Trou [1.26]	Trou [1.26]	Trou [1.26]	Trou [1.26]	Trou [1.26]	Trou [1.26]
Poly (2-chloro-p-xylylene) (PCXP)	Trou [1.25]	Trou [1.25]	Trou [1.25]	Trou [1.25]	Trou [1.25]	Trou [1.25]
Polyéthylène (PE)	Electron [1.22, 1.23]	-	Electron [1.22, 1.23]	-	-	-
	Trou [1.23]	-	-	-	-	-
Polyéthylène à base densité (PEBD)	Electron [1.24]		Electron [1.24]	-	-	-
	électron et trou [1.30]	électron et trou [1.24]	électron et trou [1.30]	électron et trou [1.24]	-	-

A faible champ électrique, l'influence de la nature des électrodes sur l'injection des charges dans les polymères n'est pas significative. Pour les polyimides, aucune influence de la nature des électrodes n'est mise en évidence à température ambiante même pour des champs de 50 kV/mm.

1.2.5. Influence de l'état de surface

1.2.5.1. Influence de la rugosité de la surface du polymère

La surface du polymère n'est pas parfaite. Des changements de sa rugosité conduisent à des modifications du potentiel induit par les charges images [1.31, 1.32]. Des renforcements du champ local par rapport au champ moyen appliqué apparaissent à l'interface polymère métallisation. L'injection de charges est donc favorisée lorsque l'interface présente une rugosité.

Le calcul du renforcement du champ local dépend de la forme géométrique du relief présent à la surface du polymère. Pour un relief en forme de demi-ellipsoïde (Figure 1- 21), le facteur de renforcement du champ est [1.33] :

$$\beta = \frac{4\pi\sigma_0}{E} = \frac{c^3}{ab^2} \cdot \frac{1}{\left[\ln \frac{c+a}{b} - \frac{c}{a} \right]} \quad \text{équation 1- 19}$$

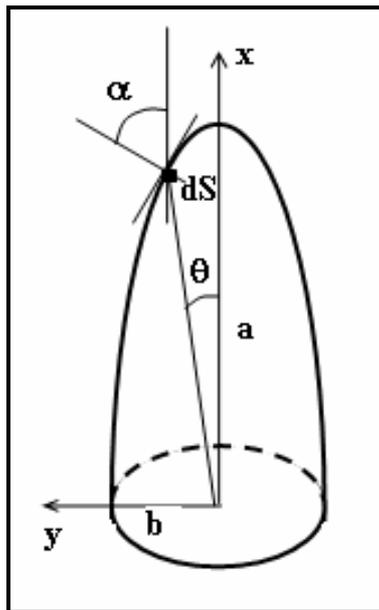


Figure 1- 21 : Forme de demi-ellipsoïde.

avec $c^2 = a^2 - b^2$

Si $\frac{a}{b} \gg 1$, alors $\frac{c}{a} \approx 1$, l'équation devient :

$$\beta = \frac{a^2}{b^2} \cdot \frac{1}{\left[\ln \frac{2a}{b} - 1 \right]} \quad \text{équation 1- 20}$$

Le champ à l'extrémité du pic est renforcé. Il est $\frac{a^2}{b^2} \cdot \frac{1}{\left[\ln \frac{2.a}{b} - 1 \right]}$ fois plus grand que le

champ appliqué. Si a est 10 fois plus grand que b , le champ renforcé est environ 50 fois plus grand que le champ appliqué. Ce calcul ne prend pas en compte l'influence des interactions entre demi-ellipsoïdes voisines. Taleb et al [1.24] ont indiqué que le renforcement du champ local peut être d'environ 6. Les calculs détaillés du champ local sur une interface rugueuse sont donnés dans l'article [1.34].

1.2.5.2. Influences du traitement de surface par rayonnement ultraviolet (UV)

Les UV participent souvent à la dégradation des polymères isolants. Des chaînes moléculaires sont rompues et jouent alors le rôle de centres piègeurs. Des produits (ions) issus de la décomposition du polymère sont susceptibles d'apparaître. Ils se comportent comme source de charges. Cette modification de la structure du polymère agit donc directement sur l'injection de charges. Des résultats sont donnés dans [1.35] concernant le comportement du PET après irradiation UV. Des charges négatives apparaissent après traitement. Pour d'autres polymères traités par UV il a été reporté également des changements de comportement [1.36].

1.2.5.3. Influence de l'oxydation

La dégradation des polymères (UV, décharges partielles) favorise généralement l'oxydation qui se traduit fréquemment par la formation de groupes carbonyles C=O [1.37]. Ces dipôles agissent comme sites piègeurs. Ils modifient les caractéristiques de l'injection et la mobilité des charges [1.38]. La Figure 1- 22 représente l'injection des électrons via des états localisés représentant des sites piègeurs.

Le courant de conduction peut augmenter considérablement avec l'oxydation du polymère [1.40, 1.41] (Figure 1- 23). Des mesures de charges d'espace avant et après oxydation ont également mis en évidence des changements dans les distributions spatiales de charges (Figure 1- 24).

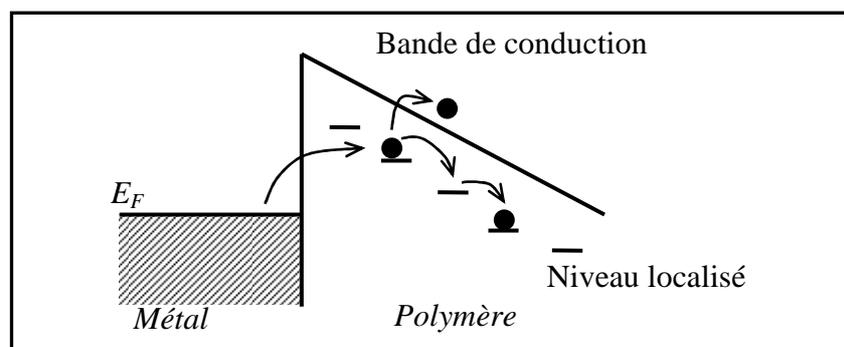


Figure 1- 22 : Injection des charges via les états surfaciques [1.39, 1.40]

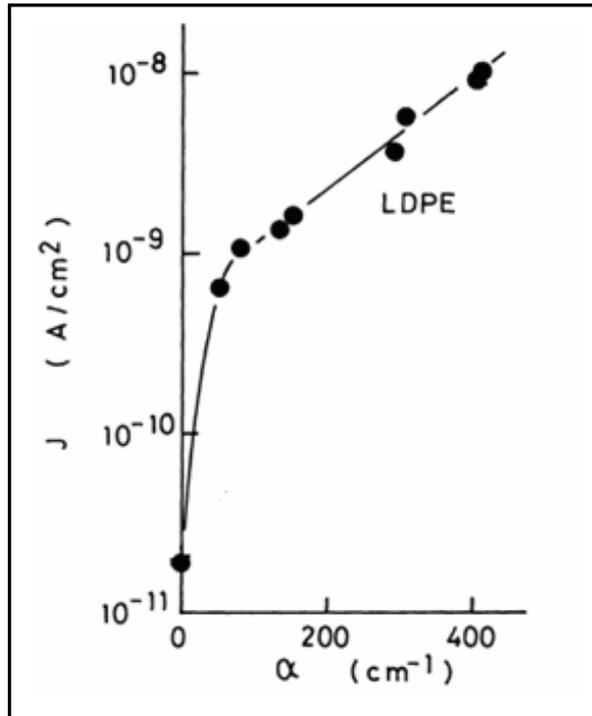


Figure 1- 23 : Caractéristique de la densité de courant J - α pour du PEBD (4.10^5 V.cm^{-1} ; 60°C) ; α est le coefficient d'absorption de l'infrarouge à 1715 cm^{-1} . [1.40, 1.41]

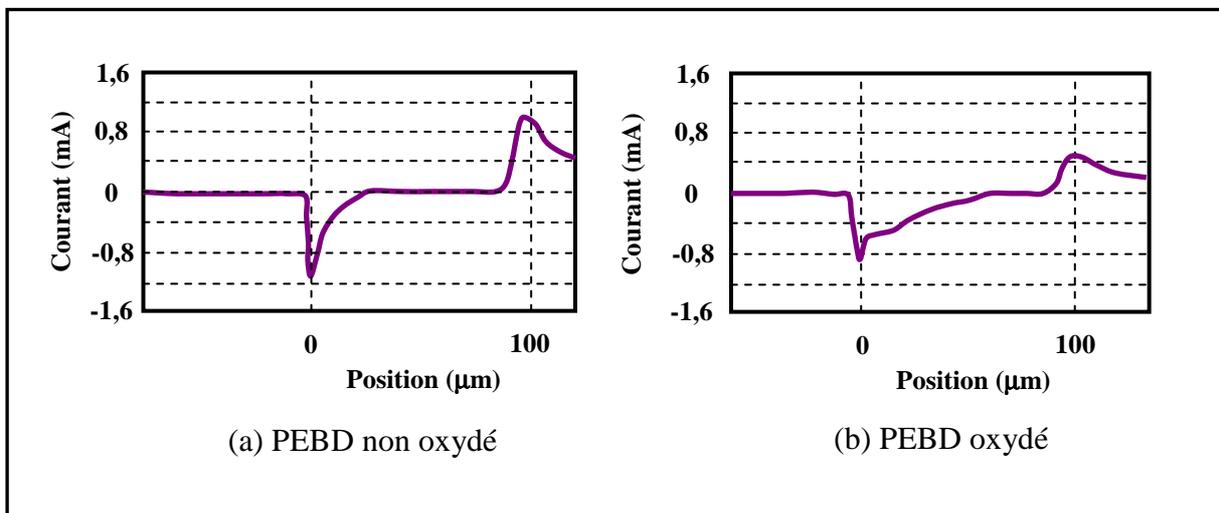


Figure 1- 24 : Distribution des charges d'espace dans le PEBD (a) et le PEBD oxydé (b) après 70 mn de polarisation sous un champ $0,8 \text{ MV.cm}^{-1}$ à 60°C [1.23].

1.3. INJECTION DES CHARGES SOUS TENSION ALTERNATIVE

De nombreuses études ont été entreprises pour étudier les distributions de charges dans les polymères sous tension continue. Beaucoup moins de résultats ont été publiés sur la réponse en alternatif. Cependant, des techniques de mesure de charges d'espace [1.42-1.54] ont été mises en œuvre pour évaluer en alternatif l'influence de la fréquence [1.46, 1.55-1.60], de l'angle de la phase [1.55-1.57,1.61], du champ électrique [1.48, 1.57, 1.62-1.68], de la

nature du matériau d'électrode [1.61, 1.62, 1.67, 1.69, 1.70] et le temps de vieillissement [1.57, 1.70-1.72] sur les distributions de charges dans les polymères. Néanmoins, les publications sur les distributions de charges en alternatifs ne sont pas nombreuses et concernent essentiellement les polyéthylènes réticulés (PER), basse densité (PEBD) et haute densité (PEHD), pour les applications aux câbles haute tension.

1.3.1. Modèle bipolaire

Le processus d'injection et le piégeage des charges sous tension alternative peuvent être décrits par un modèle bipolaire dans lequel les charges injectées dépendent du champ à l'interface électrode/isolant. Dans ce modèle, les électrons injectés pendant l'alternance négative de la tension sont piégés à des niveaux superficiels [1.73] et profonds [1.74]. Ils forment une petite zone de charges d'espace à l'interface métal isolant. Lors de l'alternance positive suivante, les électrons dans les pièges peu profonds, sous l'action du champ qui a changé de polarité sont extraits au niveau de l'électrode adjacente. Le champ devient simultanément suffisamment important pour injecter des trous dans le matériau. Une partie de ces trous injectés peut se recombiner avec des électrons encore piégés. Les trous restant sont piégés à des niveaux énergétiques plus ou moins profonds. Le processus d'injection, d'extraction et de recombinaison est illustré sur la Figure 1-25.

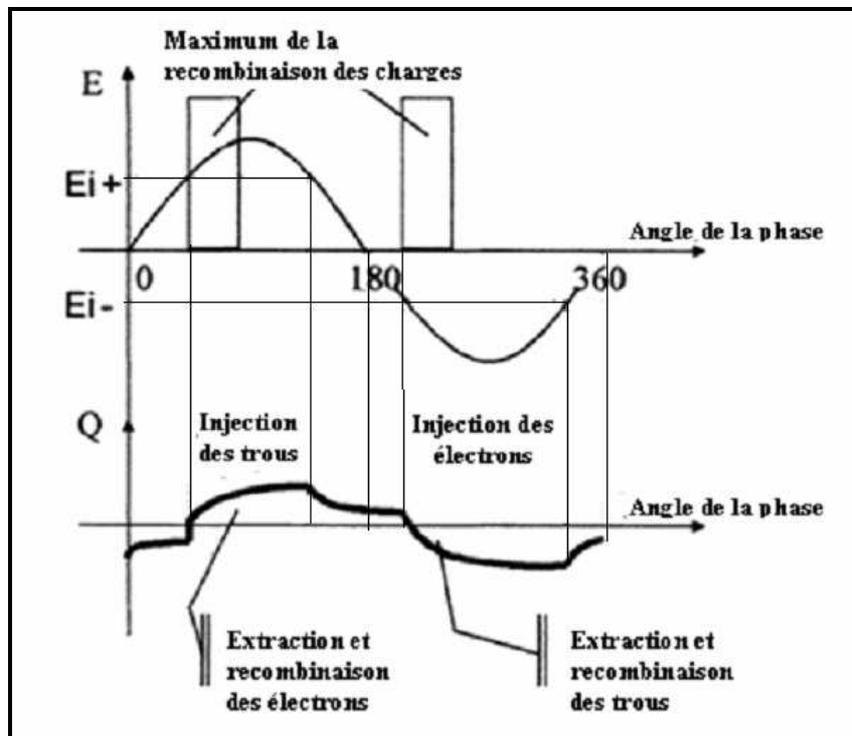


Figure 1- 25 : Processus de l'injection/recombinaison/extraction des charges dans une période de la tension alternative. E_{i+} et E_{i-} représentent respectivement le seuil de champ pour l'injection des charges positives et négatives [1.69].

Deux possibilités de recombinaison existent en théorie. La première concerne la neutralisation directe d'un électron de la bande de conduction avec un trou de la bande de valence. Ce processus s'accompagne généralement d'une émission radiative qui a une énergie égale à la largeur de la bande interdite. Ce type de recombinaison est peu probable dans les polymères en raison de leur largeur de bande interdite importante ($>8\text{eV}$). Le deuxième type de recombinaison, beaucoup plus probable, qui a déjà été décrit, concerne une recombinaison avec un site localisé. Dans le cas d'un électron, il peut éventuellement dans un deuxième temps se recombinaison avec un trou de la bande de conduction. Ces mécanismes d'injections et de recombinaisons sont illustrés sur la Figure 1- 26.

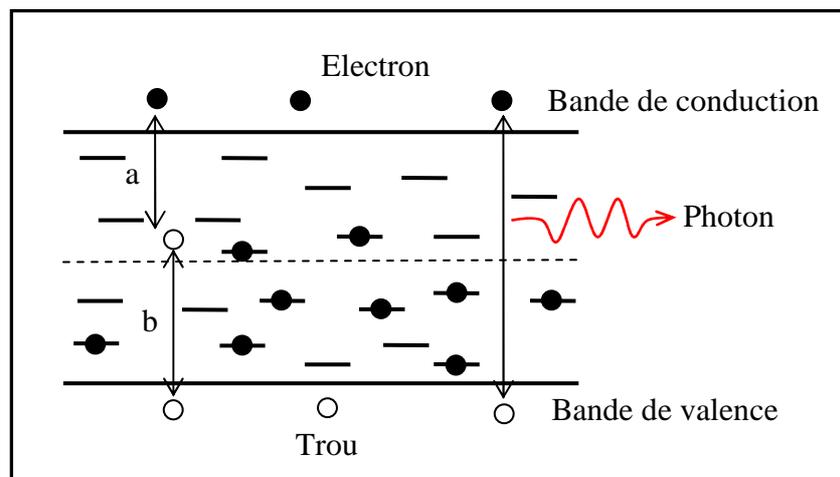


Figure 1- 26 : Différents types de recombinaison [1.75]

Dans [1.77] les auteurs soulignent que l'injection et le transport des charges positives et des charges négatives dans le polyéthylène ne sont pas symétriques. La présence des charges résiduelles lorsque la tension passe par zéro (en l'absence de champ électrique) contribue à une situation de déséquilibre de la distribution des charges positives et négatives [1.69].

1.3.2. Influence de la fréquence

L'injection des charges dans les polymères dépend de la fréquence de la tension appliquée. A très faible fréquence, l'injection des charges est similaire à celle obtenue en continue. Lorsque la fréquence augmente, la quantité des charges injectées diminue.

La Figure 1- 27 représente la charge totale dans le volume du PER sous $40\text{ kV}\cdot\text{mm}^{-1}$ à la température ambiante. Les charges positives et négatives accumulées pendant une période sont intégrées à partir des signaux de la mesure de charge d'espace par la méthode PEA [1.55, 1.56]. Lorsque la fréquence est supérieure à 0,1 Hz, le développement et l'accumulation de charge d'espace ne sont plus observés après une seule période.

Cette notion de seuil est mise en évidence également par Montanari et al [1.57] pour du PER (Figure 1- 28) en utilisant la technique PEA. Fanjeau et al [1.77, 1.78] en utilisant la

technique LIPP n'ont pas détecté de charges stockées dans le PER à 50 Hz pour un champ de 20 kV/mm lorsque l'échantillon est placé à 20°C pendant 4 heures.

Dans [1.53, 1.67, 1.71] on trouve également cette notion de seuil de fréquence avec quelquefois des résultats contradictoires concernant l'injection à 50 Hz. Cette discordance dans les conclusions n'est pas surprenante, l'origine des différents polyéthylènes étant différente. Ces matériaux, selon les fabricants peuvent avoir des comportements différents en raison de la nature et de la concentration des additifs utilisés.

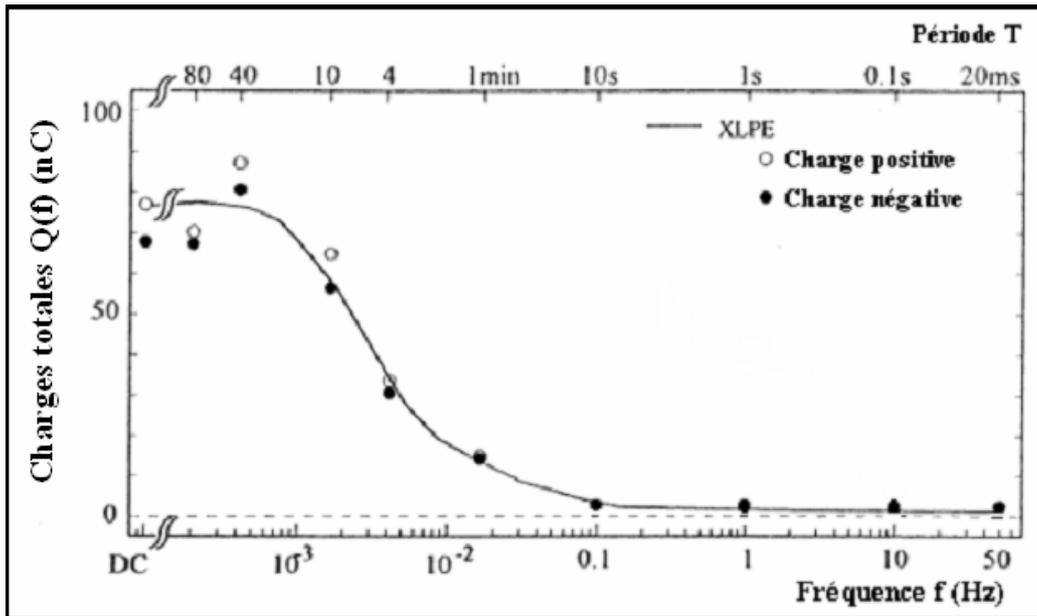


Figure 1- 27 : Evolution fréquentielle de la charge dans le PER sous 40 kV/mm à température ambiante. [1.56, 1.57].

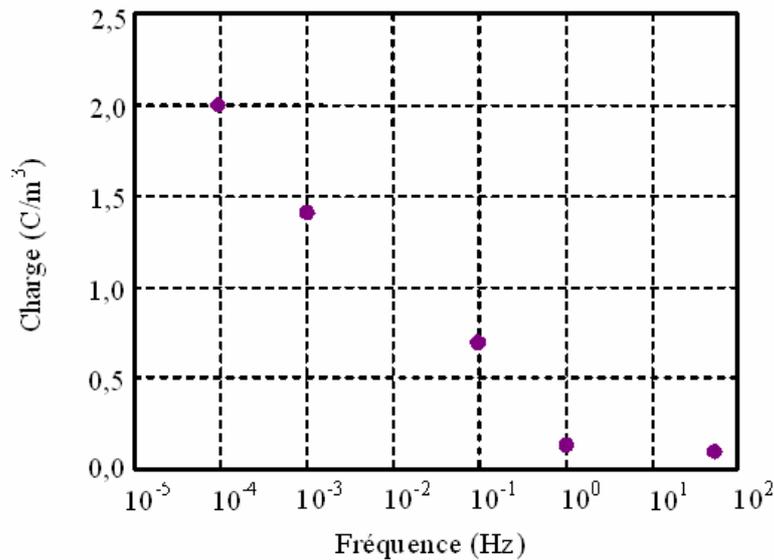


Figure 1- 28 : Evolution fréquentielle de la charge dans le PER sous 55 kV/mm à température ambiante [1.58]

Quels que soient les niveaux de seuil identifiés, il faut souligner que ce seuil dépend également de la sensibilité de la méthode utilisée. Ce seuil doit être corrélé à d'autres types de mesures pour conclure sur un seuil physique.

1.3.3. Influence du champ électrique

L'injection des charges dans le polymère dépend aussi du champ appliqué. Lorsque ce champ dépasse une valeur seuil d'injection, les charges sont injectées dans le polymère.

Laurent et al [1.57, 1.68], sur la base de mesures de charges d'espace effectuées avec la technique PEA et de mesures d'électroluminescence ont mis en évidence les champs seuils de trois types de polyéthylène. Les résultats obtenus à 50 Hz sont reportés dans le Tableau 1- 2. Les seuils obtenus avec les deux techniques sont similaires. Le seuil peut donc être considéré comme un seuil physique. Ces seuils sont relativement proches des seuils obtenus sous tension continue.

En désignant le « caractéristique X » [1.43, 1.48, 1.62, 1.63] qui représente la relation entre l'amplitude des pics d'entrée et de sortie en fonction du champ appliqué, Y.Ho et al [1.48] ont démontré que le champ seuil d'injection du polyéthylène réticulé vieilli sous tension alternative 30 kV_{cr}/mm pendant 24 heures est de 9 kV/mm.

Tableau 1- 2[1.68]

Matériau	Champ seuil efficace (kV _{eff} /mm) à 50 Hz		Champ seuil continu (kV/mm) obtenu par PEA
	Electroluminescence	PEA	
PEBD	8	9	10
PEHD	12	13	11
PER	11	11	12

1.3.4. Influence de la phase

Les mesures de charges d'espace en AC ne donnent pas les mêmes résultats selon la phase à laquelle la mesure est effectuée [1.55-1.58, 1.61]. Un exemple de distribution illustrant la dépendance en phase de la distribution est donné sur la Figure 1- 29 pour un PER de 500 µm polarisé à 0,2 mHz sous 40 kV/mm à température ambiante. La quantité de charges varie considérablement pour les différentes phases.

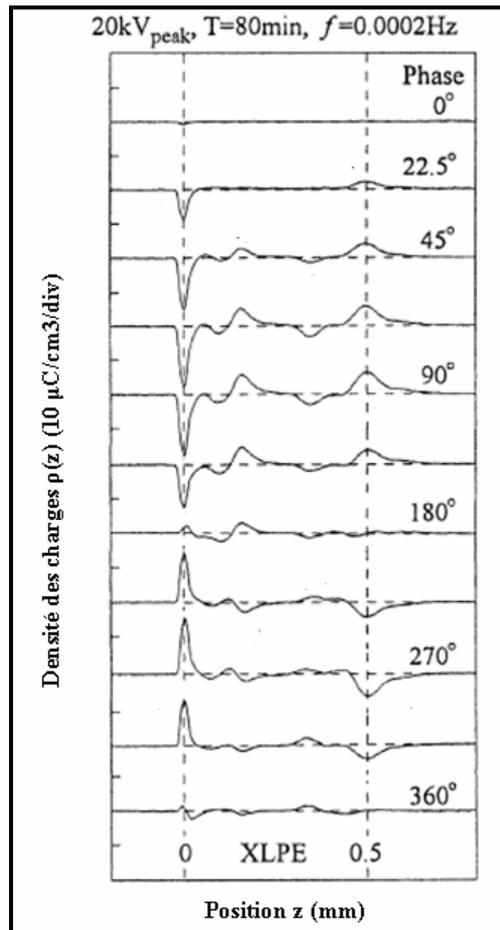


Figure 1- 29 : Dépendance de la distribution des charges d'espace dans le PER en fonction de la phase de la tension alternative 0,2mHz [1.55, 1.56]

1.3.5. Influence de la durée d'application de la tension

Le temps de polarisation peut modifier la quantité de charge contenue dans le matériau. En effet, les charges injectées pendant une demi-alternance et piégées sur un piège profond ne sont pas extraites ou ne se recombinent pas nécessairement lors de la demi-alternance suivante. Dans ce cas, un phénomène d'accumulation de charges peut apparaître au cours du temps avec phénomène de saturation. Après 20 h de polarisation à 50 Hz sous 50 kV/mm, une saturation apparaît dans le PEBD à température ambiante (Figure 1- 30) [1.70].

Les mesures sont réalisées hors tension. Dans le PER, une stabilisation de la charge est également mise en évidence après 100 mn sous 55 kV/mm à 1 mHz (Figure 1- 31) [1.57]. Les mesures sont effectuées pour une phase de 0°. L'effet du temps de polarisation sur l'injection de charges a également été reporté dans [1.53, 1.66, 1.71] où les temps à partir desquels des charges sont détectées à la fréquence 50 Hz sont respectivement de 7h, 10 jours et 2 mois. Les matériaux et les conditions expérimentales pour ces études sont différents.

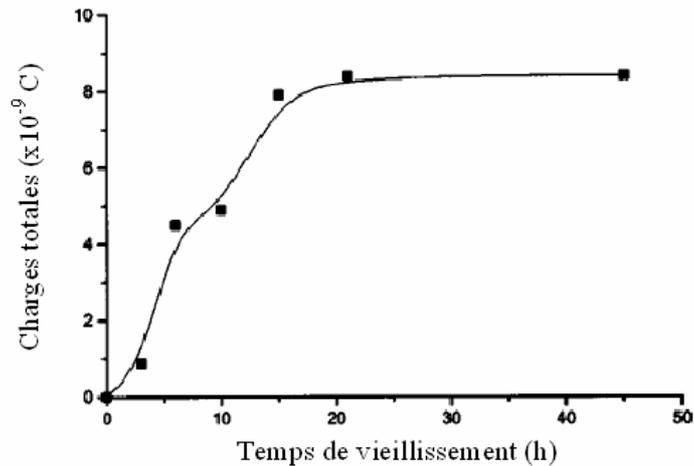


Figure 1- 30 : Charges stockées dans le PEBD au cours du temps sous tension alternative $50 \text{ kV} \cdot \text{mm}^{-1}$; 50 Hz [1.70].

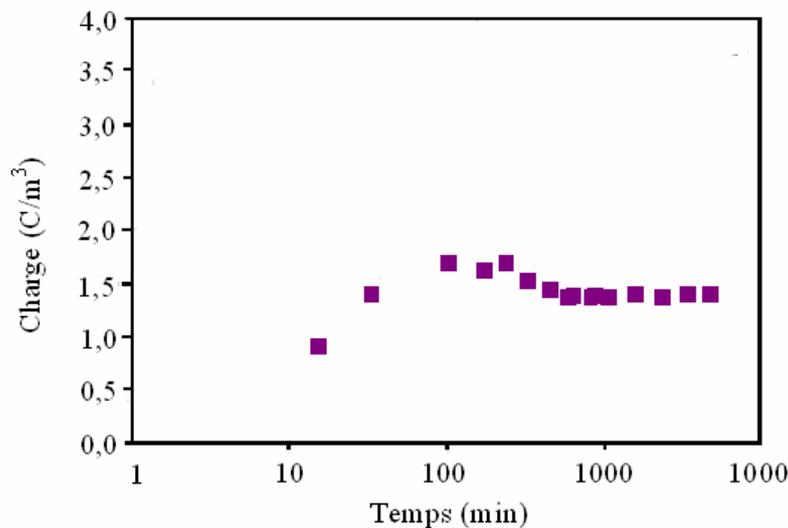


Figure 1- 31 : Charges stockées dans le PER au cours du temps sous tension alternative 55 kV/mm , 1 mHz ; l'angle de la phase 0° [1.57]

1.3.6. Influence de la nature du matériau utilisé comme électrode

Nous avons rappelé dans § 1.2.1, l'impact théorique du travail de sortie sur la barrière de potentiel que doivent franchir les charges lors de l'injection dans le matériau. En AC, l'influence du métal a été étudiée dans le PER [1.69, 1.79] à partir de mesures d'électroluminescence (EL). L'influence du métal a été mise en évidence. La Figure 1- 32 représente les champs seuils à partir desquels l'électroluminescence est détectée et le flux lumineux correspondant pour différents types de métaux (indium, argent, fer, cuivre) caractérisés par des travaux de sortie différents. Le champ d'apparition de l'EL diminue et la lumière émise augmente avec la diminution du travail de sortie. Ces études montrent que l'EL

dépend de phénomènes d'injections aux niveaux des interfaces métal-isolant. En AC, la nature du métal semble gouverner les mécanismes d'injection.

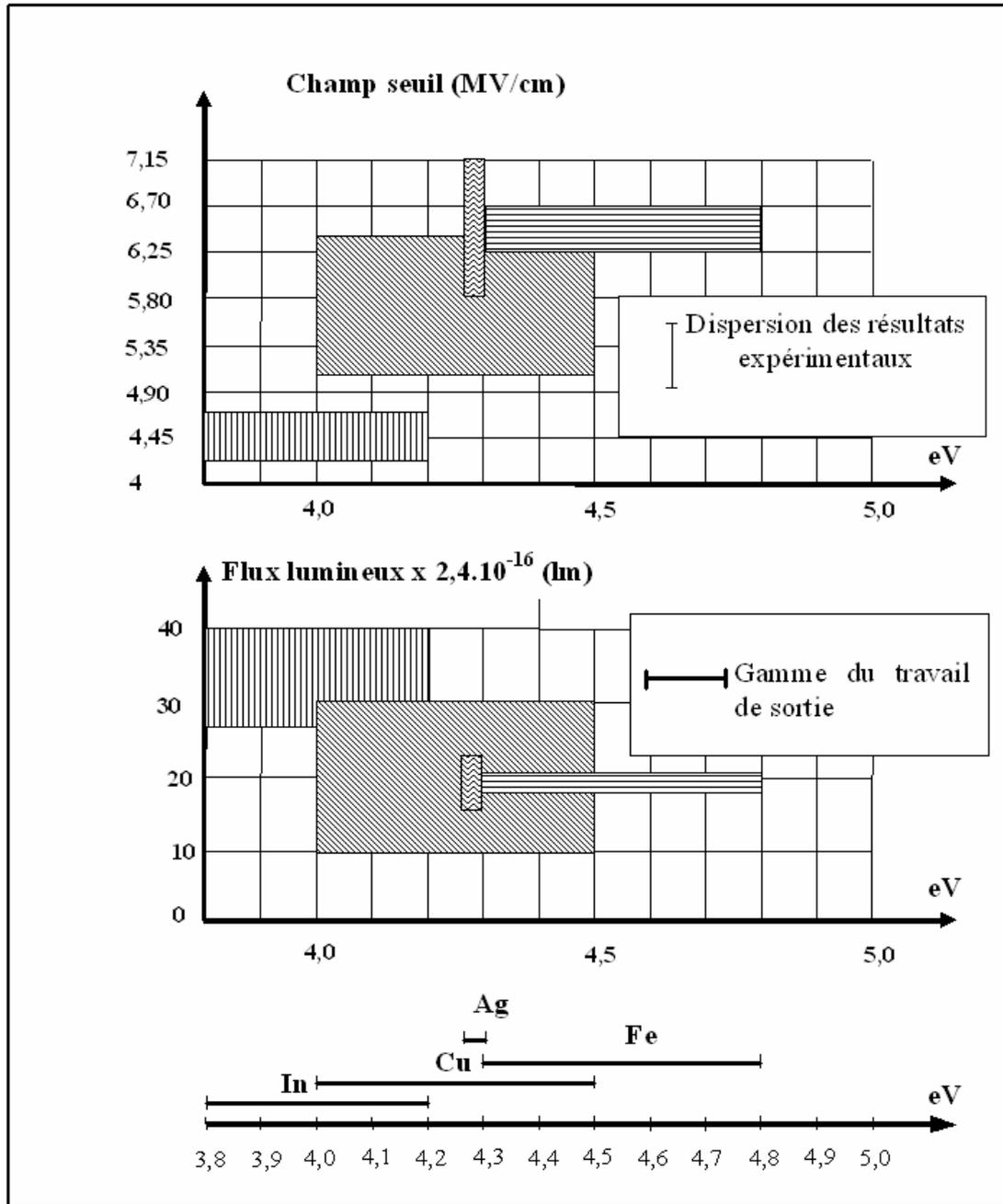


Figure 1- 32 : Champ seuil d'électroluminescence et flux lumineux correspondant pour plusieurs métaux. [1.69]

G. Chen et al [1.70] ont montré également des injections différentes avec des électrodes en or et en semi-conducteur pour le PEBD à 50 Hz. (Figure 1- 33).

Par contre Bamji et al [1.61] avec la PEA n'ont pas trouvé de dépendance du métal sur l'injection dans le PEBD à 60 Hz. La différence de comportement pourrait être attribuée à la sensibilité de la mesure ou aux états de surface à l'interface métal/polymère.

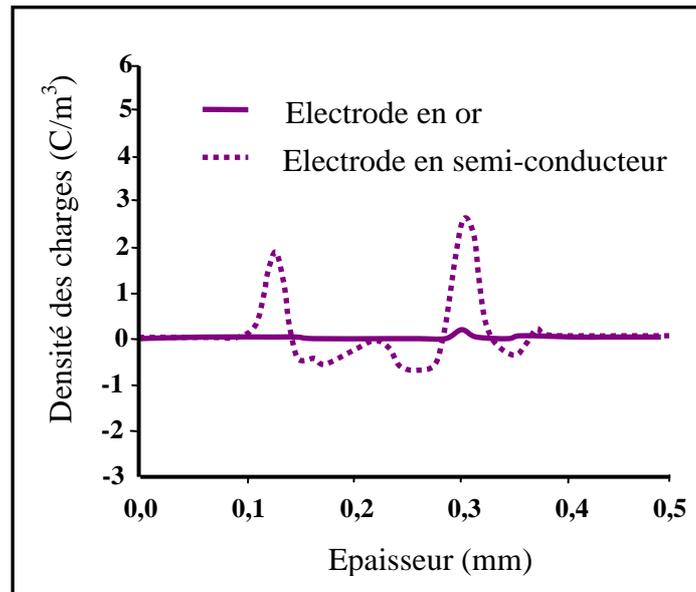


Figure 1- 33 : Comparaison de la distribution des charges dans le PEBD après 6 h de polarisation sous tension alternative 50 Hz, 50 kV/mm avec les électrodes en or et en semi-conducteur [1.70]

1.3.7. Conclusions

- Les mesures de charge d'espace sous tension alternative concernent essentiellement le PE (PER, PEBD, PEHD).
- La densité des charges accumulées dans le matériau diminue avec l'augmentation de la fréquence de la tension appliquée.
- Lorsqu'elle est observée, la charge contenue dans le matériau se stabilise au-delà d'un certain temps de polarisation.
- Les charges d'espace ont été mesurées à 50 Hz dans du PEBD mais pas dans du PER. L'injection de charges a été détectée à 50 Hz dans du PER vieilli.
- L'influence de la nature du matériau d'électrode a été observée par certains auteurs mais pas par d'autres.

CHAPITRE 2 : METHODE DE L'ONDE DE PRESSION LIPP

2.1. PRESENTATION DE LA METHODE

La méthode de l'onde de pression induite par impulsion laser a été initiée et développée en France, au début des années 80 par Laurenceau, Alquié, Dreyfus et Lewiner [2.1, 2.2]. Cette technique de caractérisation est connue sous l'acronyme LIPP pour Laser-Induced Pressure Pulse (LIPP).

Dans ce paragraphe, nous rappelons brièvement les principes de la méthode de l'onde de pression utilisée pour la mesure de distributions de charges. Des détails sur la méthode sont donnés dans les références [2.3-2.9] .

2.1.1. Principe de la méthode

Considérons un matériau isolant plan contenant des charges négatives en densité $\rho(z)$ et des dipôles permanents. Deux électrodes sont disposées sur deux côtés du diélectrique. L'épaisseur d'isolant doit être suffisamment faible devant la largeur des électrodes pour que l'on puisse supposer que les grandeurs ne dépendent que de la direction z qui est perpendiculaire au plan des électrodes.

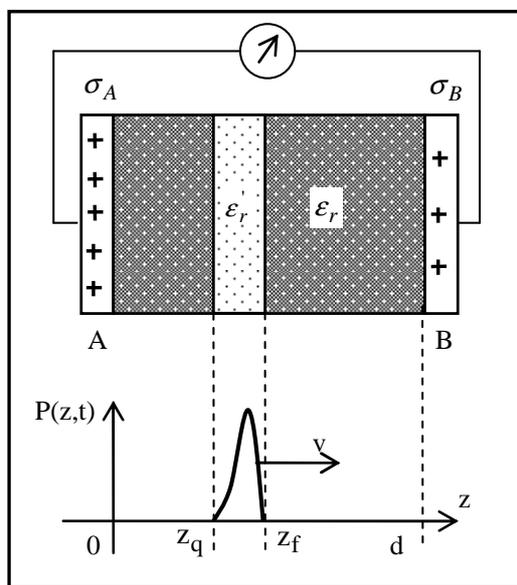


Figure 2- 1 : En condition de court-circuit un courant est mesuré lors du déplacement localisé des charges sous l'effet de l'onde de pression.

Supposons une onde de pression se propageant dans l'échantillon à la vitesse du son (Figure 2- 1). Les positions z_f et z_q correspondent respectivement à la position du front de

l'onde et à la queue de l'onde. Sous l'action de cette perturbation mécanique, la structure atomique et moléculaire est déformée. Dans la zone de compression, les charges liées au réseau sont déplacées. Cela produit une faible modification de la répartition des charges dans l'isolant et une variation des charges induites sur les électrodes. Selon l'impédance du circuit extérieur, la variation des charges induites sur les deux électrodes A et B génère une différence de potentiel en condition de circuit ouvert ou un courant en condition de court-circuit. L'évolution temporelle du signal de tension ou de courant contient des informations sur la distribution spatiale des charges d'espace ou de champ.

2.1.2. Génération de l'onde de pression

L'onde de pression dans cette méthode est générée par l'impact d'une impulsion laser très courte (de quelques nanosecondes) sur une cible en métal couverte d'une fine couche de liquide (Figure 2- 2). Un gel entre la cible et l'échantillon permet de s'affranchir de la réflexion acoustique de l'onde à cette interface.

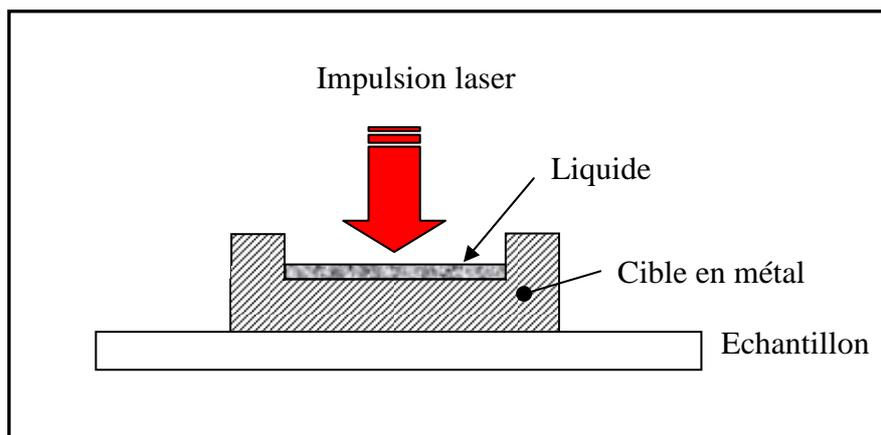


Figure 2- 2 : Génération de l'onde de pression par impact d'une impulsion laser sur une cible recouverte d'une couche liquide

Le mécanisme de génération de l'onde de pression induite par l'impact de l'impulsion laser sur une surface dépend de la puissance laser reçue par unité de surface, de la durée de l'impulsion laser, du coefficient d'absorption du matériau pour la longueur d'onde du laser. Suivant les ordres de grandeurs de ces paramètres, plusieurs phénomènes contribuent à la création de l'onde de pression [2.10]. Dans tous les cas, l'onde de pression est subordonnée à une brutale élévation de température qui résulte de l'absorption de l'énergie laser sur une très faible épaisseur de matériau absorbant. La sensibilité de la technique dépend fortement de tous ces facteurs. Il est nécessaire pour comparer des distributions de charges d'espace assez proches de connaître et de maîtriser les paramètres qui gouvernent le processus de formation de l'onde de pression pour trouver un compromis entre les paramètres permettant d'obtenir une sensibilité, une résolution spatiale et une reproductibilité satisfaisantes.

Trois modes de générations de l'onde de pression sont rappelés dans [2.4] dans le cas d'une interaction laser/cible métallique.

1^{er} cas : impulsion laser inférieure à 100 ns et flux laser de l'ordre de 10^6 W/cm^2 .

→ La dilation thermique du métal contrôle le mécanisme de génération de l'onde de pression.

2^{ième} cas : impulsion laser de quelques nanosecondes et flux laser de l'ordre de 10^8 W/cm^2 .

→ L'évaporation d'une mince couche du métal contrôle le mécanisme de génération de l'onde de pression.

3^{ième} cas : flux laser supérieur à 10^8 W/cm^2 .

→ La vaporisation se fait très vite et la matière éjectée et ionisée produit un plasma. Dans ces conditions, la cible doit être changée après chaque tir. Par contre le rendement de conversion entre le flux laser incident et la pression induite est altéré en raison du plasma qui masque la queue de l'impulsion laser. Une solution pour améliorer ce rendement est de déposer une fine couche de graphite sur la cible ou de mouiller sa surface par un liquide très volatil [2.7]. Le dépôt de graphite permet l'amélioration de la sensibilité mais le dépôt décroît si des tirs répétés sont effectués. En pratique la maîtrise du dépôt de graphite est difficile ce qui conduit à une mauvaise reproductibilité des mesures. Le mouillage améliore la sensibilité. Cependant ce dernier dégrade la résolution spatiale de la distribution, le profil de l'onde de pression s'élargit.

Le mécanisme de génération de l'onde de pression sera étudié en détail dans le chapitre 4. Le rôle du liquide opaque à la longueur d'onde du laser est d'augmenter l'efficacité énergétique de l'impact du faisceau sur la cible.

2.2. EXPRESSION DU SIGNAL

Le signal induit par la propagation de l'onde de pression a été calculé en détail dans [2.2, 2.4, 2.6, 2.7, 2.9, 2.11, 2.12].

2.2.1. En condition de circuit ouvert

Lorsque les électrodes sont reliées à une forte impédance, la différence de potentiel $v_{co}(t)$ induite entre les électrodes lors de la propagation de l'onde de pression $P(z, t)$ est reliée à la distribution spatiale de champ $E(z)$ par l'équation :

$$V_{co}(t) = \chi_c \cdot G(\epsilon_r) \int_{z_q(t)}^{z_f(t)} E(z) \cdot P(z, t) \cdot dz \quad \text{équation 2- 1}$$

Où :

$$\chi_c : \text{Compressibilité du matériau } (\chi_c = -\frac{1}{V} \left(\frac{\partial V}{\partial P} \right)_T).$$

$G(\epsilon_r)$: Coefficient produit par la variation de la permittivité relative du matériau avec la pression.

$E(z)$: Champ électrique à la position z [$V \cdot m^{-1}$].

$P(z, t)$: Profil de la pression à la position z au temps t [$N \cdot m^{-2}$].

$z_f(t)$: Abscisse du front de l'onde de pression lorsque l'onde est dans le matériau isolant. $z_f(t) = v \cdot t$ [m]. Lorsque l'onde est en train de sortir du diélectrique, $z_f(t) = d$. Dans tous les cas $0 < z_f(t) \leq d$.

v : Vitesse du son dans le matériau [$m \cdot s^{-1}$].

$z_q(t)$: Abscisse (en [m]) de la queue de l'onde de pression lorsque l'onde est dans le matériau isolant. Lorsque l'onde est en train d'entrer dans le diélectrique, $z_q(t) = 0$. Dans tous les cas $0 \leq z_q(t) < d$.

2.2.2. En condition de court-circuit

Lorsque les électrodes sont connectées à une faible impédance, le courant circulant dans le circuit extérieur $i_{cc}(t)$ est relié au potentiel par l'expression suivante :

$$i_{cc}(t) = C_o \frac{dV_{co}(t)}{dt} \quad \text{équation 2- 2}$$

Soit

$$i_{cc}(t) = C_o \cdot \chi_c \cdot G(\epsilon_r) \cdot \int_{z_q(t)}^{z_f(t)} E(z) \cdot \frac{\partial P(z, t)}{\partial t} dz \quad \text{équation 2- 3}$$

Où :

C_o : Capacité de l'isolant non comprimé avec $C_o = \epsilon \frac{S}{d}$ [F].

$\epsilon = \epsilon_0 \cdot \epsilon_r$ [$F \cdot m^{-1}$]

ϵ_r : Permittivité relative du matériau

ϵ_0 : Permittivité du vide [$F \cdot m^{-1}$]

S : Surface de l'électrode [m²].

d : Epaisseur de l'isolant [m]

On a la relation suivante :

$$\frac{\partial P(z,t)}{\partial t} = \frac{\partial P(z,t)}{\partial z} \cdot \frac{\partial z}{\partial t} = v \cdot \frac{\partial P(z,t)}{\partial z} \quad \text{équation 2- 4}$$

A partir des équations 2- 3 et 2- 4, nous obtenons :

$$i_{cc}(t) = v \cdot C_o \cdot \chi_c \cdot G(\epsilon_r) \cdot \int_{z_q(t)}^{z_f(t)} E(z) \cdot \frac{\partial P(z,t)}{\partial z} dz \quad \text{équation 2- 5}$$

Ainsi, si le profil temporel de l'onde de pression est connu, la distribution du champ électrique dans l'échantillon peut être obtenue, à partir des mesures de la tension $V_{co}(t)$ ou du courant $i_{cc}(t)$ et des équations 2- 1 et 2- 5. La densité de charges est déduite de l'équation de

$$\text{Poisson } (\text{div } \vec{E}(z) = \frac{\rho(z)}{\epsilon}).$$

2.3. ANALYSE DES SIGNAUX OBTENUS EN CONDITION DE COURT-CIRCUIT

2.3.1. Mesures sous champ avec un échantillon vierge

Si les mesures du courant dans le circuit extérieur sont effectuées lorsque l'échantillon vierge est polarisé, le champ est donc uniforme dans tout l'échantillon et égal au champ appliqué E_a . L'équation 2- 5 s'écrit alors :

$$i_{cc_sc}(t) = v \cdot C_o \cdot \chi_c \cdot G(\epsilon_r) \cdot E_a \int_{z_q(t)}^{z_f(t)} \frac{\partial P(z,t)}{\partial z} dz \quad \text{équation 2- 6}$$

Soit

$$i_{cc_sc}(t) = v \cdot C_o \cdot \chi_c \cdot G(\epsilon_r) \cdot E_a [P(z_f(t),t) - P(z_q(t),t)] \quad \text{équation 2- 7}$$

- Lorsque l'onde de pression est en train de pénétrer dans l'échantillon (Figure 2- 3), $P(z_f(t),t)=0$, et puisque $z_q(t)$ est alors négatif, il faut remplacer $P(z_q(t),t)$ par $P(0,t)$.

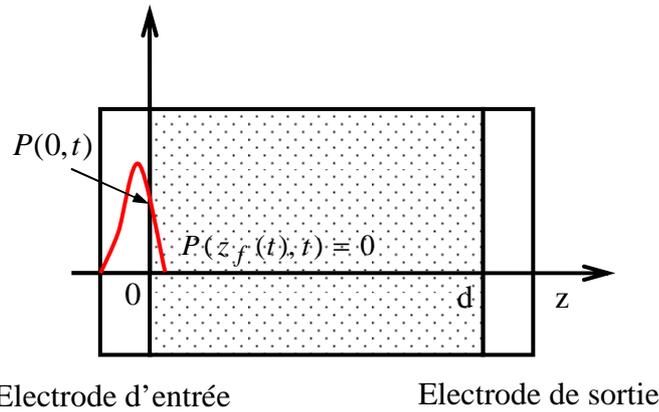


Figure 2- 3 : Illustration de l'onde de pression qui pénètre dans le matériau

L'équation 2- 7 devient :

$$i_{cc_sc}(t) = -v.C_o.\chi_c.G(\epsilon_r).E_a.P(0,t) \quad \text{équation 2- 8}$$

Le courant $i_{cc_sc}(t)$ mesuré est donc proportionnel au champ appliqué et est proportionnel à la pression au signe près.

- Lorsque l'onde de pression est complètement dans l'isolant (Figure 2- 4), $P(z_f(t),t)=0$ et $P(z_q(t),t)=0$. L'équation 2- 7 devient :

$$i_{cc_sc} = 0 \quad \text{équation 2- 9}$$

Il n'y a pas de courant qui circule dans le circuit extérieur de mesure.

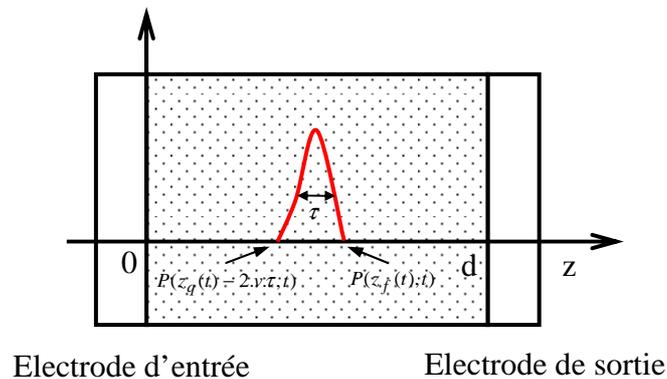


Figure 2- 4 : Illustration de l'onde de pression à l'intérieur du matériau, $z_q(t)=0$ et $z_f(t)=0$

- Lorsque l'onde de pression se propageant à la vitesse v sort du matériau d'épaisseur d , le front de l'onde arrive sur la contre électrode à l'instant $t=d/v$ (Figure 2- 5).

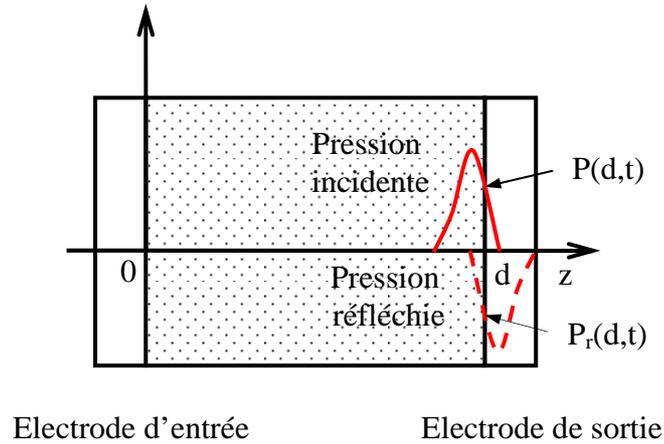


Figure 2- 5 : Processus de réflexion à l'électrode de sortie. Onde incidente positive et onde réfléchie négative.

Au niveau de la contre-électrode une électrode massive est en contact avec la métallisation de l'échantillon à travers une fine couche d'air. Etant donnée la faible épaisseur de la métallisation de quelques dizaines d'angström par rapport à la largeur de l'onde de pression (de l'ordre d'une dizaine de micromètre), la réflexion et la transmission à travers l'électrode peuvent être négligées du point de vue acoustique. Seule l'interface isolant/air est donc à prendre en compte. Son épaisseur est de l'ordre de la rugosité du film.

A l'interface isolant/air, une partie de l'onde de pression est transmise vers l'air et l'autre partie est réfléchie vers l'isolant. L'onde réfléchie se superpose à l'onde incidente pour perturber la structure de l'isolant. Donc, on a $P(z_f(t), t) = P(d, t) - P_r(d, t)$ et $P(z_q(t), t) = 0$ **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**). L'équation 2- 7 devient :

$$i_{cc_sc}(t) = v \cdot C_o \cdot \chi_c \cdot G(\epsilon_r) \cdot E_a \cdot [P(d, t) - P_r(d, t)] \quad \text{équation 2- 10}$$

Par définition l'impédance caractéristique acoustique est :

$$Z = \rho_v \cdot v \quad \text{équation 2- 11}$$

Où

ρ_v : Densité volumique de l'isolant [$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$]

v : Vitesse de l'onde de pression acoustique dans l'isolant [$\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$].

Le coefficient de réflexion R et de transmission T de l'onde se propageant de l'isolant vers l'air sont définis par :

$$R_a = \frac{Z_{\text{air}} - Z_{\text{isolant}}}{Z_{\text{air}} + Z_{\text{isolant}}} \quad \text{équation 2- 12}$$

$$T_a = \frac{2.Z_{\text{air}}}{Z_{\text{air}} + Z_{\text{isolant}}} \quad \text{équation 2- 13}$$

L'onde réfléchie à l'interface est déterminée par :

$$P_r(d, t) = R_a \cdot P(d, t) \quad \text{équation 2- 14}$$

Alors, l'équation 2- 10 devient :

$$i_{\text{cc_sc}}(t) = v \cdot C_o \cdot \chi_c \cdot G(\epsilon_r) \cdot E_a \cdot (1 - R_a) \cdot P(d, t) \quad \text{équation 2- 15}$$

Si l'atténuation de l'onde de pression est négligée pendant sa propagation à travers l'échantillon $P(0,t)=P(d,t)$, le rapport entre l'amplitude de l'onde en sortie et en entrée de l'échantillon est de $(1-R_a)$.

2.3.2. Signal obtenu par les mesures hors champ.

Si le courant est mesuré lorsque l'échantillon n'est pas polarisé (mesure effectuée hors champ), le champ électrique à la position z noté $E(z)$ dépend de la densité des charges dans l'échantillon. L'intégration par partie de l'équation 2-5 permet d'écrire :

$$i_{\text{cc_hc}}(t) = v \cdot C_o \cdot \chi \cdot G(\epsilon_r) \left[\left[E(z) \cdot P(z, t) \right]_{z_q(t)}^{z_f(t)} - \int_{z_q(t)}^{z_f(t)} P(z, t) \cdot \frac{\partial E(z)}{\partial z} \cdot dz \right] \quad \text{équation 2- 16}$$

En utilisant l'équation de Poisson ($\text{div} \vec{E}(z) = \rho(z) / \epsilon$), où $\rho(z)$ représente la densité volumique de charges dans le volume du matériau, l'équation 2- 16 peut s'écrire :

$$i_{\text{cc_hc}}(t) = v \cdot C_o \cdot \chi \cdot G(\epsilon_r) \left[\left[E(z) \cdot P(z, t) \right]_{z_q(t)}^{z_f(t)} - \frac{1}{\epsilon} \int_{z_q(t)}^{z_f(t)} P(z, t) \cdot \rho(z) \cdot dz \right] \quad \text{équation 2- 17}$$

2.3.2.1. Cas où l'onde de pression pénètre dans l'échantillon

Dans ce cas, on a $P(z_f(t), t)=0$, $P(z_q(t), t)=P(0, t)$ et $z_q(t)=0$. L'équation 2- 17 devient :

$$i_{\text{cc_hc}}(t) = -v \cdot C_o \cdot \chi \cdot G(\epsilon_r) \cdot E(0) \cdot P(0, t) - v \cdot C_o \cdot \chi \cdot G(\epsilon_r) \cdot \frac{1}{\epsilon} \int_0^{z_f(t)} P(z, t) \cdot \rho(z) \cdot dz \quad \text{équation 2- 18}$$

Le premier élément de l'équation 2- 18 correspond à l'image des charges induites sur l'électrode d'entrée. Le deuxième élément est l'image des charges dans la zone comprise

entre 0 et $z_f(t)$. Le courant obtenu est l'image de la superposition de l'influence des charges induites sur les électrodes et de la densité des charges dans la zone où se trouve l'onde de pression.

a. Cas où la largeur de l'onde de pression est infiniment fine

Dans ce cas, on a $z_q(t) = z_f(t)$. La pression $P(z,t)$ peut être considérée constante soit $P(z,t) = P(0,t) = P_0$ entre 0 et $z_f(t)$. L'équation 2- 18 est alors remplacée par :

$$i_{cc_hc} = \lim_{z_f \rightarrow 0} \left[-v.C_o.\chi.G(\epsilon_r)E(0).P_0 - v.C_o.\chi.G(\epsilon_r).\frac{1}{\epsilon} \int_0^{z_f(t)} P_0.\rho(z).dz \right] \quad \text{équation 2- 19}$$

La densité de charges étant physiquement finie : $\lim_{z_f \rightarrow 0} \left[\int_0^{z_f(t)} \rho(z).dz \right] = 0$

L'équation 2-19 devient :

$$i_{cc_hc}(t) = -v.C_o.\chi.G(\epsilon_r).E(0).P_0 \quad \text{équation 2- 20}$$

b. Cas où la largeur de l'onde de pression n'est pas assimilable à un Dirac.

- Si dans la zone de 0 à z_f , il n'y a pas de charge ($\rho(z) = 0$), l'équation 2- 18 devient :

$$i_{cc_hc}(t) = -v.C_o.\chi.G(\epsilon_r).E(0).P(0,t) \quad \text{équation 2- 21}$$

L'équation 2- 21 représente le profil temporel du courant qui correspond aux charges induites en considérant que les charges dans la zone de 0 à z_f sont nulles. Si on compare l'équation 2- 21 et l'équation 2- 8, on trouve que le profil temporel des charges induites sur l'électrode d'entrée et celui du signal mesuré sous champ sur l'électrode d'entrée sont identiques à un coefficient $E(0)/E_a$. Ce coefficient est celui de la densité de charge image hors champ sur l'électrode d'entrée et la densité de charge sous champ sur l'électrode d'entrée.

- Si dans la zone de 0 à z_f , il y a des charges, l'impulsion de courant mesurée à l'entrée de l'onde dans l'échantillon est à la fois l'image de la charge induite et de la charge d'espace à proximité. C'est cette situation qui est observée en réalité. Au paragraphe 2.4.3.4., nous proposerons une méthode pour extraire la charge d'espace de cette impulsion d'entrée.

2.3.2.2. Cas où l'onde de pression est complètement dans l'échantillon.

L'équation 2- 17 devient :

$$i_{cc_hc}(t) = -v.C_o.\chi.G(\epsilon_r).\frac{1}{\epsilon} \int_{z_q(t)}^{z_f(t)} P(z,t).\rho(z)dz \quad \text{équation 2- 22}$$

a. Cas où la largeur de l'onde de pression est infiniment fine

Dans ce cas, on a $z_q(t)=z_f(t)$. La pression $P(z,t)$ peut être considérée constante et égale à P_1 entre $z_q(t)$ et $z_f(t)$. L'équation 2- 22 s'écrit alors :

$$i_{cc_hc}(t) = -v.C_o.\chi.G(\epsilon_r).P_1.\frac{\rho(z)}{\epsilon} \quad \text{équation 2- 23}$$

Le signal de la mesure hors champ du courant est proportionnel à la densité des charges.

b. Cas où la largeur de l'onde de pression n'est pas assimilable à un Dirac.

Dans ce cas, le profil de l'onde doit être connu à chaque instant pour déterminer rigoureusement la densité de charges à partir de la mesure du courant. Une méthode approximative qui néglige l'élargissement de l'onde sera proposée au paragraphe 2.4.3.2.

2.3.2.3. Cas où l'onde de pression sort de l'échantillon

Dans ce cas, on a $P(z_f(t),t)=P(d,t)$ $P(z_q(t),t)=0$. Lorsque l'onde de pression arrive sur l'électrode arrière dans l'intervalle de temps $t=\left[\frac{d}{v}, \frac{d}{v} + \frac{z_f - z_q}{v}\right]$ l'équation 2- 17 s'écrit :

$$i_{cc_hc}(t) = v.C_o.\chi.G(\epsilon_r).E(d).(1 - R_a).P(d,t) - v.C_o.\chi.G(\epsilon_r).\frac{1}{\epsilon} \int_{z_q(t)}^d P(z,t).\rho(z).dz \quad \text{équation 2- 24}$$

a. Cas où la largeur de l'onde de pression est infiniment fine

Dans ce cas, on a $z_q(t)=z_f(t)=d$. La pression $P(z,t)$ peut être considérée constante et égale à P_2 entre $z_q(t)$ et d . L'équation 2- 24 devient :

$$i_{cc_hc}(t) = v.C_o.\chi.G(\epsilon_r).E(d).(1 - R_a).P \quad \text{équation 2- 25}$$

Le courant de mesure hors champ dans ce cas est l'image des charges induites sur l'électrode arrière.

b. Cas où la largeur de l'onde de pression n'est pas assimilable à un Dirac.

Dans ce cas, le profil de l'onde doit être connu à chaque instant pour déterminer la densité de charges à partir de la mesure du courant. Un traitement numérique est indispensable pour obtenir la densité de charges.

2.4. TRAITEMENT DU SIGNAL

2.4.1. Signal de calibration

Une mesure effectuée sous champ dans des conditions telles qu'aucune charge ne soit injectée dans le matériau est appelé mesure de calibration. La calibration donne des informations comme la vitesse de l'onde de pression, la densité de charges capacitives et la position des électrodes. Les algorithmes utilisés pour le traitement des données issues de cette méthode nécessitent ces informations.

2.4.1.1. Calcul de la vitesse

La Figure 2- 6 présente le signal de calibration obtenu par les mesures à basse tension (nouveau système). Cette mesure de calibration a été effectuée à la température de 60° pour 3 kV sur un échantillon vierge de PET de $480\ \mu\text{m}$ d'épaisseur métallisé des deux côtés avec de l'argent. Le signal comprend 2 pics de polarités opposées. Le pic positif correspond au moment où l'onde de pression entre dans l'échantillon, le deuxième à sa sortie. La durée entre les deux pics est celle de la propagation de l'onde de pression à travers l'échantillon.

Sur cette figure, l'onde de pression se propage à travers l'échantillon en 208 ns ce qui correspond à une vitesse de $2308\ \text{m.s}^{-1}$.

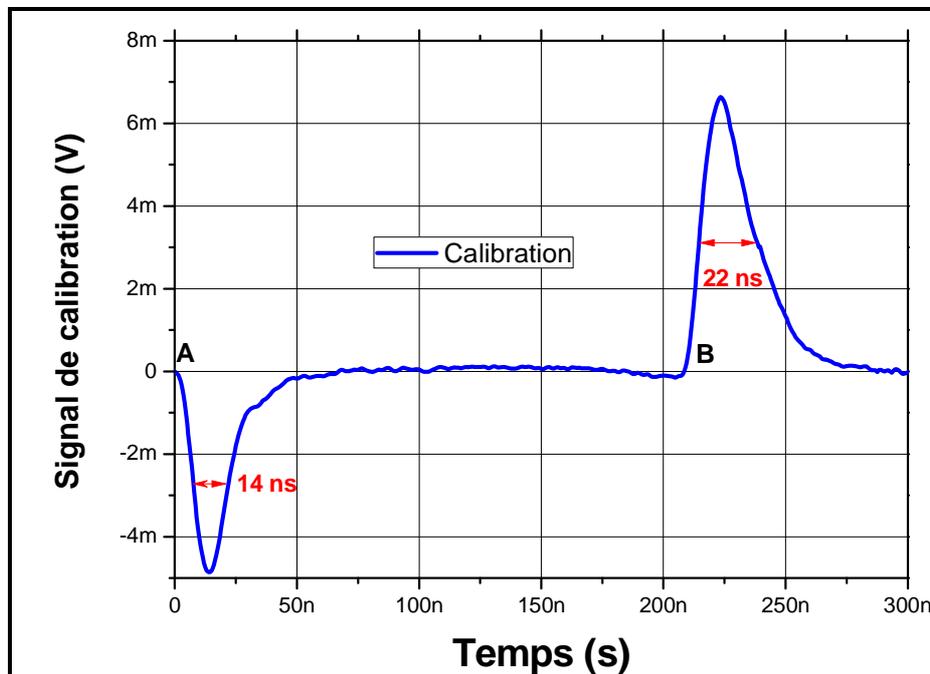


Figure 2- 6 : Signal de calibration d'un échantillon ; PET de $480\ \mu\text{m}$; 3 kV ; 60°C

2.4.1.2. Calcul du coefficient d'atténuation

L'épaisseur de l'électrode métallisée étant très fine par rapport à la largeur de l'onde de pression (de l'ordre du micromètre), on peut considérer que l'interface en sortie est formée de PET et d'air.

Le coefficient de réflexion entre deux milieux est calculé à partir de la relation :

$$R_{\text{PET/air}} = \frac{Z_{\text{Air}} - Z_{\text{PET}}}{Z_{\text{Air}} + Z_{\text{PET}}} \quad \text{équation 2- 26}$$

Avec

$$Z_{\text{air}} : \text{Impédance acoustique de l'air, } Z_{\text{Air}} = \rho_{\text{Air}} \cdot v_{\text{Air}} = 4.10^{-4} \text{ kg.m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$$

Z_{PET} : Impédance acoustique de l'échantillon,

$$Z_{\text{PET}} = \rho_{\text{PET}} \cdot v_{\text{PET}} = 1300.2300 = 299.10^4 \text{ kg.m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$$

L'impédance acoustique de l'air est très petite par rapport avec celle du PET. Le coefficient de réflexion est donc très voisin de -1. L'onde de pression est réfléchiée totalement en sortie. Sans atténuation de l'onde de pression lors de la propagation, l'amplitude de l'onde de pression à la sortie serait donc deux fois plus grande que celle à l'entrée. La tension de sortie devrait être deux fois plus importante que celle à l'entrée. Cependant, l'expérience (Figure 2- 6), montre un rapport de 1,36 entre les deux. Le coefficient d'atténuation en terme d'amplitude vérifie la relation :

$$\alpha_a = \frac{1}{d} \ln \frac{A_{\text{sortie}}/2}{A_{\text{entrée}}} \quad \text{équation 2- 27}$$

Où

α_a : Coefficient d'atténuation [m^{-1}]

A_{sortie} : Amplitude du signal de sortie (image de l'amplitude de l'onde de pression à la sortie).

$A_{\text{entrée}}$: Amplitude du signal à l'entrée (image de l'amplitude de l'onde de pression à l'entrée)

En pratique nous obtenons :

$$\alpha_a = -\frac{1}{480.10^{-6}} \ln \frac{6,6363/2}{4,8647} = 797 \text{ m}^{-1} \quad \text{équation 2- 28}$$

2.4.1.3. Elargissement de l'onde de pression

Une autre manifestation de la déformation de l'onde au cours de sa propagation est l'augmentation de la largeur à mi-hauteur du signal de sortie par rapport au signal en entrée (Figure 2- 6). L'énergie de l'onde de pression est proportionnelle à l'intégrale du carré de la pression par rapport au temps [2.13]. Le calcul, à partir de la Figure 2- 6, conduit à une diminution de 30% de l'énergie au cours de la propagation de l'onde sur l'épaisseur de l'échantillon.

2.4.2. Mesures hors champ

2.4.2.1. Mesures hors champ brute

Les charges d'espace ne sont pas en général facilement observables sous champ car les amplitudes très différentes des charges capacitives et des charges d'espace ne permettent pas de régler une sensibilité de mesure adaptée aux deux grandeurs à la fois. Les charges capacitives masquent aussi parfois les charges proches des électrodes. Pour bien observer les charges d'espace, une mesure hors champ est donc préférable. De plus, cette mesure hors champ fait apparaître les charges induites sur les électrodes, ce qui améliore l'observation des phénomènes et permet des vérifications quantitatives.

La mesure est effectuée en court-circuitant l'échantillon sur une résistance 50 Ω (voir chapitre 3). L'image du courant de court-circuit est obtenue par la tension instantanée aux bornes de cette résistance Figure 2- 7.

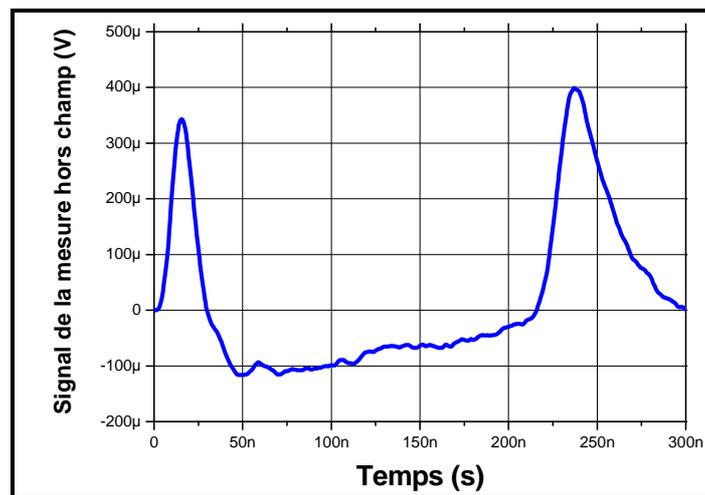


Figure 2- 7 : Signal mesuré hors champ ; PET de 480 μm ; après 3h de polarisation à 3kV ; 60°C

2.4.2.2. Correction du signal

La distribution réelle des charges d'espace peut être obtenue par la déconvolution du signal mesuré, connaissant l'évolution spatiale du signal de pression lors de sa propagation.

Un traitement simplifié consiste à ne prendre en compte que l'atténuation de l'amplitude de l'onde. Dans ce cas nous pouvons écrire :

$$u(t_i)_{\text{corrigé}} = \frac{1}{e^{-\alpha_a \cdot z_i}} \cdot u(t_i) = \frac{1}{e^{-\alpha_a \cdot v \cdot t_i}} \quad \text{équation 2- 29}$$

Où :

$u(t_i)_{\text{corrigé}}$: Amplitude du signal corrigé à l'instant t_i [V].

z_i : Position de l'onde de pression au moment t_i . $z_i = v \cdot t_i$.

$u(t_i)$: Amplitude du signal à l'instant t_i [V].

Ce traitement conduit néanmoins à une surestimation de la charge d'espace d'autant plus importante que la charge est loin de l'électrode cible.

Un exemple de signal corrigé est donné sur la Figure 2- 8.

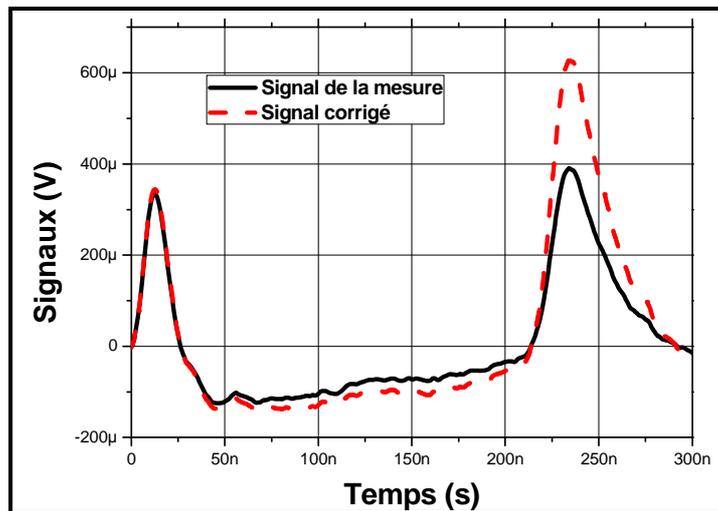


Figure 2- 8 : Signal de mesure brut et signal de mesure corrigé par le coefficient d'atténuation

2.4.3. Calcul des charges d'espace

2.4.3.1. Analyse des signaux

Le traitement du signal issu de la mesure hors champ corrigé sera effectué en utilisant le signal de calibration. Dans la suite de ce chapitre, le terme "mesure hors champ" sera utilisé pour désigner une mesure hors champ corrigée de l'atténuation. Le principe du traitement va être décrit en utilisant les signaux de la Figure 2- 9.

Les points A et B correspondent respectivement aux instants où l'onde de pression entre et sort de l'échantillon. La distance AB désigne l'épaisseur de l'objet à caractériser.

a. Signal de calibration.

La zone AC est l'image de la densité des charges sur l'électrode d'entrée ainsi que l'image du profil temporel de l'onde de pression. Le pic d'entrée en théorie est un Dirac. L'épaisseur (AC) du pic est liée aux caractéristiques du laser.

b. Signal de mesure hors champ.

- Zone BE :

La zone BE est commune au signal de calibration et à la mesure hors champ. Cette zone correspond donc aux charges induites sur l'électrode de sortie. Nous avons montré qu'en sortie le signal est doublé en raison de la réflexion à l'interface isolant/air. Le signal réel lié aux charges induites est donc 2 fois plus petit que ce qui est mesuré, à l'atténuation près.

- Zone CB

Cette partie donne une information sur la charge d'espace à l'intérieur de l'échantillon. En effet elle apparaît à l'extérieur de la zone ou la charge capacitive est identifiée lors du tir de calibration.

- Zone DC

Pour cette zone, comme pour la zone AD, le signal est dû à la superposition des charges induites aux électrodes mesurées par la queue de l'impulsion laser et des charges d'espace. Ici, l'influence des charges d'espace est supérieure à celle des charges induites, contrairement à ce qui se passe dans la zone AD.

- Zone AD

Le signal apparaît dès que l'onde de pression pénètre dans l'échantillon. La largeur de la zone AD est inférieure à la zone AC qui représente l'image de la charge capacitive. Cette différence met en évidence que le signal mesuré dans cette zone est donc la superposition des charges induites aux électrodes et de l'image des charges présentes dans le matériau (équation 2- 18 avec une onde de pression ayant une épaisseur finie).

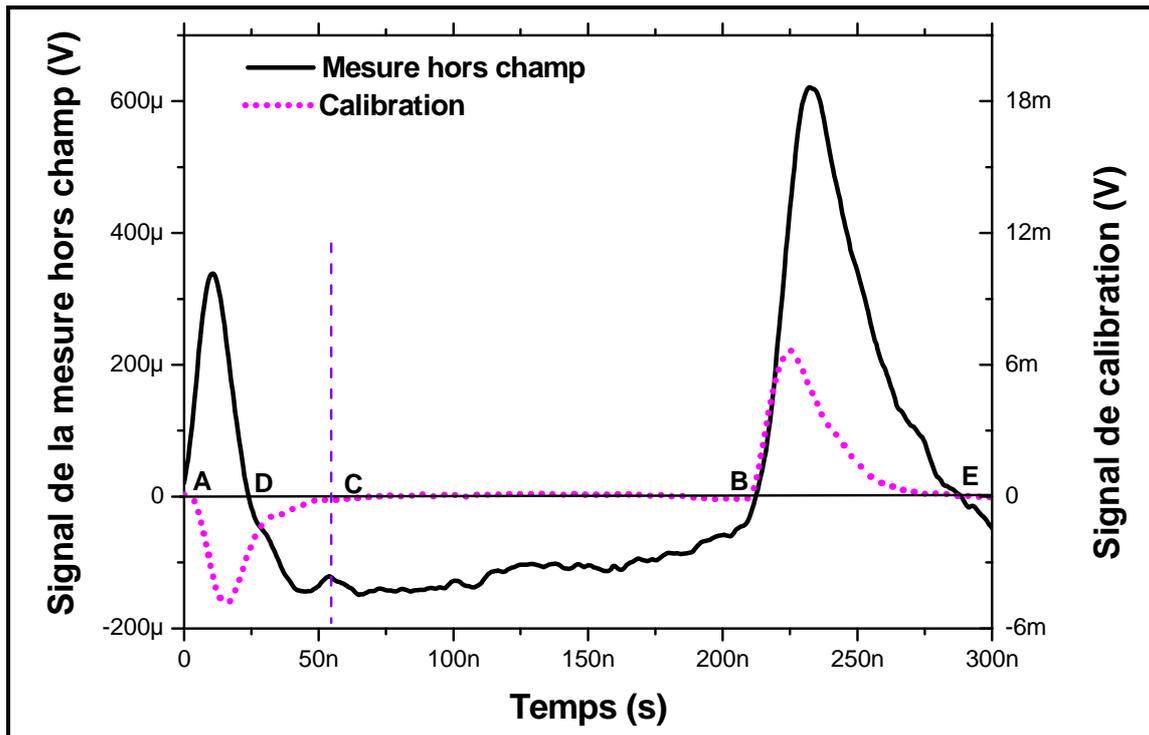


Figure 2- 9 : Superposition du signal sous champ et du signal hors champ.

2.4.3.2. Calcul de la densité des charges

La surface S_p de l'impulsion de tension d'entrée, obtenue lors du tir de calibration (Figure 2- 6), est proportionnelle au champ appliqué.

La charge surfacique sur l'électrode σ est calculée par :

$$\sigma = \epsilon \frac{V}{d} \quad \text{équation 2- 30}$$

Où :

ϵ : Constante diélectrique de l'échantillon.

V : Tension appliquée sur l'échantillon.

d : Epaisseur de l'échantillon.

A partir de la surface du pic (en V.s) et de la densité surfacique de charge (en C.m⁻²), le coefficient k est défini:

$$k = \frac{\sigma}{S_p} \quad \text{équation 2- 31}$$

Donc, dans le volume:

$$\rho(z).dz = q_s(z) = k.u(t)dt \quad \text{équation 2- 32}$$

Où :

$\rho(z)$: densité volumique de charge.

$q_s(z)$: densité surfacique de charge dans le plan d'abscisse z .

Et donc la distribution de charges est obtenue à partir du signal $u(t)$ par :

$$\rho(z) = k.u(t) \frac{dt}{dx} = \frac{k}{v}.u(t) \quad \text{équation 2- 33}$$

2.4.3.3. Calcul du champ

A partir du signal de la densité volumique de charge $\rho(z)$, le champ électrique est déterminé par les équations $\frac{dE(z)}{dz} = \frac{\rho(z)}{\epsilon}$ et $\int_0^d E(z) dz = 0$

2.4.3.4. Calcul approximatif des charges d'espace

Nous venons de voir pour la zone AC la difficulté de séparer la contribution de la charge induite aux électrodes de celle de la charge d'espace. Notre objectif ici est de proposer une méthode permettant d'identifier clairement ces deux types de charges près de l'électrode d'entrée.

a. Principe de la méthode.

Afin de déterminer le signal induit par la charge d'espace dans la zone AC, nous allons évaluer la charge image sur la cathode.

La surface du pic d'entrée du signal de calibration est déterminée par:

$$S_p = \sum_{i=1}^n u_{cal}(t_i) \cdot \Delta t \quad \text{équation 2- 34}$$

Où :

$u_{cal}(t_i)$: Tension à l'instant t_i lors du tir de calibration.

$\Delta t = 0,5 \text{ ns}$: Période d'échantillonnage lors de l'acquisition du signal.

n : Nombre de points d'échantillonnages enregistrés pour le pic d'entrée.

La charge induite sur l'électrode d'entrée est déterminée par la loi électrostatique :

$$Q_{\text{induit_entrée}} = - \sum_{\text{échantillon}} \rho(z_i) \frac{d - z_i}{d} \quad \text{équation 2- 35}$$

La surface S_c du pic induit sur les électrodes lors de la mesure hors tension vérifie donc la relation :

$$S_c = - \sum_{\text{échantillon}} u(t_i) \cdot \Delta t_i \cdot \frac{d - z_i}{d} \quad \text{équation 2- 36}$$

Ou

$$S_c = - \sum_{\text{échantillon}} u(t_i) \cdot \Delta t_i \cdot \frac{d - v \cdot t_i}{d} \quad \text{équation 2- 37}$$

A partir du signal mesuré et corrigé, nous calculons la surface S_c , image de la charge côté cathode, en utilisant l'équation 2- 37 sommant entre les points B et D. Or, la surface S_p est proportionnelle à la charge induite sur la cathode. Le signal représentant les charges induites sur la cathode est donc déduit du signal de calibration par un facteur S_c/S_p . Seul le pic négatif du signal de calibration est considéré car nous nous intéressons aux charges images à la cathode. Le signal réel de charge d'espace est alors évalué en faisant la différence entre le signal mesuré et le signal représentant les charges induites.

b. Application

- Construction du signal produit par la charge induite sur l'électrode d'entrée.

La Figure 2- 10 présente le signal de la charge induite sur la cathode.

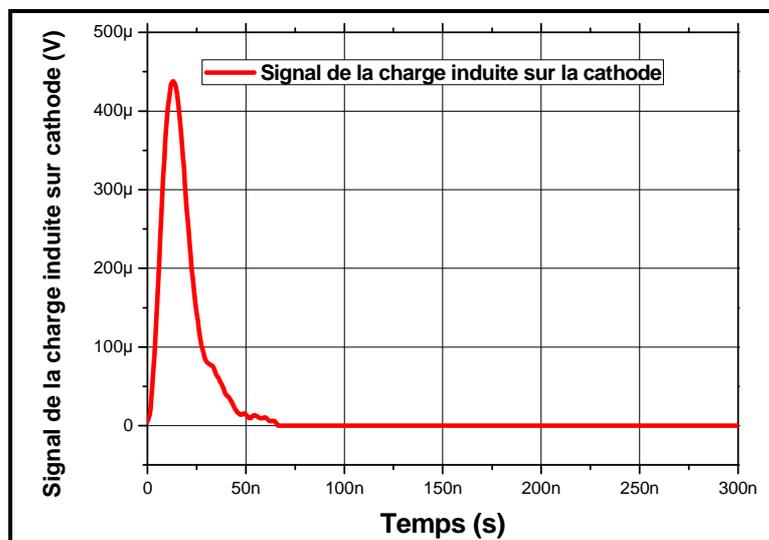


Figure 2- 10 : Signal produit par les charges induites sur la cathode

- Détermination du signal de la charge dans le volume.

La Figure 2- 11 présente la superposition du signal hors champ corrigé, du signal produit par les charges induites sur la cathode et la soustraction entre ces deux signaux pour obtenir le signal résultant de charge d'espace.

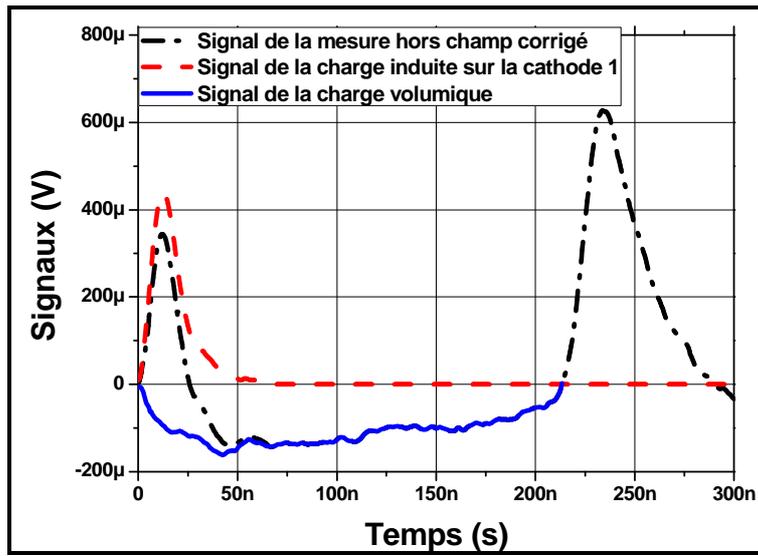


Figure 2- 11 : Superposition du signal mesuré hors champ, du signal produit par les charges induites sur la cathode et du signal résultant de charge d'espace.

CHAPITRE 3 : DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

3.1. LIPP EN DC

3.1.1. Système d'origine

Le banc de mesure présent au laboratoire permet la mesure de distributions de charges d'espace sous tension continue (Figure 3- 1).

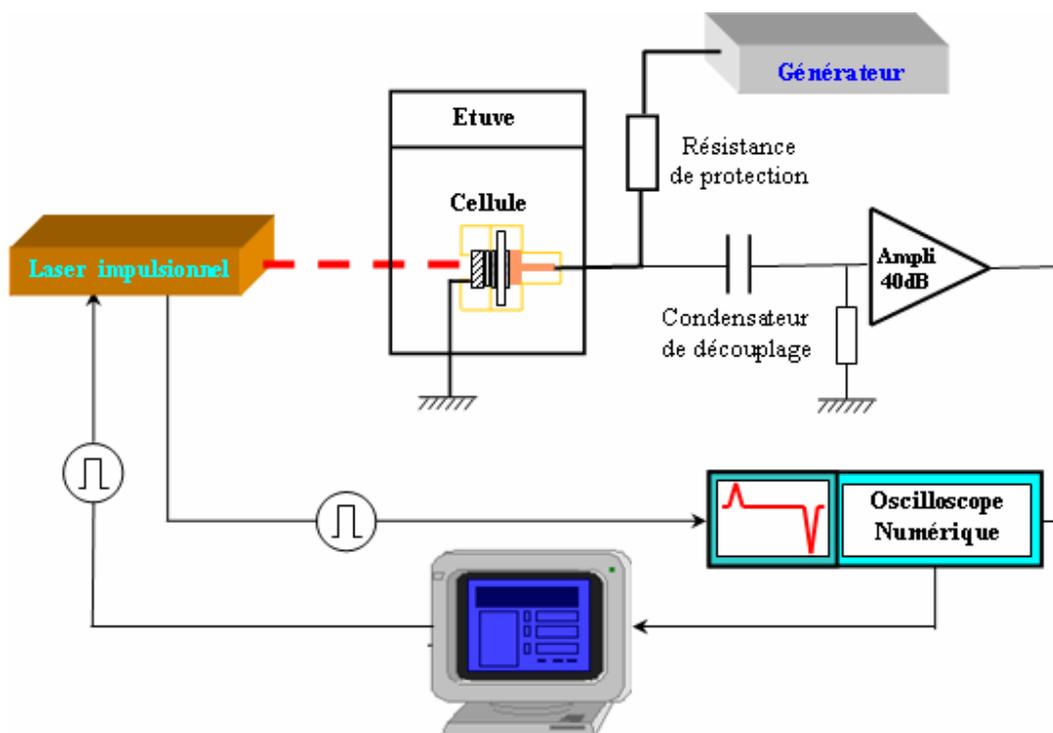


Figure 3- 1 : Synoptique du système.

Un laser impulsionnel de type Nd-YAG, (modèle AL. 152C) de B.M.industries permet d'engendrer l'onde acoustique. Sa longueur d'onde est de 1064 nm. Le diamètre du faisceau est de 8 mm. L'énergie laser est réglable. Elle varie de 0 à 330 mJ. La Figure 3- 2 présente le profil temporel de l'impulsion laser à 240 mJ.

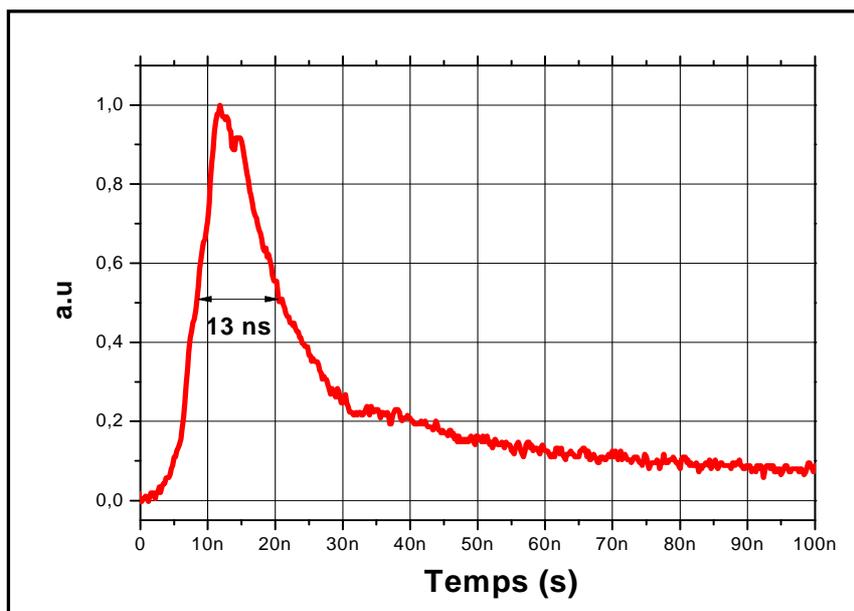


Figure 3- 2 : Exemple de profil temporel de l'impulsion laser à 240 mJ mesuré par photodiode (voir 3.3.3.)

Une cellule de mesure qui maintient l'échantillon verticalement est placée dans une étuve. La cellule se compose d'un corps cylindrique et d'une électrode haute tension en cuivre. L'isolation des différentes parties de la cellule sont assurées par du téflon. L'échantillon en PET métallisé sur ses deux faces est pris en sandwich entre l'électrode haute tension et une cible en aluminium. La cible est connectée à la masse. Un gel silicone entre la cible et le PET permet de s'affranchir de la réflexion totale de l'onde de pression à l'interface électrode/PET que provoquerait la couche d'air. L'épaisseur de la cible de 5 mm est suffisamment importante pour éviter de perturber la mesure lors des réflexions multiples entre la cible et le PET. A chaque mesure, la cible est recouverte d'encre de Chine pour augmenter la sensibilité de la mesure, puis nettoyée après chaque mesure pour assurer une bonne reproductibilité.

Une source de tension continue SPELLMAN SL 300 permet de fournir jusqu'à 100 kV. En pratique, en raison des risques de claquage et des courants de fuites dans la cellule de mesure, la tension maximale admissible est de 20 kV. Une résistance de protection de 1 M Ω permet d'augmenter l'impédance de court-circuit du générateur en cas de claquage. La polarité de la tension appliquée par rapport à la masse est ajustable.

Le courant à haute fréquence induit par la propagation de l'onde de pression dans l'échantillon est mesuré coté haute tension aux bornes de l'impédance d'entrée $r=50 \Omega$ de l'amplificateur faibles signaux (gain 40 dB, bande passante 40 kHz-100 MHz). Un condensateur de découplage (C=500 pF) isole la haute tension continue mais transmet les signaux rapides à l'entrée de l'amplificateur de mesure.

La chaîne de mesure constitue un filtre passe-bas (vis-à-vis du courant) dont la fréquence de coupure dépend de la capacité de l'échantillon : $\omega_c=1/\tau$ avec $\tau = \frac{r.C_s}{1 + \frac{C_s}{C}} \approx r.C_s$ si

$C_s \ll C$ (C_s : capacité de l'échantillon).

Le système est piloté par un ordinateur.

3.1.2. Nouveau système

Avec le dispositif de mesure précédent il apparaissait systématiquement sur le signal de mesure un deuxième pic de polarité opposée au pic principal. L'extraction du signal utile nécessitait un traitement numérique. Les causes de cette oscillation n'ont jamais été identifiées clairement.

L'opérateur lors des mesures doit déposer de l'encre de Chine sur la cible. L'épaisseur du dépôt n'était pas maîtrisée. En effet, la cible étant en position verticale, l'encre coulait après son application. La sensibilité de la mesure pouvait donc varier sur une série de mesures. La comparaison, sous différentes conditions expérimentales, du comportement d'un matériau pouvait donc être difficile si les mesures étaient proches.

Dans les applications industrielles, les matériaux sont soumis à des contraintes alternatives. Notre dispositif ne permettait pas la mesure des charges à 50 Hz.

Les inconvénients précités ont motivé notre choix de concevoir un système plus performant capable de réaliser des mesures sous contraintes continue et alternative avec une sensibilité contrôlée. Le nouveau système expérimental pour les mesures en continu est représenté sur la Figure 3- 3. La cellule (Figure 3- 4) est disposée désormais verticalement et la mesure se fait côté basse tension. Un miroir est placé à 45° par rapport à la direction du faisceau pour dévier le faisceau laser vers la cellule. L'épaisseur du dépôt d'encre de Chine est maîtrisée. Nous verrons dans le chapitre 4 les conditions qui permettent d'optimiser la sensibilité de la mesure. La nouvelle cellule de mesure intègre une capacité de 500 pF connectée entre la masse et la source haute tension.

Le bruit de fond maximal du système de mesure reste inchangé à $\pm 25 \mu V$.

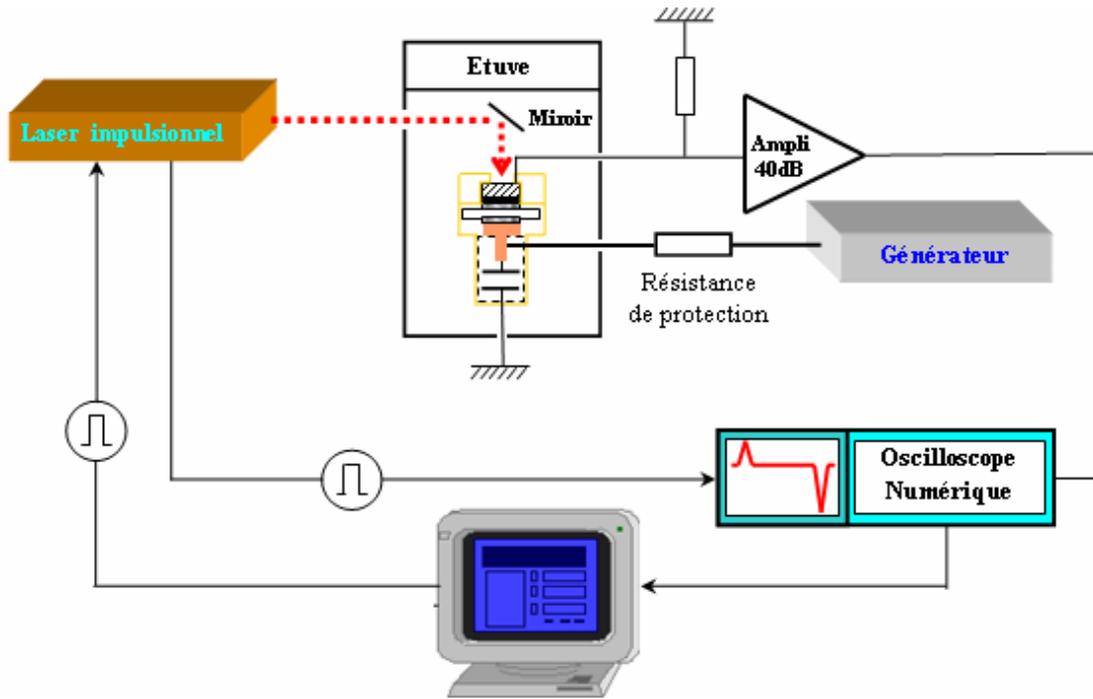


Figure 3- 3: Schéma de principe du nouveau système pour des mesures en continu et en alternatif.

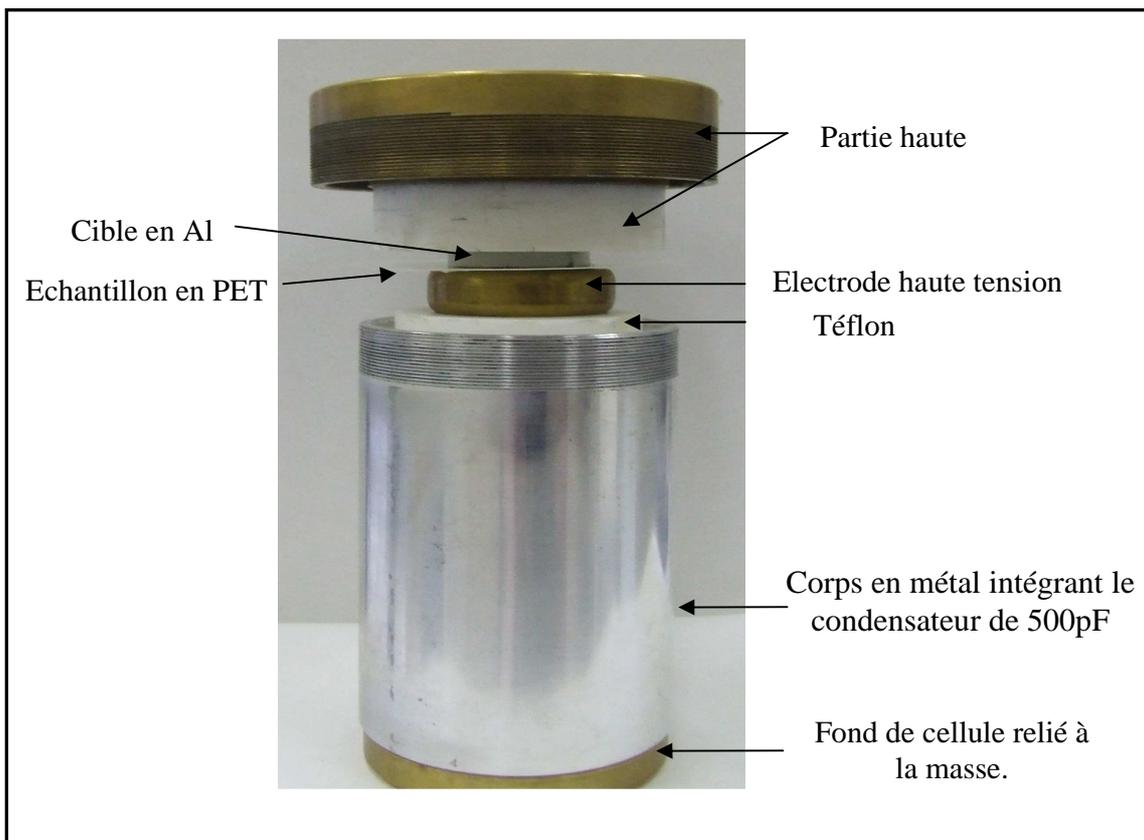


Figure 3- 4 : Cellule placée dans un cylindre en laiton.

3.2. DEVELOPPEMENT DU DISPOSITIF EN AC

3.2.1. Schéma de principe

L'avantage du montage précédent est de pouvoir être utilisé en AC et en DC. L'électronique de commande du dispositif est plus complexe pour les mesures en alternatif. Nous nous sommes en effet fixés comme objectif de pouvoir choisir la phase de l'instant du tir laser dans la période de la tension. La synchronisation de la phase de la tension et de l'instant du tir constitue l'élément le plus difficile à réaliser.

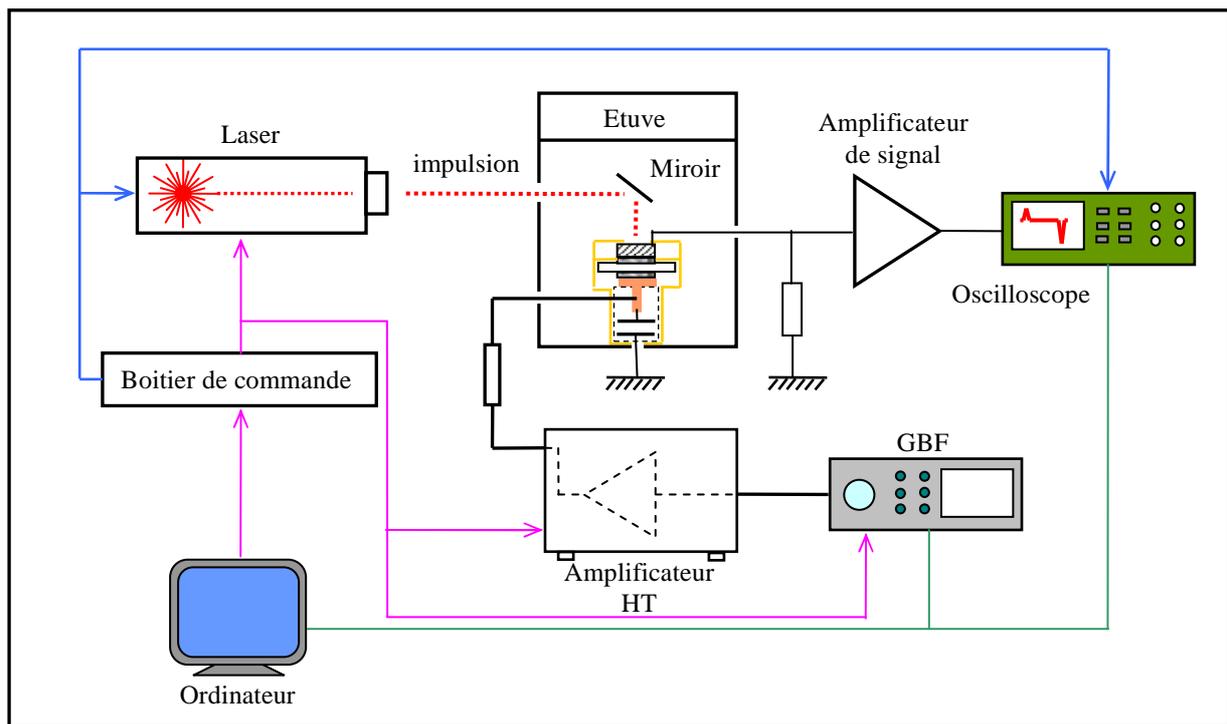


Figure 3- 5: Schéma de principe du dispositif de mesure sous tension alternative.

3.2.1.1. Description

La Figure 3- 5 présente le schéma de principe du dispositif de mesure des charges d'espace sous tension alternative. Le signal alternatif est généré par un générateur basse fréquence (WAVETEK Model 95) qui génère des signaux programmables de 1 MHz à 20 MHz. Les signaux qui peuvent être continus, sinusoïdaux, triangulaires ou carrés varient entre $1mV_{cc}$ et $30V_{cc}$. Les signaux générés sont amplifiés par un amplificateur de puissance haute tension (TREK Model P0983). La gamme de tension de sortie varie entre 0 et $\pm 30 kV_{cc}$. Un ordinateur pilote le générateur base fréquence (GBF), l'amplificateur de puissance, la source laser et l'oscilloscope. La commande est construite autour d'un microcontrôleur (PIC 16F877) et d'un circuit logique programmable complexe CPLD (ALTERA EPM 9828.). Le logiciel de pilotage a été développé par le service électronique de l'équipe Matériaux Diélectriques et Electrostatiques (MDE) du laboratoire G2Elab.

La Figure 3- 6 présente l'interface du logiciel de pilotage. Les Figure 3- 7 et Figure 3- 8 présentent respectivement l'interface pour les mesures de charges d'espace sous tensions continue et alternative.

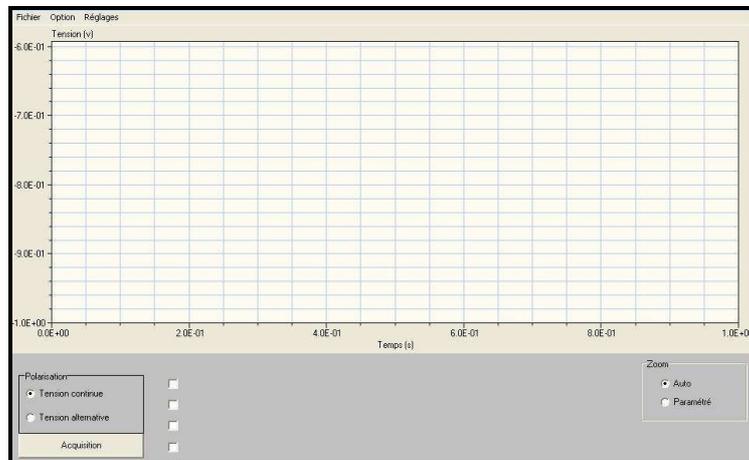


Figure 3- 6 : Interface du logiciel de pilotage

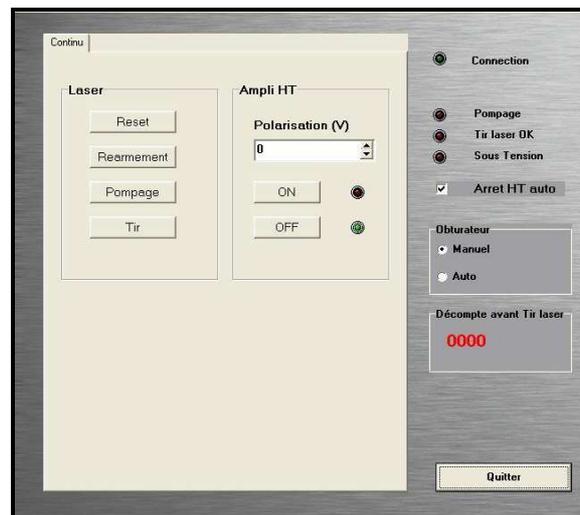


Figure 3- 7 : Interface de commande sous tension continue

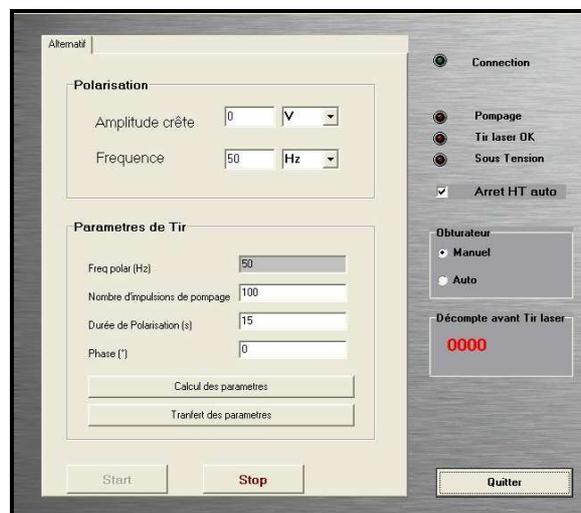


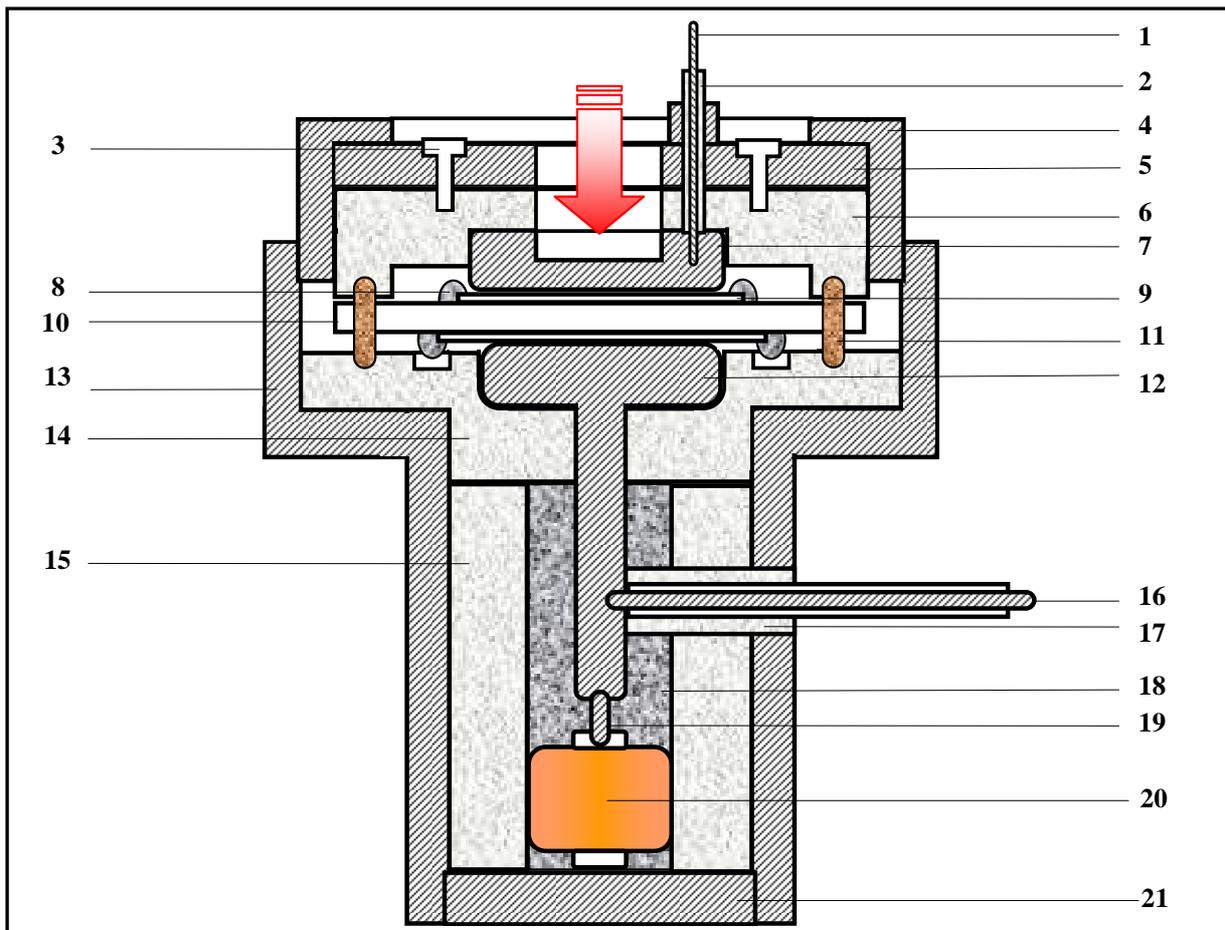
Figure 3- 8 : Interface de commande sous tension alternative

3.2.1.2. Fonctionnement du système sous tension alternative.

Le système actuel est conçu pour fonctionner sans atténuation par le circuit RC de la tension fournie par l'amplificateur. La tension n'est donc pas mesurée. Le choix des composants actuels résulte d'un compromis entre la gamme de fréquence de mesure et le bruit de mesure. Il ne convient que pour les mesures à fréquences inférieures à 10^2 Hz et devra être revu pour les mesures à fréquence industrielle. Il permet de commencer l'étude de la transition entre tension continue et tension alternative. L'instant de la mesure choisi par l'expérimentateur est synchronisé par rapport à la phase de la tension (par exemple 0° , 10° , 20° , 30° , 45° , ...). Le programme prend en compte le temps de pompage du laser. Après le tir laser, en raison de manipulation sur la cellule, l'amplificateur de puissance est coupé.

3.2.2. Cellule

La cellule pour les mesures sous tension alternative (Figure 3- 9) est identique à la cellule utilisée en continu. Sous tension alternative, des décharges partielles sont susceptibles d'apparaître. Pour augmenter la TADP (Tension d'Apparition des Décharges Partielles) nous avons injecté du gel silicone sous vide dans le corps de la cellule pour remplacer l'air. Le bord des électrodes métallisées est également une source d'activité de décharges partielles. La périphérie des électrodes a donc été revêtue d'une couche de silicone. Dans ces conditions, le TADP de la cellule est de $7 \text{ kV}_{\text{eff}}$.



- 1: Connecteur pour mesurer le signal du courant.
- 2: Isolant.
- 3: Vis pour fixer le couvercle en métal et l'isolant.
- 4,5: Couvercle en cuivre.
- 6: Couverture en téflon.
- 7: Cible en aluminium.
- 8: Gel silicone pour inhiber les décharges électriques.
- 9: Métallisation de la surface de PET.
- 10: Echantillon en PET
- 11: Pièces pour fixer la position de la plaque de PET
- 12: Electrode massive en cuivre
- 13: Corps en cuivre de la cellule.
- 14, 15, 17: Téflon.
- 16: Connecteur à haute tension.
- 18: Gel.
- 19: Connecteur entre l'électrode massive à la haute tension et le condensateur.
- 20: Condensateur céramique 50 kV, 500 pF.
- 21: Base connectée à la masse.

Figure 3- 9: Cellule pour les mesures sous tension alternative

3.3. AUTRES DISPOSITIFS DE CARACTERISATION ET DE MESURES

3.3.1. Mesure du courant

Le dispositif de mesure de courant est présenté sur la Figure 3- 10. Celui-ci se compose d'une source continue (Spellman) haute tension 20 kV, d'un filtre passe-bas haute tension de fréquence de coupure 10 Hz en série, d'une cellule contenant l'échantillon, elle-même placée dans une étuve, d'une résistance de filtrage et d'un système d'acquisition du courant. La cellule utilisée pour les mesures a été conçue pour recevoir des plaques. Elle se compose d'une électrode haute tension et d'une électrode basse tension gardée pour éliminer le courant de contournement. Les mesures sont effectuées à 60°C dans cette étude. La résistance présente sur le schéma est ajustée en fonction de la gamme de courant mesuré. La résistance a été choisie de façon à ne pas provoquer de chute de tension à ses bornes aussi bien pour le transitoire de courant que pour le courant de conduction. Cette résistance permet la diminution du bruit de mesure provoqué par l'alimentation haute tension en complément du filtre passe-bas. En effet, la tension continue délivrée par l'alimentation est issue d'une tension 50 Hz redressée et de faibles signaux 50 Hz sont observés si l'impédance de la chaîne de mesure est insuffisante. La résistance utilisée est de 3 G Ω dans la gamme 0,1 pA-2 nA. Les courants sont mesurés par un électromètre Keithley 6517A. L'ensemble est piloté sous Labview par un ordinateur.

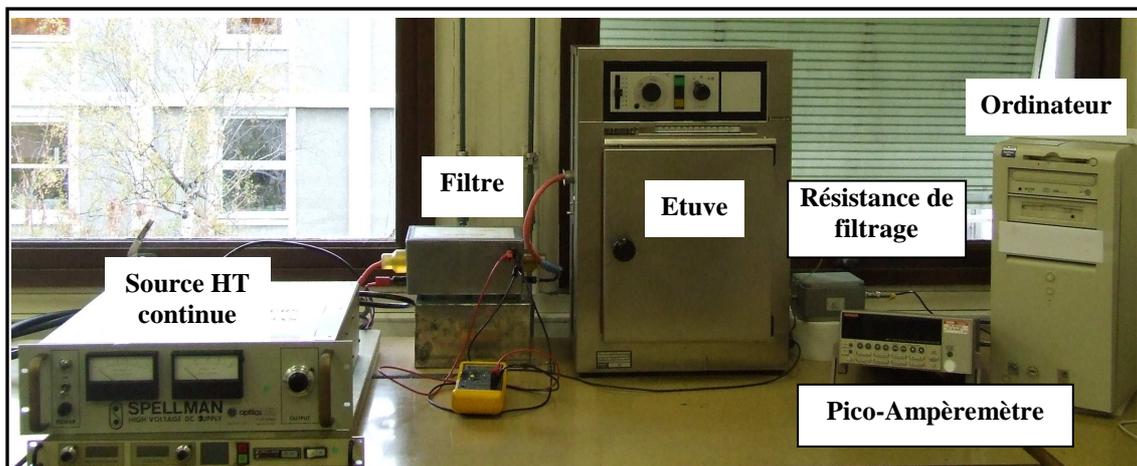


Figure 3- 10 : Dispositif pour la mesure du courant de conduction.

3.3.2. Mesureur d'énergie laser

Pour mesurer l'énergie de l'impulsion laser, nous avons utilisé un Joule-mètre Gentec EO de type QE25SP-H-MB (Figure 3- 11) qui permet d'effectuer des mesures d'énergie jusqu'à 600 mJ lorsque le faisceau laser frappe directement le capteur. La densité surfacique maximale d'énergie est de 7 J.cm⁻². Un atténuateur (QEA) placé entre la tête de mesure et le

faisceau permet d'ajuster la gamme d'énergie surfacique mesurée. Le Joule-mètre est connecté à un moniteur (de type SOLO 2) qui affiche et enregistre les résultats de mesure.

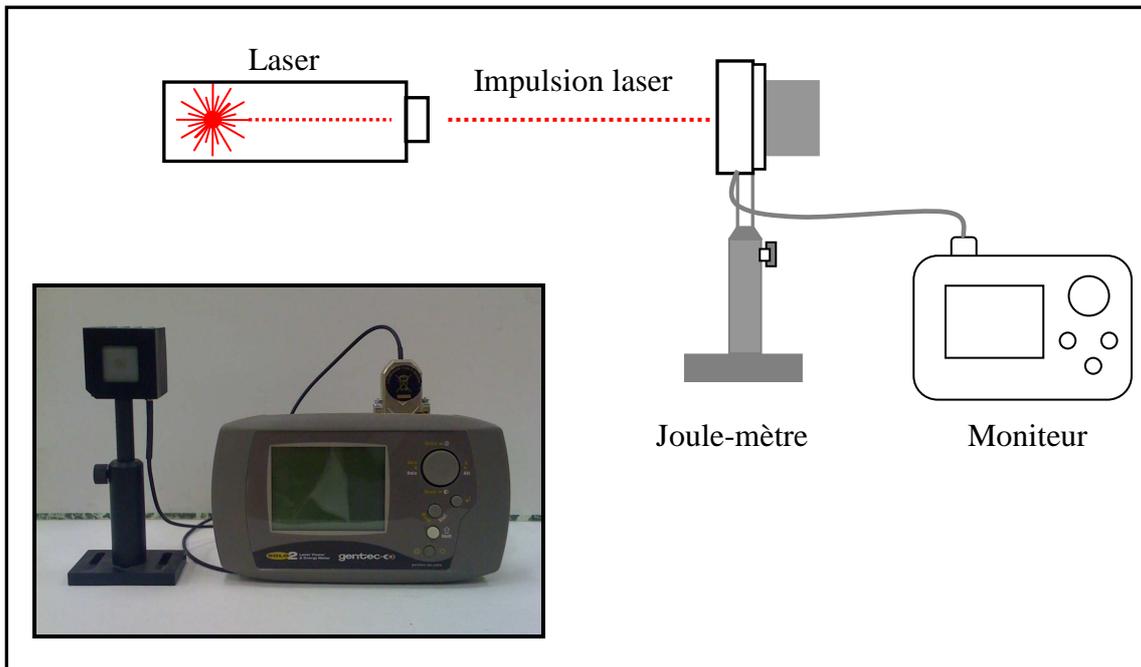


Figure 3- 11 : Système de mesure de l'énergie laser.

3.3.3. Mesure du profil temporel de l'impulsion laser

Le schéma de principe de la mesure du profil temporel de l'impulsion laser est présenté sur la Figure 3- 12. La déviation d'un faisceau laser par une plaque de polystyrène sur une photodiode permet de mesurer la réponse temporelle du laser. La photodiode est placée à quelques dizaines de centimètres de la plaque de polystyrène.

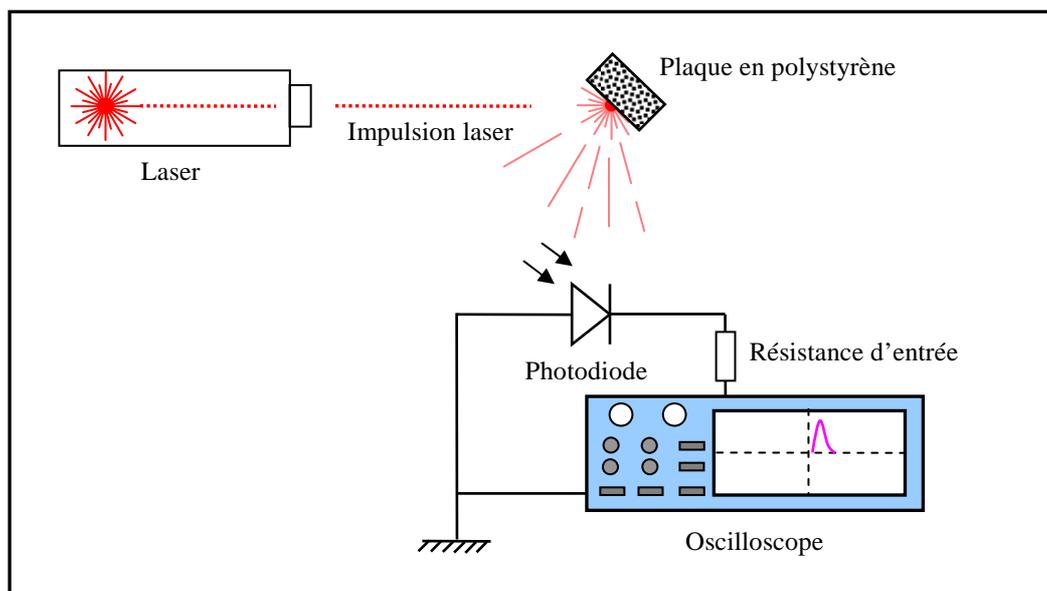


Figure 3- 12 : Schéma de principe de la mesure du profil temporel de l'impulsion laser.

3.3.4. Spectrophotomètres

Les coefficients d'absorption et de transmission des matériaux liquides ont été mesurés à 1064 nm avec le spectromètre Lambda 2 UV/VIS de PERKIN ELMER (Figure 3- 13). Il permet des caractérisations dans la gamme 190 nm-1100 nm.



Figure 3- 13: Spectrophotomètre Lambda 2 UV/VIS de PERKIN ELMER

Les changements chimiques post-vieillissements U.V. du PET ont été validés à partir du spectre infrarouge du PET. Un spectromètre FTIR Nicolet 380 (de la société Thermo Electron) (Figure 3- 14) permet de mesurer le coefficient d'absorption du PET dans la gamme de 4000 à 500 cm^{-1} .



Figure 3- 14 : Spectromètre infrarouge à transformée de Fourier Nicolet 380

3.3.5. Système de vieillissement UV

Le dispositif de vieillissement UV est un INVE 96 de Helios Italquartz (Figure 3- 15). Cet appareil comprend deux émetteurs UV à vapeur de mercure. Le spectre d'émission du dispositif est représenté sur la Figure 3- 16. Cet appareil permet également de programmer des contraintes thermiques.



Figure 3- 15: Dispositif de vieillissement UV.

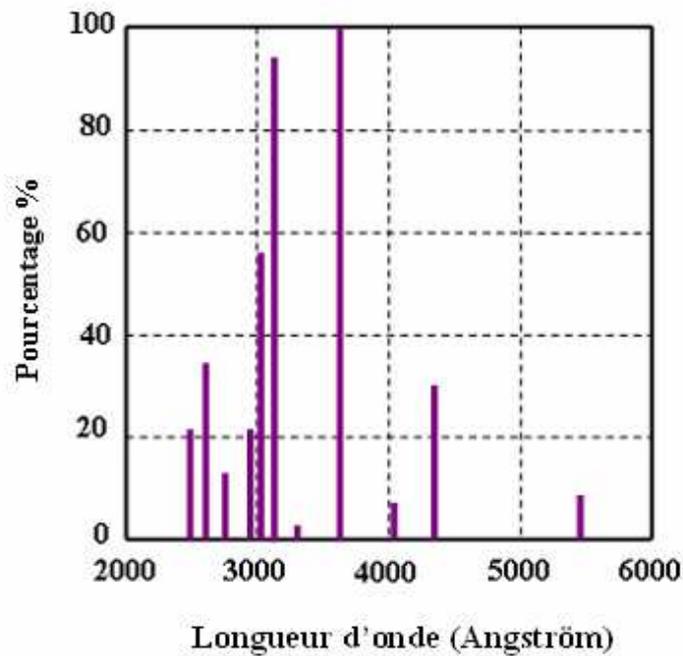


Figure 3- 16 : Spectre d'émission du dispositif de vieillissement UV.

3.3.6. Profilomètre

L'état de surface des films ou des électrodes a été caractérisé avec un profilomètre Dektak 3030 (Figure 3- 17) qui permet la mesure de hauteurs comprises entre 100 Å et 131 µm et de largeurs entre 50 µm et 50 mm.



Figure 3- 17 : Profilomètre Dektak 3030

3.3.7. Matériaux

Le polyéthylène téréphtalate (PET) est un thermoplastique hydrophobe dont le monomère est représenté Figure 3-18.

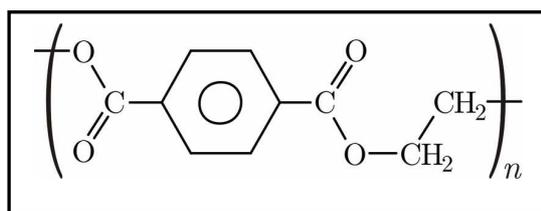


Figure 3- 18 : Formulation du PET

Le PET utilisé dans notre étude est un film semi-cristallin biaxialement étiré distribué par Goodfellow. Trois épaisseurs ont été utilisées : 300, 500 et 1000 µm. Le Tableau 3- 1 présente ses propriétés.

Tableau 3- 1 : Caractéristiques du PET (site de Goodfellow)

Caractéristiques physiques	
Densité	1,3-1,4 g.cm ⁻³
Chaleur spécifique	1300 J K ⁻¹ kg ⁻¹
Coefficient d'expansion thermique	(20-80).10 ⁻⁶ K ⁻¹
Conductivité thermique à 23°C	0,13-0,15W m ⁻¹ K ⁻¹
Absorption d'eau - équilibre	> 0,7 %
Absorption d'eau - sur 24 heures	0,1 %
Caractéristiques électriques	
Constantes diélectriques à 1 MHz	3,0
Facteur de dissipation à 1 kHz	0,016
Tenue diélectrique	17 kVmm ⁻¹
Résistivité de surface	10 ¹³ Ohm/carré
Résistivité volumique	10 ¹⁴ Ohm.cm

La température de transition vitreuse s'établit autour de 80°C et la température de fusion est de l'ordre de 260°C.

L'or, l'argent, l'aluminium et le nickel ont été utilisés comme métaux d'électrodes. Leur pureté est comprise entre 99,98 et 99,99%. Ils ont été déposés par évaporation à la pression de 2.10⁻⁵ Pa. Le diamètre des électrodes déposées est de 34 mm.

CHAPITRE 4 : ETUDE PHYSIQUE DE LA GENERATION DE L'ONDE DE PRESSION ET OPTIMISATION DES CONDITIONS EXPERIMENTALES

4.1. ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

De nombreux travaux ont été publiés dans la littérature sur la génération d'une onde de pression à partir de l'impact d'un faisceau laser sur une surface solide recouverte d'un liquide opaque [4.1-4.12] ou transparent [4.13-4.20] à la longueur d'onde du faisceau incident. Les mécanismes de génération de l'onde de pression dépendent des caractéristiques du faisceau et de celles du liquide. Les phénomènes de dilatation thermique [4.1, 4.2, 4.21, 4.22], d'évaporation, de formation de plasma [4.2, 4.23-4.28] et d'électrostriction [4.3, 4.29] sont les plus couramment cités.

4.1.1. Liquides transparents

4.1.1.1. Phénoménologie

Considérons le système constitué d'une cible solide recouverte d'un liquide. Ce liquide est supposé transparent à la longueur d'onde du faisceau laser utilisé. Après passage dans le liquide une fraction du faisceau est absorbée et l'autre réfléchi (Figure 4- 1).

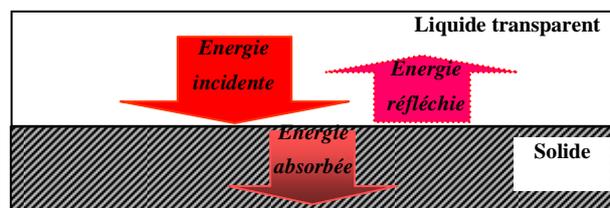


Figure 4- 1 : Le laser traverse intégralement l'épaisseur du liquide jusqu'à la cible où une fraction du faisceau est absorbée et l'autre réfléchi.

L'énergie absorbée par une mince couche de la surface de la cible donne lieu à une augmentation de la température de la cible. Le chauffage localisé de la surface de la cible génère une augmentation locale de température du liquide sur une faible épaisseur (Figure 4- 2). La dilatation du liquide et/ou de la cible et éventuellement l'évaporation du liquide produisent une onde de pression [4.13, 4.14, 4.30].

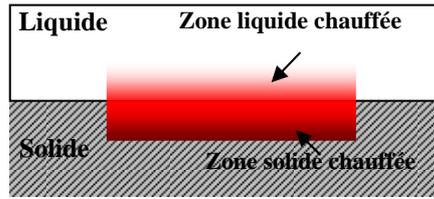


Figure 4- 2 : Processus de chauffage d'une mince couche à l'interface solide-liquide.

Deux cas sont à distinguer selon que l'énergie dépasse ou non le seuil de nucléation du liquide, c'est-à-dire le seuil d'énergie nécessaire à l'apparition et au développement de bulles gazeuses.

a. Energie inférieure au seuil de nucléation

Lorsque l'énergie transmise à la cible est inférieure au seuil de nucléation du liquide, le liquide est chauffé sans changement de phase. Dans ce cas seul un phénomène de dilatation génère l'onde de pression. Le processus de chauffage peut être normal ou anormal ; dans ce dernier cas l'élévation de température se fait très rapidement c'est le "surchauffage" (superheating) [4.30-4.32]. Ce mode est lié à la durée de l'impulsion laser. Le mécanisme de génération de l'onde de pression est contrôlé par la superposition du mécanisme de dilatation thermique du liquide et de dilatation thermique de la cible [4.30]. L'onde de pression produite par ces dilatations thermiques peut être déterminée à partir des variations de température et de densité de matière pour le liquide et la cible à l'interface.

b. Energie supérieure au seuil de nucléation

Lorsque l'énergie dépasse le seuil de nucléation, des bulles apparaissent à l'interface liquide/solide. Ce processus a été étudié par plusieurs auteurs [4.13, 4.30, 4.33-4.35]. Les bulles apparaissent et augmentent en taille (Figure 4- 3).

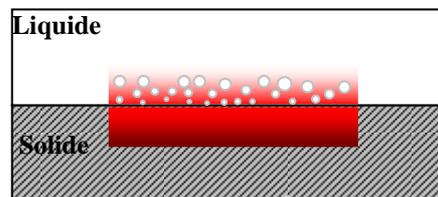


Figure 4- 3 : Processus de formation des bulles à l'interface solide/ liquide pour des énergies supérieures au seuil de nucléation

Si l'énergie est donc suffisante et si la densité de bulles est assez importante, les bulles coalescent et créent une couche de gaz entre la cible et le liquide. Si le phénomène se déroule dans une durée inférieure à la durée de l'impulsion laser, cette couche d'air réduit l'énergie absorbée à la surface de la cible en raison de la réflexion de l'énergie laser. En pratique la queue du faisceau laser ne conduira donc pas à une nucléation du liquide. Ces bulles cèdent

ensuite leur énergie au liquide et disparaissent sous l'effet de la pression hydrostatique et/ou de la condensation.

L'apparition et l'augmentation du volume des bulles peuvent générer des ondes de pression en compression. Le mécanisme de génération de l'onde de pression est donc contrôlé par la superposition des phénomènes de dilatation thermique de la cible et du liquide et par la vaporisation du liquide. La superposition des phénomènes de dilatation thermique et de vaporisation pour des énergies supérieures au seuil de nucléation permet d'obtenir un rendement plus important que dans le cas d'énergie inférieure au seuil de nucléation.

4.1.1.2. Analyse qualitative

La fraction d'énergie absorbée dépend de l'état de surface de la cible (rugosité) et de ses propriétés intrinsèques d'absorptivité à la longueur d'onde du laser [4.14].

Le seuil de nucléation dépend de la densité d'énergie absorbée par la cible par unité de surface et de la rapidité du dépôt de cette énergie par rapport aux temps de diffusion de la chaleur dans le solide et dans le liquide. L'énergie diffusera davantage pendant la durée de l'impulsion si celle-ci est longue. La température du liquide sera alors localement moins élevée et la nucléation plus difficile. La nucléation dépend donc de la durée de l'impulsion laser, de la nature du solide (conductivité thermique) et du liquide (capacité thermique et chaleur d'évaporation) et de l'état de surface de la cible [4.30]. La rugosité de la surface solide agit sur l'absorptivité de la cible mais également sur la distribution hétérogène de sites de nucléation [4.30]. L'énergie laser nécessaire pour obtenir un changement de phase du liquide dépendra de ces propriétés.

4.1.1.3. Estimation du seuil d'ébullition

Notre objectif est le calcul dans le cadre de certaines hypothèses du niveau minimal d'énergie du faisceau laser nécessaire pour atteindre la vaporisation par ébullition du liquide. Ce seuil théorique sera comparé aux seuils évalués de manière expérimentale dans le paragraphe 4.2.

a. Énergie absorbée par la cible

La durée de l'impulsion laser étant courte, typiquement inférieure à 10 ns, le processus de chauffage de la cible peut être considéré comme une transformation isochore. L'énergie absorbée par la surface de la cible est donnée par l'équation suivante :

$$Q_c = m \cdot C_v \cdot \Delta T = \rho_c \cdot V_c \cdot C_v \cdot \Delta T$$

équation 4- 1

Où :

Q_c : Energie absorbée par la surface de la cible [J].

C_v : Chaleur spécifique à volume constant de la cible [$J.kg^{-1}.K^{-1}$].

ΔT : Variation de température à la surface de la cible. [K].

m : Masse de la cible absorbant l'énergie laser [kg].

ρ_c : Densité volumique de la cible [$kg.m^{-3}$].

V_c : Volume de la cible absorbant l'énergie laser avec $V_c=A_L.\mu_{th}$ [m^3].

A_L : Surface du faisceau laser [m^2].

μ_{th} : Profondeur de pénétration thermique pendant la durée de l'impulsion laser (épaisseur absorbant l'énergie) [m].

La profondeur de la pénétration thermique est déterminée par la formule [4.36]

$$\mu_{th} = 2(D_c.\tau)^{1/2} \quad \text{équation 4- 2}$$

Où :

D_c : Coefficient de diffusion thermique de la cible [$m^2.s^{-1}$]

$$D_c = \frac{\kappa_c}{\rho_c.C_v} \quad \text{équation 4- 3}$$

κ_c : Conductivité thermique de la cible [$W.m^{-1}.K^{-1}$]

τ : Durée de l'impulsion laser [s]

Par exemple dans le cas de l'aluminium, on a en prenant $\tau = 8$ ns:

$$D_c = 10^{-4} m^2 s^{-1}$$

$$\mu_{th} = 1,8 \mu m$$

Dans le cas de l'eau, on a :

$$D_c = 1,410^{-7} m^2 s^{-1}$$

$$\mu_{th} = 68 \text{ nm}$$

On déduit :

$$V_c = 2.A_L.(D_c.\tau)^{1/2} \quad \text{équation 4- 4}$$

Finalement l'énergie Q_c absorbée par la cible peut se mettre sous la forme:

$$Q_c = 2.\rho_c.A_L.\left(\frac{\kappa_c}{\rho_c}.C_v.\tau\right)^{1/2}.\Delta T \quad \text{équation 4- 5}$$

b. Seuil d'ébullition

Seule une partie de l'énergie transportée par le faisceau laser est absorbée par la cible, l'autre partie est réfléchiée. L'énergie laser que la couche de la cible absorbe vérifie l'équation:

$$Q_c = \varepsilon_a \cdot E_L \quad \text{équation 4- 6}$$

Où :

E_L : Energie de laser [J].

ε_a : Absorptivité de la surface de la cible [sans unité].

L'ébullition du liquide débutera lorsque la température de la cible atteindra la température d'ébullition. L'énergie laser $E_{s\ th}$, conduisant à l'ébullition vérifie donc l'équation 4- 5 et l'équation 4- 6.

$$E_{s\ th} = 2 \cdot \frac{\sqrt{\rho_c \cdot \kappa \cdot C_v}}{\varepsilon_a} \cdot A_L \cdot \sqrt{\tau} \cdot (T_{\text{ébullition}} - T_{\text{initiale}}) \quad \text{équation 4- 7}$$

$E_{s\ th}$ dépend de:

- la nature de la cible (absorptivité, densité, chaleur spécifique, conductivité thermique).
- la durée de l'impulsion laser et le diamètre du faisceau laser
- la température d'ébullition du liquide.

4.1.2. Liquides opaques

4.1.2.1. Les différents mécanismes de génération.

Le mécanisme de génération de l'onde de pression pour les liquides opaques à la longueur d'onde du laser s'effectue à l'interface air/liquide. Le faisceau ne traverse plus le liquide. L'épaisseur de liquide qui absorbe l'énergie dépend de la pénétration optique du faisceau laser et des propriétés intrinsèques du liquide utilisé. L'état de surface du solide ne joue aucun rôle sur l'absorption du faisceau laser si la profondeur de pénétration optique est plus faible que l'épaisseur de liquide déposé sur la cible.

L'irradiation du faisceau laser à la surface du liquide génère les phénomènes décrits sur la Figure 4- 4 avec des effets thermiques et hydrodynamiques qui génèrent l'onde de pression [4.1, 4.2, 4.21, 4.22, 4.37].

L'absorption de l'énergie laser conduit à une augmentation de température. Il en résulte une dilatation thermique dans le volume d'absorption du faisceau qui produit une onde de pression se propageant à l'intérieur du liquide. Pour des énergies supérieures au seuil d'ébullition, le changement de l'état thermodynamique du liquide peut donner lieu à

l'expansion rapide de cavités vapeurs et à la vaporisation de la surface avec l'éjection violente d'un panache de vapeur. Cette éjection de matière produit une onde de pression vers le liquide par effet de recul (conservation de la quantité de mouvement). L'importance relative de chaque phénomène pour la génération de l'onde de pression dépend de la densité d'énergie absorbée.

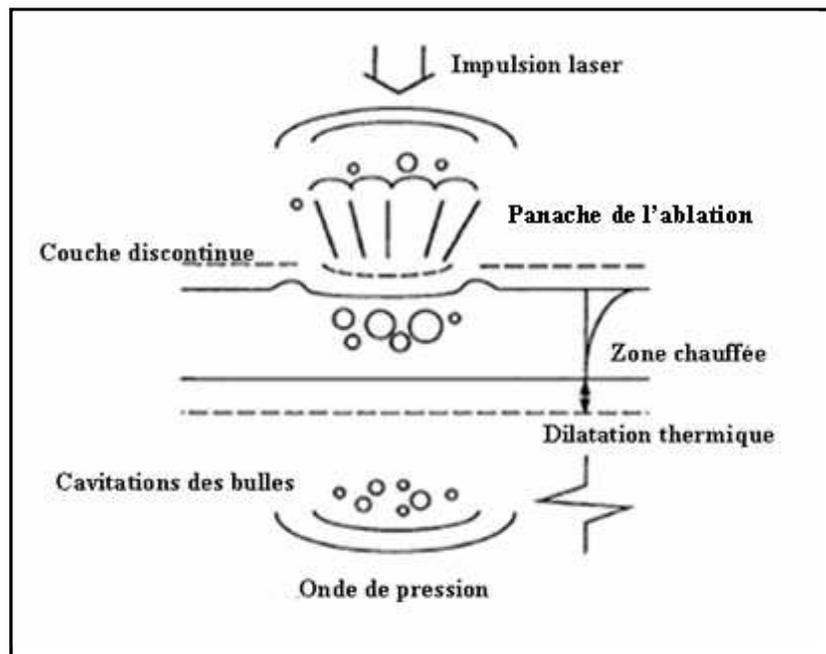


Figure 4- 4 : Phénomènes induits lors de l'impact du faisceau laser sur un liquide opaque. Génération de l'onde de pression [4.1].

Le mécanisme de la génération de l'onde de pression dépend de nombreux paramètres dont l'énergie laser, les caractéristiques du faisceau et les propriétés du liquide (coefficient de dilatation, coefficient d'absorption, température de vaporisation, ...).

Des études expérimentales et théoriques de l'interaction d'un faisceau et d'un liquide ont montré que la formation de plasma n'était effective que pour des intensités de laser supérieure à $10^{10} \text{ W.cm}^{-2}$ [4.22, 4.38]. La formation du plasma est le processus le plus efficace en terme de rendement énergétique opto-acoustique. L'efficacité de conversion peut aller jusqu'à 30% dans le liquide [4.2]. Notre dispositif expérimental permet d'atteindre une densité surfacique de puissance de l'ordre de 10^8 W.cm^{-2} . La formation de plasma est donc impossible avec notre dispositif.

La vaporisation des liquides contribue à la formation d'une onde de pression si la densité d'énergie laser absorbée par le volume du liquide excède un certain seuil dépendant

des propriétés thermiques du liquide [4.21, 4.29, 4.36]. L'efficacité de la conversion atteint alors au mieux 1% [4.2].

La contribution de la dilatation thermique (chauffage sans changement de phase) sur la génération de l'onde de pression est importante. Cela génère une onde acoustique qui se propage loin de la zone chauffée. Le processus de dilatation thermique domine la génération de l'onde de pression lorsque l'énergie laser est inférieure au seuil de vaporisation, c'est à dire lorsque la température à la surface de l'encre est inférieure à la température d'ébullition du liquide. Cependant, l'efficacité de la conversion de l'énergie est petite, typiquement inférieure à 0,01% [4.2, 4.39]

4.1.2.2. Dilatation thermique du liquide

Le chauffage du liquide par l'irradiation d'une impulsion laser peut produire une onde de pression par dilatation thermique. L'amplitude et le profil de l'onde de pression dépendent de plusieurs paramètres. Dans ce paragraphe, nous allons estimer l'amplitude et le profil de l'onde de pression [4.1].

a. Amplitude de l'onde de pression

Considérons l'hypothèse dite "de confinement de contrainte" définie par une durée d'impulsion laser très faible par rapport au temps de propagation de l'onde de pression dans le volume de liquide chauffé pour que la zone absorbée ne puisse pas dilater lorsque l'impulsion laser irradie soit [4.40] :

$$t^* = \frac{\tau}{t_r} \ll 1 \quad \text{équation 4- 8}$$

Où

t^* : Temps caractéristique [sans dimension]

t_r : Temps de relaxation ou de propagation de l'onde de pression dans le volume

de liquide chauffé, $t_r = \frac{1}{\mu_{opt}.c}$

c : Vitesse du son dans le liquide [$m.s^{-1}$]

μ_{opt} : Coefficient d'absorption optique [m^{-1}]

Le volume de liquide opaque qui absorbe l'énergie du laser est donné par:

$$Vol = \frac{1}{\mu_{opt}} . A_L \quad \text{équation 4- 9}$$

La dilatation thermique du volume chauffée s'écrit :

$$\Delta \text{Vol} = \beta_1 \cdot \text{Vol} \cdot \Delta T = \beta_1 \text{Vol} \frac{E_1}{\rho_1 \cdot \text{Vol} \cdot C_p} = \beta_1 \frac{E_1}{\rho_1 \cdot C_p} \quad \text{équation 4- 10}$$

Où

E_1 : Energie absorbée par le volume du liquide (J)

β_1 : Coefficient de dilatation thermique du liquide (K^{-1})

ρ_1 : Densité volumique du liquide ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)

C_p : Chaleur spécifique du liquide à pression constante ($\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)

La vitesse du son se propage seulement par compression. Si la vitesse du son $\Delta P_{\text{sonore}}/\Delta P_{\text{ambient}}$ n'est pas trop élevée, la compression et la détente du fluide peuvent être prises isentropiques et la vitesse du son est définie par [4.41]:

$$c^2 = dP/d\rho \quad \text{équation 4- 11}$$

Où

S : entropie du liquide. [J]

Soit

$$c^2 = \frac{dP}{d\rho_1} = \frac{dP}{d \frac{m}{\text{Vol}}} = \frac{dP}{-m \frac{d\text{Vol}}{\text{Vol}^2}} = - \frac{dP}{\rho_1 \frac{d\text{Vol}}{\text{Vol}}} \quad \text{équation 4- 12}$$

On déduit :

$$dP = \rho_1 \cdot c^2 \cdot \frac{d\text{Vol}}{\text{Vol}} \quad \text{équation 4- 13}$$

Soit

$$\Delta P = \rho_1 \cdot c^2 \cdot \frac{\Delta \text{Vol}}{\text{Vol}} \quad \text{équation 4- 14}$$

Cette expression de la variation de pression conduit en introduisant équation 4- 10 à :

$$\Delta P = \frac{\beta_1 \cdot c^2}{C_p} \cdot \frac{E_1}{\text{Vol}} \quad \text{équation 4- 15}$$

Soit

$$\Delta P = \frac{\beta_1 \cdot c^2}{C_p} \cdot \frac{E_1}{A_L / \mu_{\text{opt}}} \quad \text{équation 4- 16}$$

Si on considère qu'une fraction R_0 de l'énergie laser est réfléchiée:

$$\Delta P = \frac{\beta_1 \cdot c^2}{C_p} \cdot \frac{(1 - R_o) \cdot \mu_{opt} \cdot E_L}{A_L} \quad \text{équation 4- 17}$$

Soit

$$\Delta P = \frac{\beta_1 \cdot c^2}{C_p} \cdot (1 - R_o) \cdot \mu_{opt} \cdot F_L \quad \text{équation 4- 18}$$

Où :

E_L : Energie du faisceau laser [J].

R_o : Coefficient de réflexion optique à la surface du liquide opaque [sans dimension].

F_L : Densité d'énergie surfacique du faisceau laser (fluence) [$J \cdot m^{-2}$].

En introduisant le coefficient de Grüneisen Γ tel que $\Gamma = \frac{\beta_1}{\rho_1 \cdot \chi_1 \cdot C_p}$ [4.4] et en sachant

que dans le liquide $c = \sqrt{\frac{1}{\rho_1 \cdot \chi_1}}$ [4.42] où χ_1 est le coefficient de compressibilité du liquide

($\chi_1 = -\frac{1}{V} \left(\frac{\partial V}{\partial P} \right)_T$), l'expression de la variation de pression se met également sous la forme :

$$\Delta P = \Gamma \cdot (1 - R_o) \cdot \mu_{opt} \cdot F_L \quad \text{équation 4- 19}$$

L'amplitude de la pression produite par la dilation thermique est donc linéairement proportionnelle à l'énergie du laser. De plus, notons que la durée de l'impulsion de pression t_p peut s'écrire :

$$t_p = \frac{w}{\mu_{opt} \cdot c} \quad \text{équation 4- 20}$$

Où w est une constante comprise entre 4 et 6 [4.40].

En général, lorsque l'hypothèse dite "de confinement de contrainte" n'est pas réalisée l'amplitude de la pression thermo-élastique donnée par l'équation 4- 19 s'écrit :

$$\Delta P = f(t^*) \cdot \Gamma \cdot (1 - R_o) \cdot \mu_{opt} \cdot F_L \quad \text{équation 4- 21}$$

Où $f(t^*)$ est une fonction de t^* .

La variation de $f(t^*)$ en fonction du temps caractéristique t^* est donnée sur la Figure 4- 5

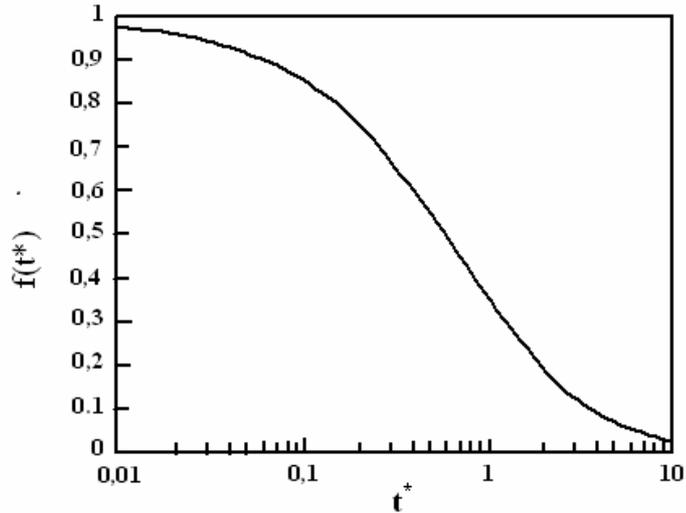


Figure 4- 5 : $f(t^*)$ en fonction de t^* [4.43]

b. Forme de l'onde de pression

Suite à la dilatation thermique du liquide opaque, le profil de pression peut être déduit à partir de l'équation de la chaleur. Si le diamètre du faisceau laser est très supérieur à la profondeur de pénétration optique et à la profondeur de pénétration thermique, la température peut être calculée en utilisant l'équation de conduction de la chaleur à une dimension [4.1, 4.31, 4.44-4.48].

$$\rho_1.C_p \cdot \frac{\partial T(x,t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_1 \frac{\partial T(x,t)}{\partial x} \right) + (1-R_o) \cdot \mu_{opt} \cdot I_L(t) \cdot e^{-\mu_{opt} \cdot x} \quad \text{équation 4- 22}$$

Où :

t : Temps [s]

D_1 : Coefficient de diffusion thermique du liquide [$m^2 \cdot s^{-1}$].

$I_L(t)$: Distribution temporelle de la puissance surfacique (intensité de l'énergie laser) [$W \cdot m^{-2}$]

x : Position [m].

T : Température [K].

Lorsque l'impulsion frappe la surface du liquide, le faisceau laser pénètre dans le liquide sur une profondeur $\frac{1}{\mu_{opt}}$ (pénétration optique). Pendant la durée τ de l'impulsion

laser, la profondeur de diffusion thermique est déterminée par $2 \cdot \sqrt{D_1 \cdot \tau}$. Dans la zone où

$\max\left(\frac{1}{\mu_{\text{opt}}}, 2\sqrt{D_1\tau}\right) < x^* < c\tau$ (Figure 4- 6), il n'y a pas d'absorption optique de l'énergie laser et de changement de température.

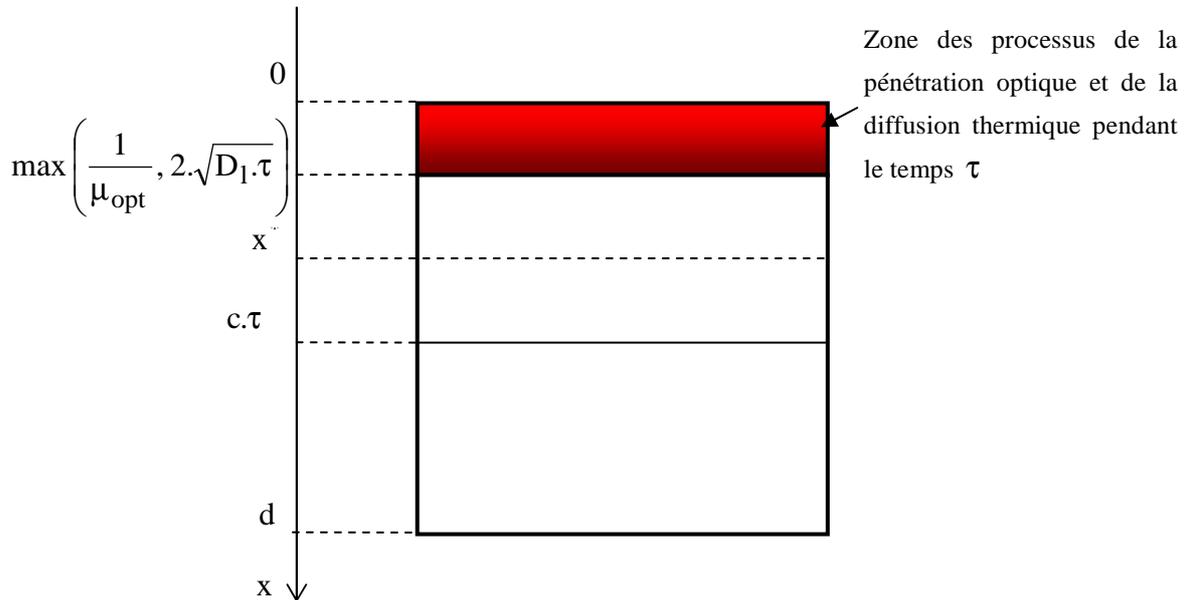


Figure 4- 6

A partir de l'équation 4- 22 et des conditions de continuité hydrodynamique d'Euler [4.14, 4.20, 4.51, 4.52], Samokhin et al [4.14, 4.20] ont donné le calcul approximatif de la pression dans la zone $\max\left(\frac{1}{\mu_{\text{opt}}}, 2\sqrt{D_1\tau}\right) < x^* < c\tau$:

$$P(x^*, t) = P(0, t) + \frac{\beta_1}{C_p} \left[\kappa \frac{\partial T}{\partial t} + \frac{1}{\mu_{\text{opt}}} \cdot \frac{\partial I_L(t)}{\partial t} \right] \quad \text{équation 4- 23}$$

Où

$P(0, t)$: pression à la surface du liquide absorbant.

A l'interface air-liquide, la surface du liquide étant libre, $P(0, t) = 0$ et dans la zone $\max\left(\frac{1}{\mu_{\text{opt}}}, 2\sqrt{D_1\tau}\right) < x^* < c\tau$, il n'y a pas d'absorption optique de l'énergie laser ni de changement de température. L'équation 4- 23 devient :

$$P(x^*, t) = \frac{\beta_1}{C_p} \left[\frac{1}{\mu_{\text{opt}}} \cdot \frac{\partial I_L(t)}{\partial t} \right] \quad \text{équation 4- 24}$$

La pression se propage comme une onde progressive et peut s'écrire ;

$$P(x^*, t) = P(t - x^*/c) = \frac{\beta_l}{C_p} \left[\frac{1}{\mu_{opt}} \cdot \frac{\partial I_L(t)}{\partial t} \right]$$

Mathématiquement, si $I_L(t)$ qui correspond à la distribution temporelle de l'intensité laser est une fonction temporelle paire, alors $P(t) = P(x^*, t)$ est une fonction temporelle impaire. Autrement dit, si l'impulsion laser $I_L(t)$ a une forme symétrique (de forme gaussienne ou de type fenêtre), la pression $P(x^*, t) = P(t)$ aura une forme symétrique bipolaire. Les autres calculs théoriques reportés dans [4.1, 4.3, 4.21, 4.37, 4.49, 4.50] et les résultats expérimentaux [4.1, 4.4, 4.5, 4.7, 4.9] associés ont permis de mettre en évidence une forme symétrique bipolaire de l'onde de pression. La Figure 4- 7 représente le profil de la pression normalisée, selon l'équation 4- 19, induite par la dilatation thermique lorsque l'impulsion du laser KrF (248 nm, 24 ns) irradie la solution aqueuse de K_2CrO_4 pour différentes longueurs de pénétration optique, obtenues avec différentes concentrations de sel. Pour une longueur de pénétration optique de $5,5 \cdot 10^4 m^{-1}$ et pour une énergie surfacique (fluence) de $0,1 J \cdot m^{-2}$, la pression maximale est de l'ordre de 1MPa [4.1].

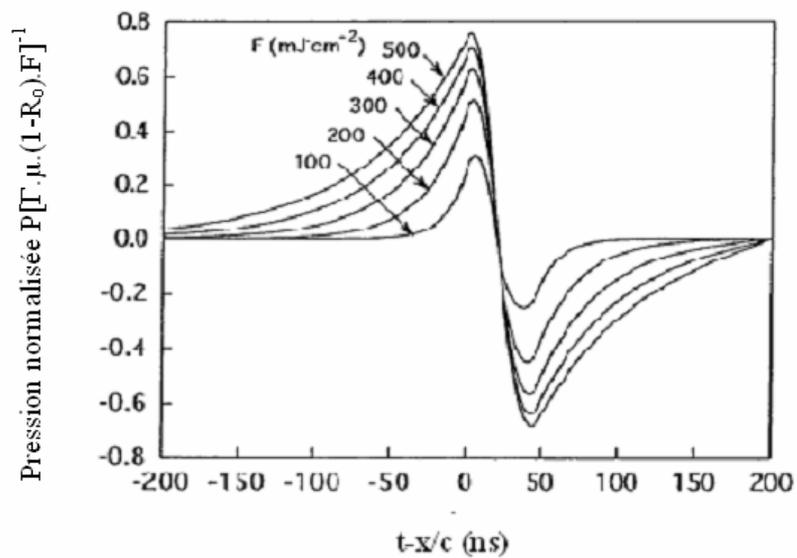


Figure 4- 7 : Profil temporel de la pression normalisée induite par la dilatation thermique lorsque l'impulsion laser de KrF (248 nm, 24 ns) irradie la solution de K_2CrO_4 avec différentes longueurs de pénétration optique, à $F \mu_{opt}$ constant [4.1]

En conclusion, si l'énergie laser est inférieure à l'énergie nécessaire pour vaporiser le liquide, l'onde de pression est contrôlée par la dilatation thermique du liquide. Dans ce cas, l'état de surface du liquide n'est pas affecté par l'impact du faisceau laser. L'onde de pression obtenue a une forme bipolaire si la distribution temporelle de l'intensité laser est paire. La partie positive de l'onde correspond à la dilatation du volume chauffé. La partie négative correspond à la compression du volume (Figure 4- 8).

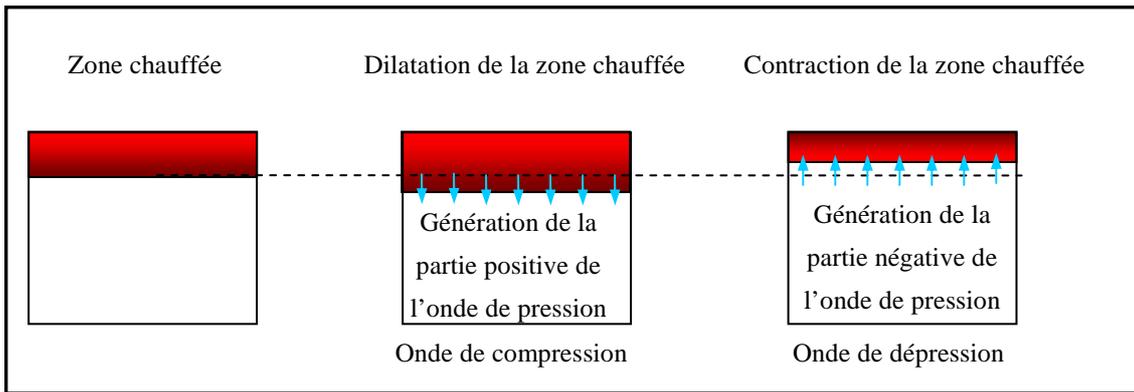


Figure 4- 8 : Dilatation et contraction de la zone chauffée qui génèrent respectivement la partie positive et négative de l'onde de pression.

4.1.2.3. Vaporisation

Pour une énergie laser supérieure au seuil de nucléation du liquide, la génération de l'onde de pression est produite par vaporisation. Différents phénomènes physiques peuvent intervenir.

Les gaz dissous ou d'autres hétérogénéités présentes dans le liquide favorisent la nucléation et donc la croissance des bulles de gaz. L'apparition et la dilatation de l'ensemble des bulles peuvent produire une onde de compression dirigée vers la cible qui se superpose à la partie positive de l'onde de pression produite par la dilatation du liquide (Figure 4- 9). En conséquence, l'onde de pression produite se compose d'une partie positive plus importante que la composante négative.

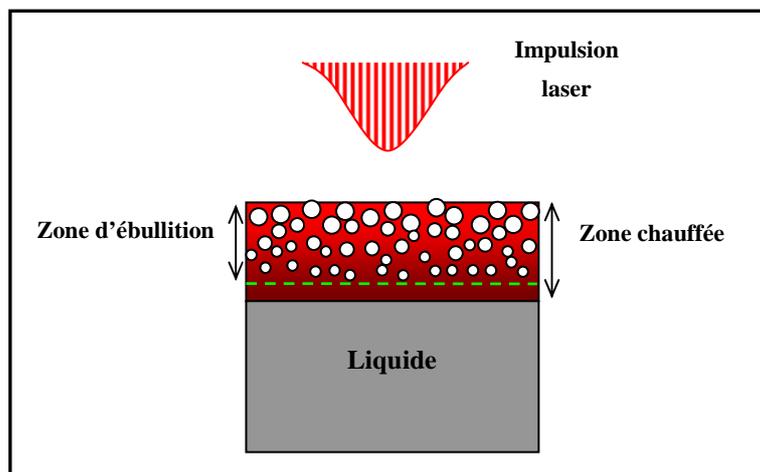


Figure 4- 9 : Génération d'une onde compressive par l'ensemble de la dilatation des bulles.

Les bulles formées se déplacent vers la surface du liquide où elles explosent. Cette explosion donne lieu à l'éjection d'un panache liquide/vapeur et donc à une ablation du liquide. Suite à l'effet de recul à la surface du liquide (conservation de la quantité de mouvement), une onde compressive se propage vers la cible. Cette onde se superpose également à la partie positive de l'onde de pression induite lors du phénomène de dilatation.

Le processus d'ablation modifie l'état de surface du liquide (Figure 4- 10 et Figure 4- 11). L'onde réfléchie à la surface du liquide est donc plus faible que dans le cas d'une surface plane. L'amplitude négative de l'onde de pression associée à la dilatation thermique est donc dégradée. Lors de l'ablation, l'onde générée par effet de recul et dirigée vers la cible participe à l'augmentation de l'onde de compression ; la composante positive de l'onde est donc amplifiée par l'ablation. Si la surface du liquide est complètement dégradée, la partie négative devient négligeable.

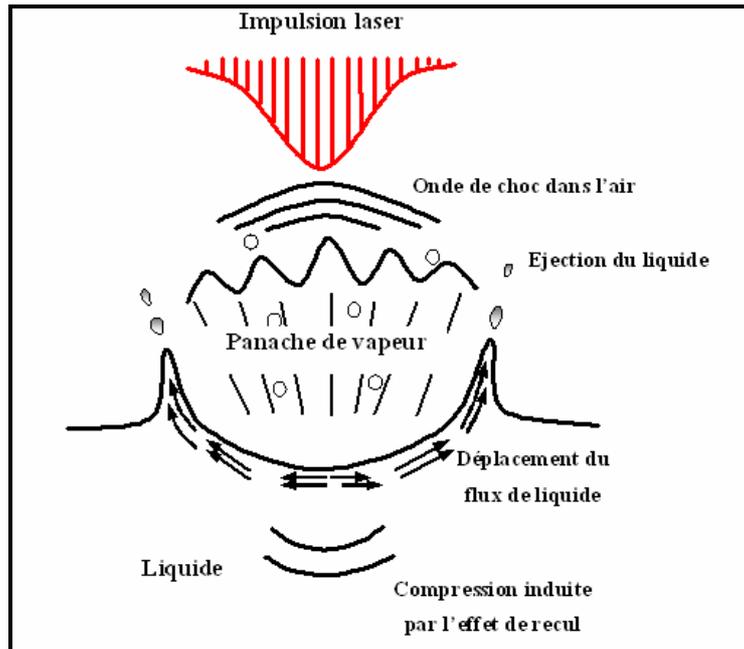


Figure 4- 10 : Onde de pression induite par l'ablation et l'éjection d'un panache de vapeur du liquide [1,22]

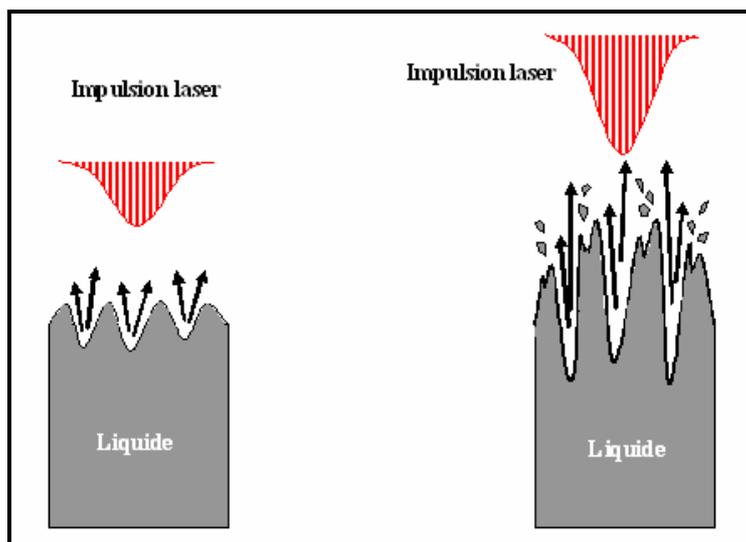


Figure 4- 11 : Onde de pression induite par l'ablation et l'éjection d'un panache de vapeur du liquide : plus l'énergie est forte, plus l'ablation est importante

4.2. RESULTATS ET DISCUSSION POUR LES LIQUIDES TRANSPARENTS

4.2.1. Résultats

4.2.1.1. Influence de la hauteur de liquide

Pour évaluer le rôle du liquide à la surface de la cible, nous avons comparé les réponses de la LIPP suite à des tirs directement sur cible (Figure 4- 12) ou sur des cibles recouvertes d'eau (Figure 4- 13).

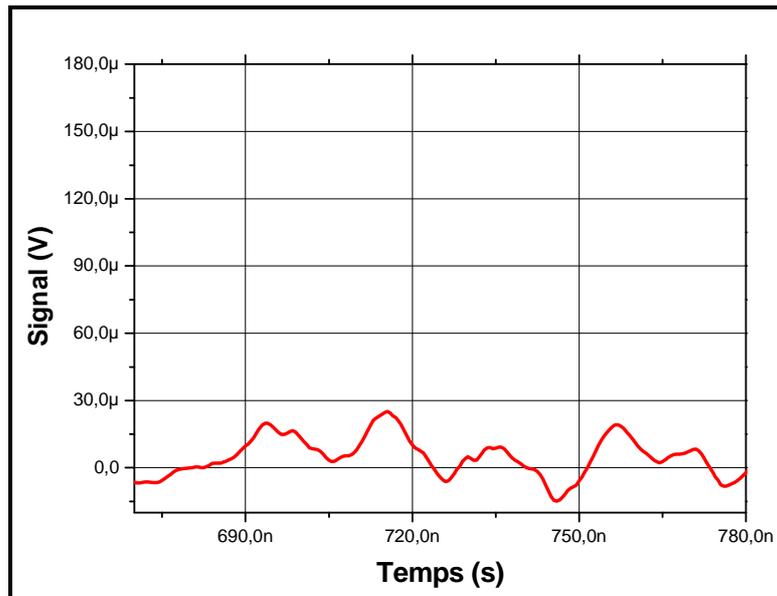


Figure 4- 12 : Signal obtenu sans liquide; 136 mJ ; cible en aluminium ; 20°C, 3kV ; PET 0,5 mm.

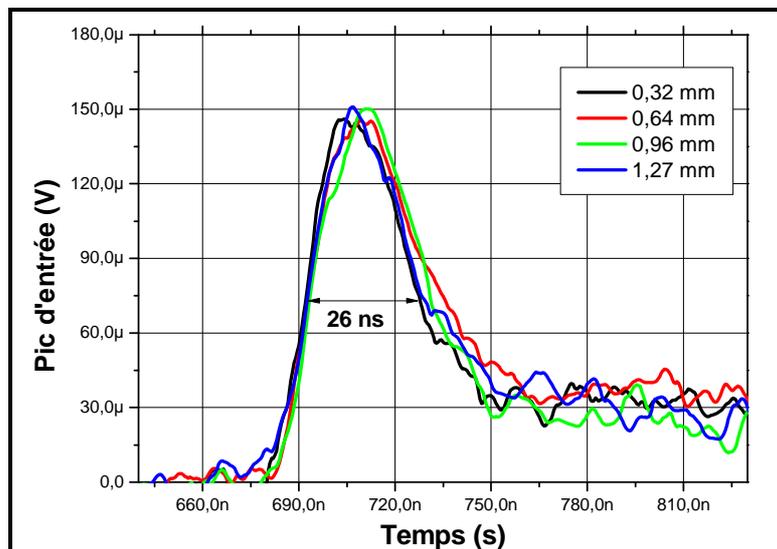


Figure 4- 13 : Pics d'entrée en fonction de la hauteur d'eau ; cible en aluminium ; 136mJ ; 20°C ; 3kV ; PET 0,5 mm.

Tous ces essais ont été réalisés à 20°C et pour une énergie laser de 136 mJ. La cible est en aluminium, l'échantillon de PET a pour épaisseur 0,5 mm, la tension appliquée est de 3 kV. Sans liquide, le signal obtenu reste dans le bruit de fond (autour de 25 µV). Aucune

onde de pression n'est générée. Par contre, lorsqu'une couche de liquide est déposée sur la cible, un signal est détecté. L'onde de pression est indépendante de l'épaisseur de liquide aussi bien en position qu'en amplitude. Nous avons choisi des hauteurs de liquides très différentes qui varient d'un rapport 4 entre la plus faible et la plus élevée. La génération de l'onde de pression a donc lieu à l'interface liquide-cible. Ceci est cohérent avec le spectre IR (Figure 4-14) réalisé sur une éprouvette d'eau qui montre que celle-ci est transparente à la longueur d'onde du laser (1064 nm).

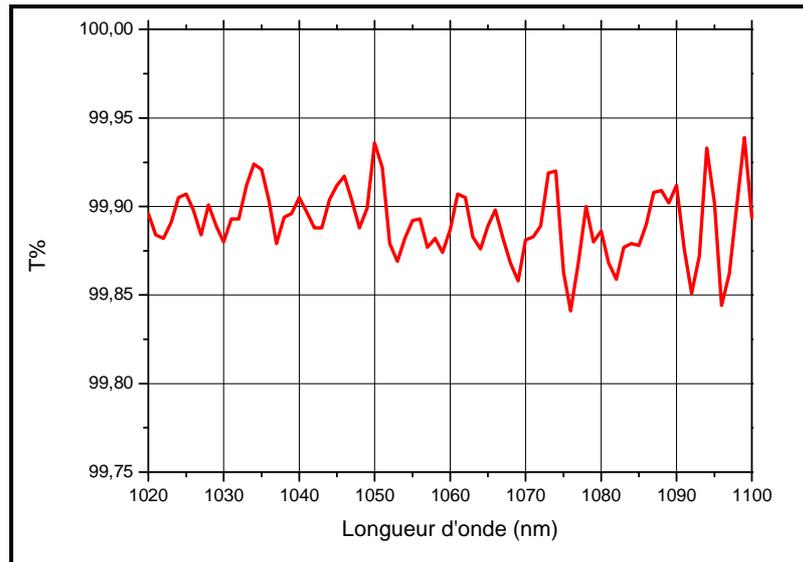


Figure 4- 14 : Transmission à travers 1mm d'eau en fonction de la longueur d'onde.

4.2.1.2. Influence de la nature des liquides

L'étude bibliographique a mis en évidence que l'onde de pression lors de l'interaction laser/liquide peut être initiée par la dilatation du liquide à l'interface cible/liquide et éventuellement renforcée par l'évaporation du liquide. L'énergie nécessaire pour obtenir l'ébullition d'un liquide dépend de ses propriétés intrinsèques. Nous avons testé plusieurs liquides pour déterminer les seuils de nucléations expérimentaux et mettre en évidence les mécanismes de génération de l'onde de pression. Pour cela la réponse de la LIPP a été mesurée en fonction de l'énergie laser, dans de l'eau et dans plusieurs hydrocarbures liquides transparents à la longueur d'onde du laser. Le pic d'entrée du signal obtenu avec la LIPP est proportionnel à la pression induite par l'impulsion laser lorsque le matériau est exempt de charge (voir §2.2). L'évolution de l'amplitude du pic d'entrée du signal LIPP en fonction de l'énergie laser peut potentiellement permettre d'identifier le nombre de mécanismes à l'origine de l'onde de pression ainsi que les seuils de nucléation. Des mesures IR (Figure 4-15) ont confirmé que les hydrocarbures choisis n'absorbaient aucune énergie à cette fréquence.

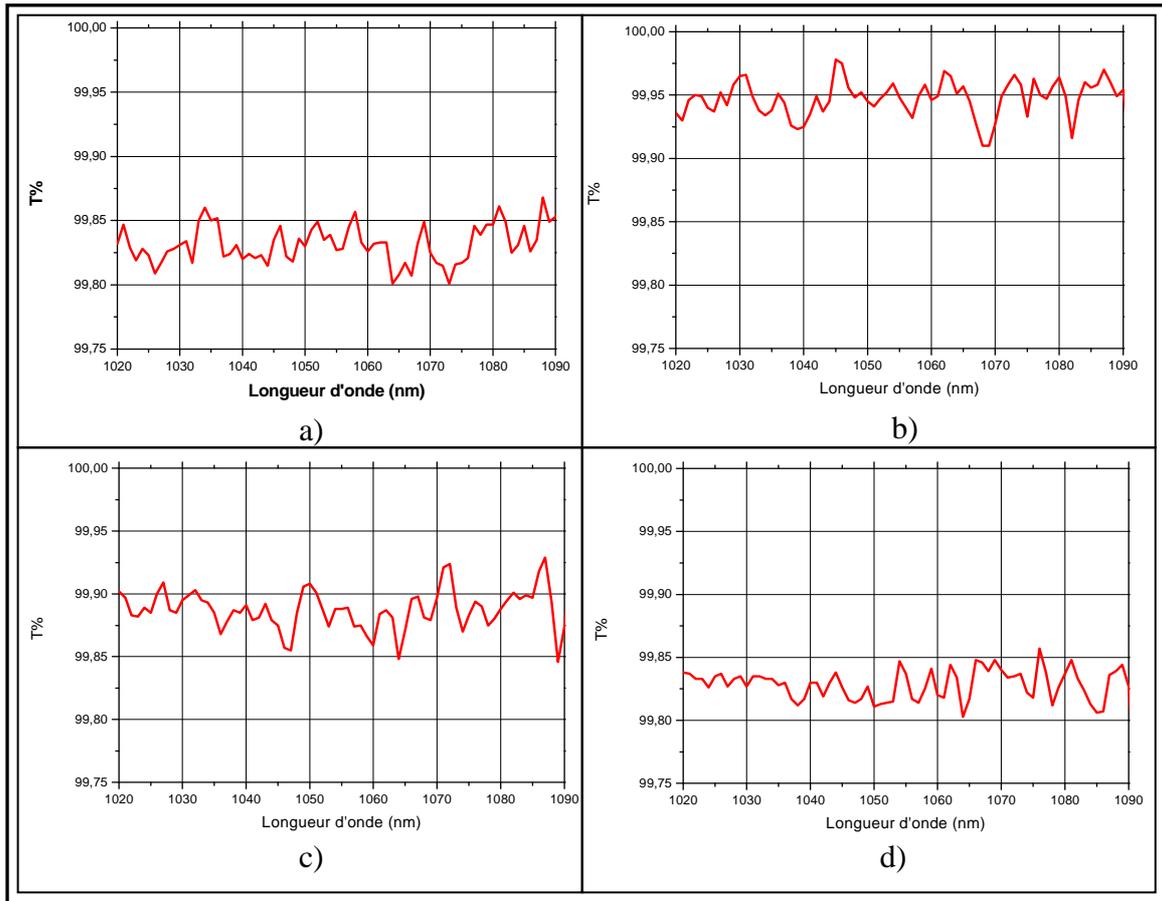


Figure 4- 15 : Transmission à travers 1mm a) d'isooctane, b) de cyclooctane, c) de decane, d) de 2,2 diméthylbutane en fonction de la longueur d'onde

Les caractéristiques de la cible en aluminium sont données dans le Tableau 4- 1. L'absorptivité de la cible dans ce tableau est une valeur mesurée directement à partir de notre dispositif expérimental.

Tableau 4- 1 : Paramètres de la cible en aluminium.

Densité volumique ρ (kg.m ⁻³) [4.53]	2700
Chaleur spécifique C [J.kg ⁻¹ .K ⁻¹][4.53]	900
Conductivité thermique k [J.m ⁻¹ .s ⁻¹ .K ⁻¹] [4.53]	247,9
Absorptivité à 1,06 μ m [sans dimension] (valeur mesurée)	0,18

Les variations de l'amplitude du pic d'entrée à 20°C en fonction de l'énergie laser sont données Figure 4- 16 à Figure 4- 20 pour respectivement l'eau, l'isooctane, le cyclooctane, le décane et le 2,2 diméthylbutane. La hauteur de liquide a été fixée à 1,6 mm.

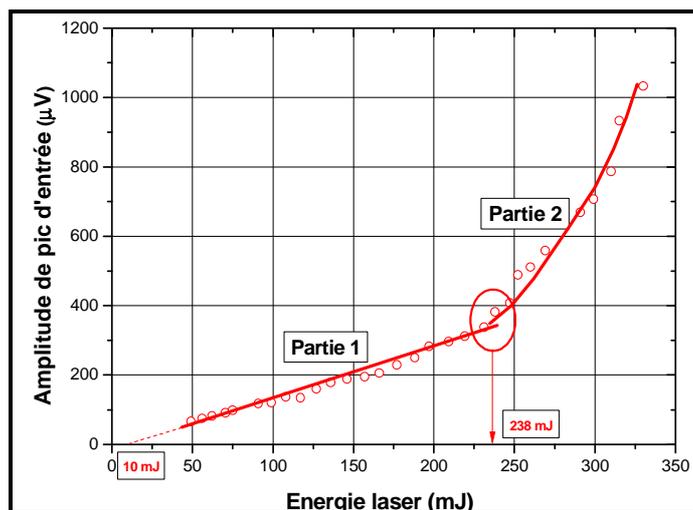


Figure 4- 16 : Amplitude du pic d'entrée en fonction de l'énergie du laser avec une hauteur d'eau de 1,6 mm sur la surface de la cible en aluminium; 20°C ; tension appliquée 3 kV ; PET 0,5 mm.

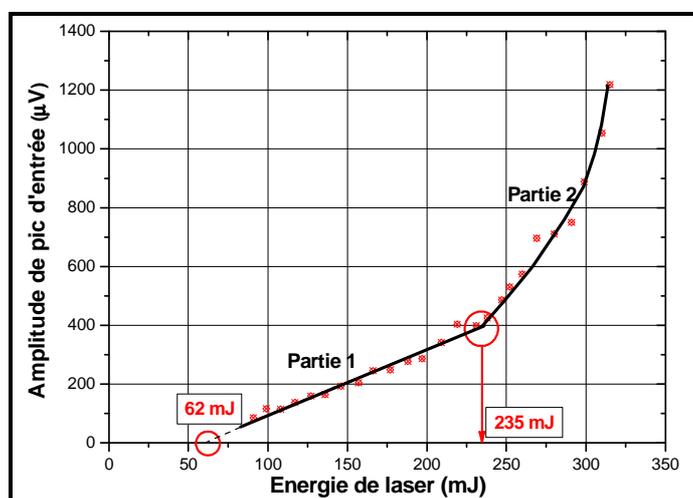


Figure 4- 17 : Amplitude du pic d'entrée en fonction de l'énergie du laser avec une hauteur d'isooctane de 1,6 mm sur la surface de la cible en aluminium ; 20°C ; tension appliquée 3 kV ; PET 0,5 mm.

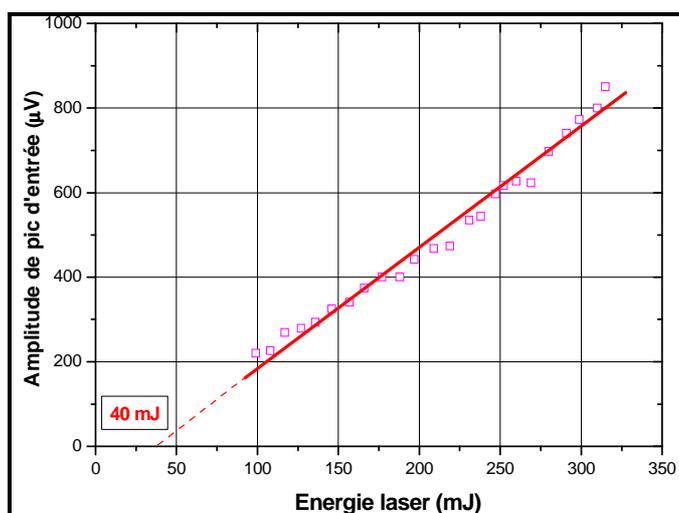


Figure 4- 18 : Amplitude du pic d'entrée en fonction de l'énergie du laser avec une hauteur de cyclooctane de 1,6 mm sur la surface de la cible en aluminium ; 20°C ; tension appliquée 3 kV ; PET 0,5 mm.

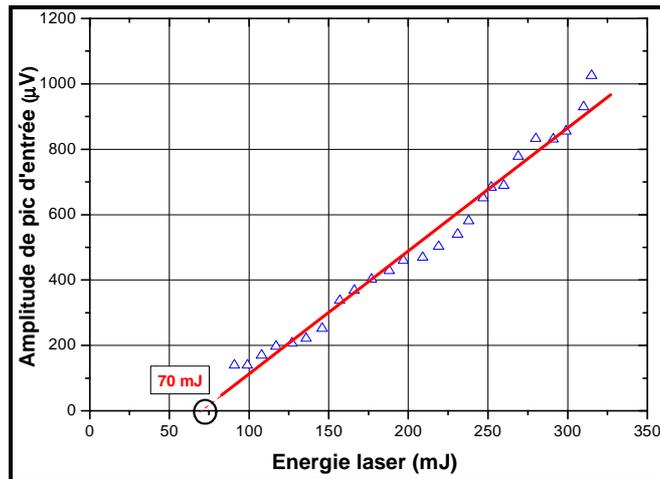


Figure 4- 19 : Amplitude du pic d'entrée en fonction de l'énergie du laser avec une hauteur de décane de 1,6 mm sur la surface de la cible en aluminium ; 20°C ; tension appliquée 3 kV ; PET 0,5 mm.

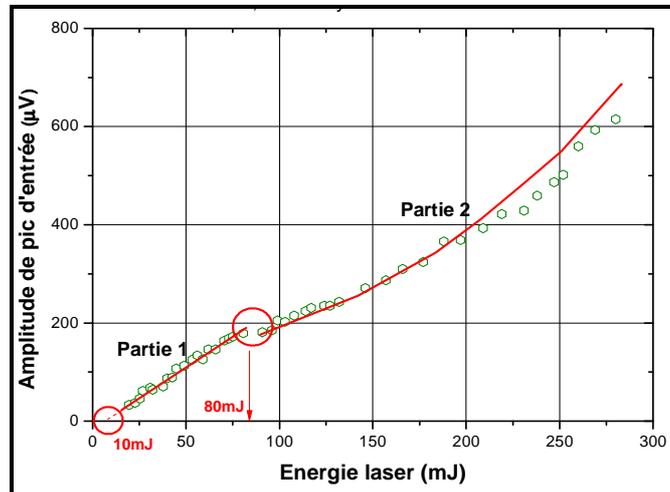


Figure 4- 20 : Amplitude du pic d'entrée en fonction de l'énergie du laser avec une hauteur de 2,2 dimethylbutane de 1,6mm sur la surface de la cible en aluminium ; 20°C ; tension appliquée 3 kV ; PET 0,5 mm.

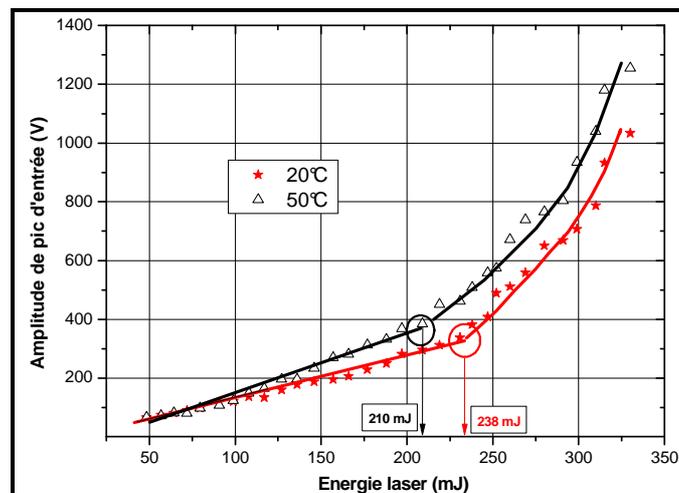


Figure 4- 21 : Comparaison des mécanismes de génération de l'onde pour l'eau à 20°C puis à 50°C. Cible aluminium; tension appliquée 3 kV ; PET 0,5 mm

Pour les mesures avec l'eau, l'isooctane et le 2,2 diméthylbutane, un seuil correspondant à un changement de pente dans la caractéristique linéaire met en évidence deux mécanismes de génération de l'onde de pression. La zone définie comme la partie 1 pourrait être liée à un phénomène de dilatation et la partie 2 à un mécanisme renforcé par la nucléation du liquide. Par contre, la réponse de la LIPP pour le cyclooctane et le décane ne présente qu'une seule zone linéaire. A priori, un seul mécanisme prévaudrait pour ces deux liquides dans la gamme d'énergie laser utilisée. L'énergie qui correspond aux changements de pentes peut être considérée comme un seuil. Ce dernier est comparé dans le Tableau 4- 3 avec les seuils théoriques déterminés à partir de l'équation 4- 7 et des propriétés des liquides regroupées dans l'annexe 1.

Tableau 4- 2 : Calculs des seuils théoriques d'ébullition des différents hydrocarbures liquides et de l'eau.

	Température d'ébullition (°C)	Température initiale de la cellule (°C)	Variation de température ΔT (°C) jusqu'à l'ébullition	Seuil (E) théorique de nucléation (mJ)
2, 2 dimethylbutane	49,73	20	29,73	32
Isooctane	99,3	20	79,3	84
Eau	100	20	80	85
Eau	100	50	50	52,8
Cyclooctane	151	20	131	138
Decane	174	20	154	163

Tableau 4- 3 : Synthèse des résultats obtenus dans les liquides transparents.

	Pente de la zone linéaire ($\mu V/mJ$)	Seuil expérimental (mJ) $E_{S_{exp}}$	Seuil théorique (mJ) $E_{S_{th}}$	Rapport $E_{S_{exp}} / E_{S_{th}}$
Isooctane	2,22	235	84	2,8
Eau 20°C	1,45	238	85	2,8
Decane	3,77	Non identifié	163	-
Cyclooctane	2,79	Non identifié	138	-
2,2 dimethylbutane	2,48	80	32	2,5

Un écart important apparaît entre les seuils théoriques calculés et les seuils expérimentaux déduits des caractéristiques. Néanmoins les seuils théoriques et expérimentaux sont dans un rapport relativement constant : $E_{\text{sexp}}/E_{\text{sth}} = 2,5 \text{ à } 2,8$. Ainsi des seuils théoriques proches entre deux liquides correspondent à des seuils expérimentaux également proches. D'autre part les courbes montrent que pour de très faibles énergies aucune pression ne peut être générée.

L'influence de la température sur les mécanismes de génération de l'onde acoustique a été étudiée pour une épaisseur d'eau de 1,6 mm à 50°C (Figure 4- 21). La comparaison des caractéristiques à 20°C et 50°C montre un déplacement du seuil vers les faibles énergies lors d'une augmentation de température. Le seuil de nucléation de l'eau à 50°C, toujours défini par la valeur à partir de laquelle la caractéristique ne suit plus une réponse linéaire, est évalué à 210 mJ. Ce seuil est beaucoup plus faible que celui mesuré à 20°C.

4.2.1.3. Influence de l'absorptivité de la surface de la cible

Nous avons vu dans le paragraphe 4.1.1.2.b (équation 4- 7) que le seuil de nucléation est en théorie inversement proportionnel à l'absorptivité (ϵ_a) de la cible pour les liquides transparents à la longueur d'onde du laser. Nous avons évalué la véracité de l'équation 4- 7 en mesurant les réponses de la LIPP suite à des tirs sur des cibles plus ou moins rugueuses en aluminium. La rugosité des cibles est modifiée par ponçage manuel à l'aide de papier de verre.

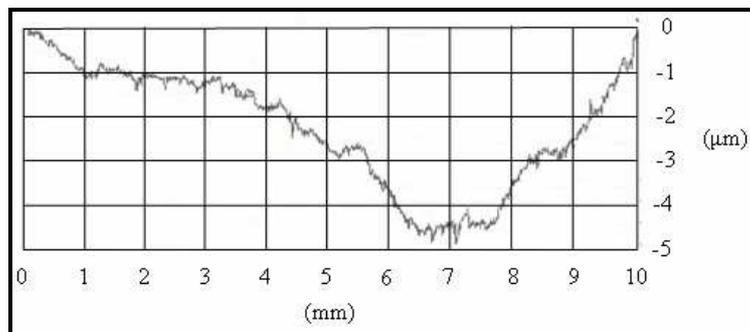


Figure 4- 22 : Exemple de profil de la surface d'une cible lisse

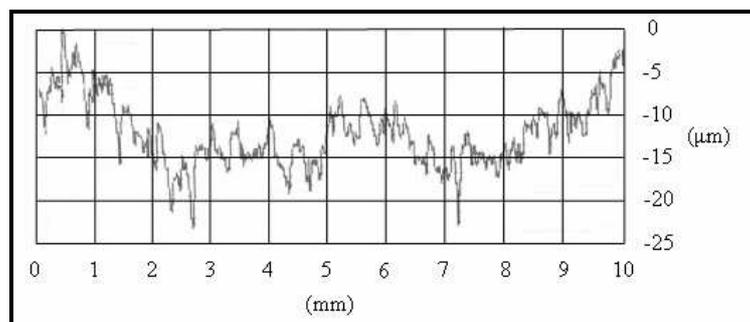


Figure 4- 23 : Exemple de profil de la surface d'une cible rugueuse

Les Figure 4- 22 et Figure 4- 23 montrent des exemples de profils de surface obtenus par profilométrie pour les deux cibles utilisées. Les absorptivités mesurées sont de 0,18 et 0,43 respectivement pour la cible lisse et la cible rugueuse.

Des essais ont été conduits à 20°C en utilisant une hauteur d'eau de 1,6 mm. L'amplitude du pic d'entrée de la réponse de la LIPP est représentée en fonction de l'énergie laser sur la Figure 4- 24 pour les deux cibles. L'amplitude du pic d'entrée est d'autant plus importante que la cible est rugueuse i.e. l'absorptivité grande. La sensibilité de la mesure augmente donc avec la rugosité de la cible. Cependant le seuil d'énergie apparaît au même niveau pour les essais conduits sur la cible "lisse" ou "rugueuse". Le changement de mécanisme d'excitation de l'onde de pression apparaît pour une énergie 238 mJ.

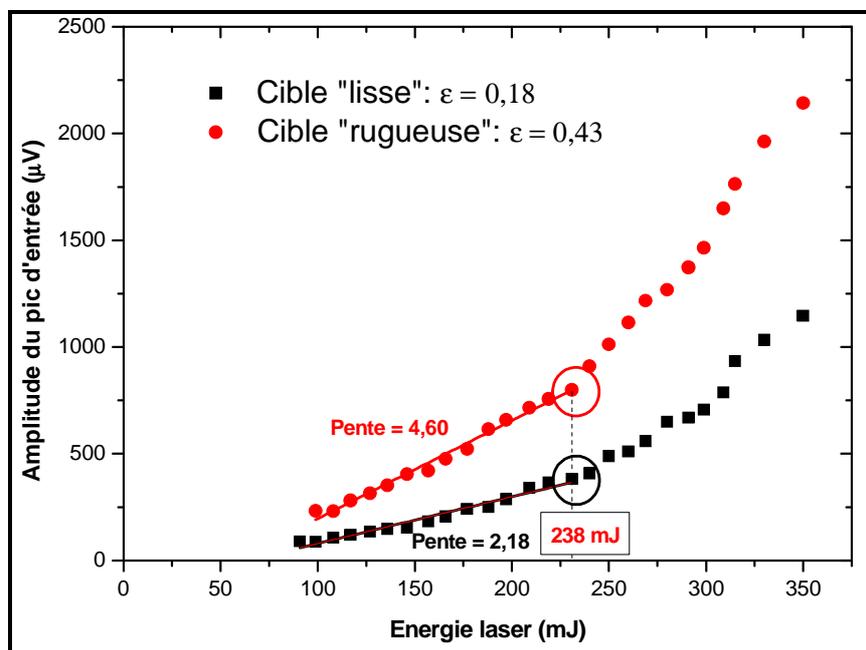


Figure 4- 24 : Amplitude du pic d'entrée en fonction de l'énergie laser pour deux cibles de même nature (Al) mais de rugosité différente.

4.2.2. Discussion

Les mesures obtenues permettent de tirer les deux conclusions suivantes :

- La pression est proportionnelle à l'énergie du laser pour un niveau d'énergie inférieur à un seuil qui varie avec la nature du liquide. Ce seuil a été attribué à l'énergie nécessaire pour obtenir l'ébullition du liquide. Dans tous les cas le seuil déterminé expérimentalement est plus grand que le seuil évalué théoriquement
- La rugosité de la cible joue un rôle sensible sur l'amplitude de l'onde de pression. Une cible plus rugueuse augmente la conversion opto-acoustique.

4.2.2.1. Discussion sur le seuil de nucléation

Le calcul développé pour déduire le seuil de nucléation théorique était basé sur un changement d'état lors d'un chauffage "normal" (par exemple pour l'eau, changement d'état à 100°C à 1 atm). Dans le cas d'un changement d'état "anormal", c'est-à-dire pour un surchauffage, le calcul du seuil de nucléation est modifié. Des détails sur le phénomène de "surchauffage" sont donnés dans [4.40].

Sur le diagramme de phase de l'eau (Figure 4- 25), la courbe solide A-C (ligne binodale) représente les couples pression/température pour lesquelles les phases liquide et gazeuse sont en équilibre. Les courbes B-C et D-C représentent les lignes spinodales. La ligne spinodale indique la limite des états métastables : quelles que soient les précautions prises, le liquide se transforme inmanquablement, au-delà de cette ligne, en glace ou en vapeur. Les courbes binodales et spinodales se rejoignent au point critique C, au-delà duquel aucune distinction thermodynamique ne peut être faite entre les phases vapeur et liquide.

Le point 1 (Figure 4- 25) correspond à un état du liquide en équilibre avec la vapeur ambiante à une température au-dessous de la température de saturation. Un changement d'état de l'eau (en phase liquide) apparaît quand la température du liquide atteint la température d'ébullition (point 2 sur la figure) si le liquide est chauffé normalement. Si le liquide est surchauffé, le changement de phase n'arrive qu'au point 3 (courbe C-B). Pour l'eau à la pression atmosphérique ($P=1 \text{ atm}$), la température au point 2 est 100°C (373K) et la température au point 3 est 259°C (532K) [4.54].

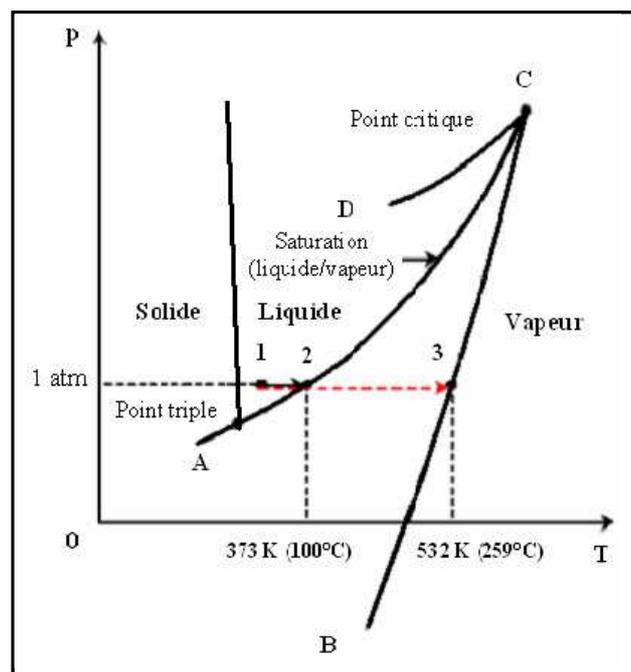


Figure 4- 25 : Diagramme pression-température de l'eau [4.40].

Sur la base de l'hypothèse d'un surchauffage, le seuil théorique de nucléation de l'eau a été recalculé en prenant une variation de température de l'ambiante (20°C) à 259°C (Tableau 4- 4). Le nouveau seuil calculé est de 254 mJ. Ce surchauffage théorique (85-254 mJ) est de 10% supérieur au surchauffage déterminé expérimentalement (85-238 mJ). D'une façon analogue, l'hypothèse d'une surchauffe conduit pour l'eau initialement à 50°C à une énergie seuil de 222 mJ. La valeur expérimentale de 210 mJ valide comme pour l'eau initialement à 20°C un changement de phase à proximité de la courbe spinodale.

Tableau 4- 4 : Comparaison entre les seuils de nucléation

	Seuil expérimental [mJ]	Seuil théorique pour le chauffage normal [mJ]	Seuil théorique pour le surchauffage [mJ]
Eau à 20°C	238	85	254
Eau à 50°C	210	53	222

4.2.2.2. Discussion sur la réponse linéaire de la LIPP

a. Pente de la partie linéaire.

Les évolutions de l'amplitude du pic d'entrée en fonction de l'énergie du laser données Figure 4- 16 à Figure 4- 21 montrent des seuils différents en fonction de la nature des liquides pour lesquels la tension (U) est proportionnelle à l'énergie fournie par le laser notée E_L . Cette proportionnalité peut s'écrire :

$$\frac{\Delta U}{\Delta E_L} = \frac{\Delta U}{\Delta P} \cdot \frac{\Delta P}{\Delta T} \cdot \frac{\Delta T}{\Delta E_L} \quad \text{équation 4- 25}$$

A partir de l'équation 2- 8, nous pouvons déduire que :

$$U(t) = Z \cdot i_{cc-sc}(t) = Z \cdot v_s \cdot C_o \cdot \chi \cdot G(\epsilon_r) \cdot E(0) \cdot P(0, t) \quad \text{équation 4- 26}$$

Où :

Z : impédance de mesure [Ω]

Si on suppose le matériau libre de charge alors $E(0)$ représente le champ appliqué noté E_a et l'équation 4- 26 s'écrit en utilisant les petites variations :

$$\frac{\Delta U}{\Delta P} = Z \cdot v_s \cdot C_o \cdot \chi \cdot G(\epsilon_r) \cdot E_a \quad \text{équation 4- 27}$$

Pour un matériau donné et un champ électrique appliqué fixé, $\frac{\Delta U}{\Delta P}$ est constant.

A partir de l'équation 4- 7 on peut déduire la relation entre la variation de la température et l'énergie laser E_L :

$$T - T_0 = \frac{\epsilon_a \cdot E_L}{2 \cdot A_L \cdot \sqrt{\kappa \cdot \rho_c \cdot C_v \cdot \tau}} \quad \text{équation 4- 28}$$

Ou

$$\frac{\Delta T}{\Delta E_L} = \frac{\partial T}{\partial E_L} = \frac{\epsilon_a}{2 \cdot A_L \cdot \sqrt{\kappa \cdot \rho_c \cdot C_v \cdot \tau}} \quad \text{équation 4- 29}$$

Avec une source laser donnée (les paramètres A_L et τ sont constants au premier ordre) et une cible donnée (κ , ρ_c , C_v , ϵ_a sont constants), $\frac{\Delta T}{\Delta E}$ est donc constant.

Lorsque l'onde de pression est contrôlée par le mécanisme de dilatation thermique du liquide, le rapport $\frac{\Delta P}{\Delta T}$ est proportionnel au coefficient β_1 de dilatation thermique du liquide et inversement proportionnel à la compressibilité du liquide : $\frac{\Delta P}{\Delta T} = \rho_1 c^2 \beta = \beta / \chi$ (voir § 4.1.2.2)

La pente de la partie linéaire de la courbe de l'amplitude du pic d'entrée en fonction de l'énergie laser est donc proportionnelle au coefficient de dilatation thermique β_1 du liquide.

Les pentes des parties linéaires et les coefficients de dilatation thermique des liquides à la température de 20°C sont présentés sur le Tableau 4- 5.

Tableau 4- 5 : Pentes des parties linéaires et coefficients de dilatation thermique pour les différents liquides

	$\frac{\Delta U}{\Delta E}$ ($\mu V/mJ$)	$\beta_1 * 10^4 (K^{-1})$	ρ ($kg \cdot m^{-3}$)	c ($m \cdot s^{-1}$)	$\frac{\Delta U}{\Delta E} / \rho_1 \cdot c^2 \cdot \beta \cdot 10^6$
Isooctane	2,22	12,59	690	1500	1,14
Eau	1,45	3,40	1000	1500	1,90
Decane	3,77	11,23	726	1500	2,06
Cyclooctane	2,79	-	834	1500	-
2, 2 dimethylbutane	2,48	14,90	791	1500	0,94

En prenant une vitesse constante de 1500 ms^{-1} dans les différents liquides, les rapports $\frac{\Delta U}{\Delta E} / \rho_1 \cdot c^2 \cdot \beta$ varient d'un facteur 2 ce qui montre qu'il n'y a pas de relation linéaire entre la pente $\frac{\Delta U}{\Delta E}$ et $\rho_1 \cdot c^2 \cdot \beta$. Cette différence pourrait être due à la variation du coefficient de dilatation thermique du liquide β_1 avec la température ou au surchauffage (superheating).

b. Seuil de dilatation thermique.

Théoriquement, si la génération de l'onde de pression est contrôlée par la dilatation thermique du liquide, la caractéristique de l'amplitude du pic d'entrée en fonction de l'énergie doit passer par le point (0,0), c'est-à-dire l'amplitude de l'onde de pression est nulle lorsqu'il n'y a pas d'énergie irradiée. Les résultats expérimentaux ne le confirment pas. La pression apparaît pour un seuil d'énergie supérieur à zéro. Ces seuils varient en fonction des liquides. Markus W. Sigrist [4.37] a étudié l'interaction de l'impulsion laser avec plusieurs liquides. Il a obtenu des résultats similaires aux nôtres où la pression induite par la dilatation thermique du liquide n'apparaît que lorsque l'énergie laser dépasse un seuil dépendant du liquide.

c. Influence du liquide.

Comme nous l'avons vu (Figure 4- 12), l'onde de pression générée sans utiliser un dépôt de liquide sur la cible a une amplitude qui ne permet pas d'obtenir un signal qui sort du bruit. Le coefficient de dilatation de l'aluminium ($23 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$) est 10 fois plus petit que les coefficients de dilatation des liquides utilisés. Les amplitudes obtenues avec 136 mJ dans les différents liquides justifient alors que le signal soit noyé dans le bruit.

4.2.2.3. Influence de l'absorptivité de la cible

Nous avons vu dans l'équation 4- 29 que $\frac{\Delta T}{\Delta E_L} = \frac{\epsilon_a}{2 \cdot A_L \sqrt{\kappa \cdot \rho_c \cdot C_V \cdot \tau}}$. Le signal mesuré

avec la LIPP dépend donc également de l'état de surface de la cible. Nous avons évalué la dépendance du signal en fonction de l'état de la cible.

Le Tableau 4- 6 représente la pente $\frac{\Delta U}{\Delta E}$, l'absorptivité ϵ , et le rapport entre ces deux paramètres.

Toutes choses égales par ailleurs, on vérifie que la sensibilité de la mesure $\frac{\Delta U}{\Delta E}$ est sensiblement proportionnelle à la rugosité de la cible.

Tableau 4- 6 : Correspondance entre la sensibilité de mesure $\frac{\Delta U}{\Delta E}$ et la rugosité de la cible.

	Pente $\frac{\Delta U}{\Delta E}$ ($\mu\text{V/mJ}$)	Absorptivité ε	$\frac{\Delta U}{\Delta E} / \varepsilon$
Cible rugueuse	4,6	0,43	10,7
Cible lisse	2,18	0,18	12,1

4.2.2.4. Conclusion

- L'onde de pression peut être produite par l'impact d'une impulsion laser à travers un liquide transparent déposé sur une surface métallique absorbante.
- L'onde de pression est produite à l'interface liquide/cible métallique.
- Le chauffage du liquide par l'impact de l'impulsion laser (8-14 ns) a lieu hors équilibre thermodynamique (liquide surchauffé).
- La rugosité de la cible augmente la sensibilité de la conversion d'énergie en augmentant l'absorption du faisceau laser.
- Le mécanisme de génération de l'onde de pression est contrôlé par la dilatation thermique du liquide si l'énergie laser est inférieure au seuil d'ébullition du liquide et par la vaporisation du liquide si l'énergie laser est supérieure.
- Le seuil d'ébullition dépend :
 - de l'absorptivité de la cible ;
 - des propriétés thermiques de la cible ;
 - des propriétés du liquide déposé sur la cible.

4.3. RESULTATS ET DISCUSSIONS POUR LES LIQUIDES OPAQUES

4.3.1. Résultats

4.3.1.1. Caractérisation de l'encre de chine à 1064 nm

Pour évaluer μ_{opt} , il est possible d'utiliser un système de mesures autour d'une photodiode. En effet, en comparant la réponse de la photodiode après un tir sur un verre transparent à 1064 nm et après un tir sur le même verre recouvert d'une couche d'encre de Chine, l'absorptivité du liquide peut être déduite. La plaque de verre utilisée absorbait 2% de l'énergie laser alors qu'une faible couche d'encre (20 μm) déposée sur le verre à l'aide d'un

pinceau conduit à une absorption de 99,3% de l'énergie incidente. La Figure 4- 26 montre le principe de mesure de l'absorption optique.

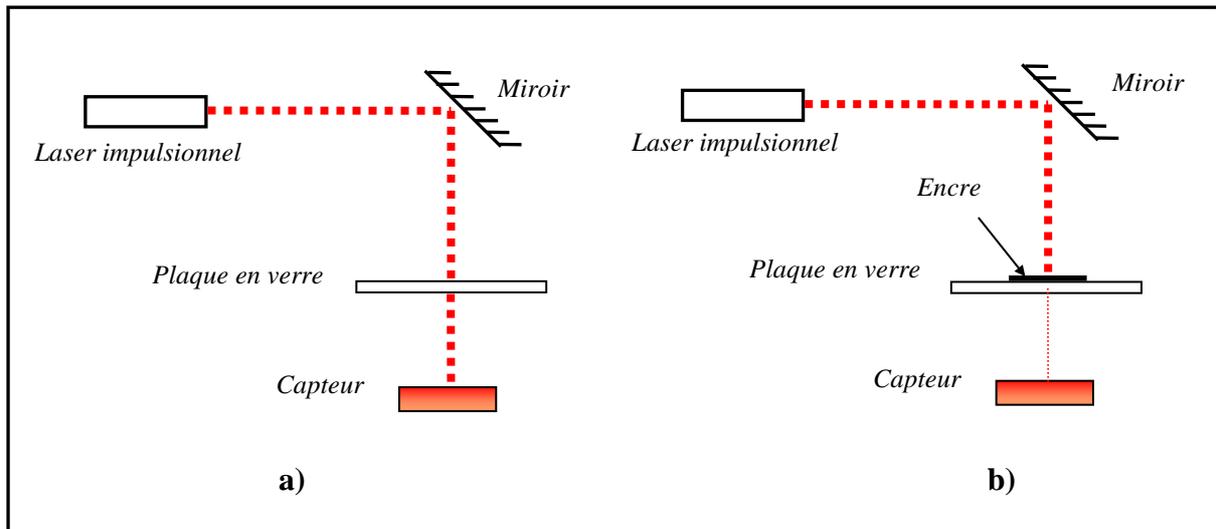


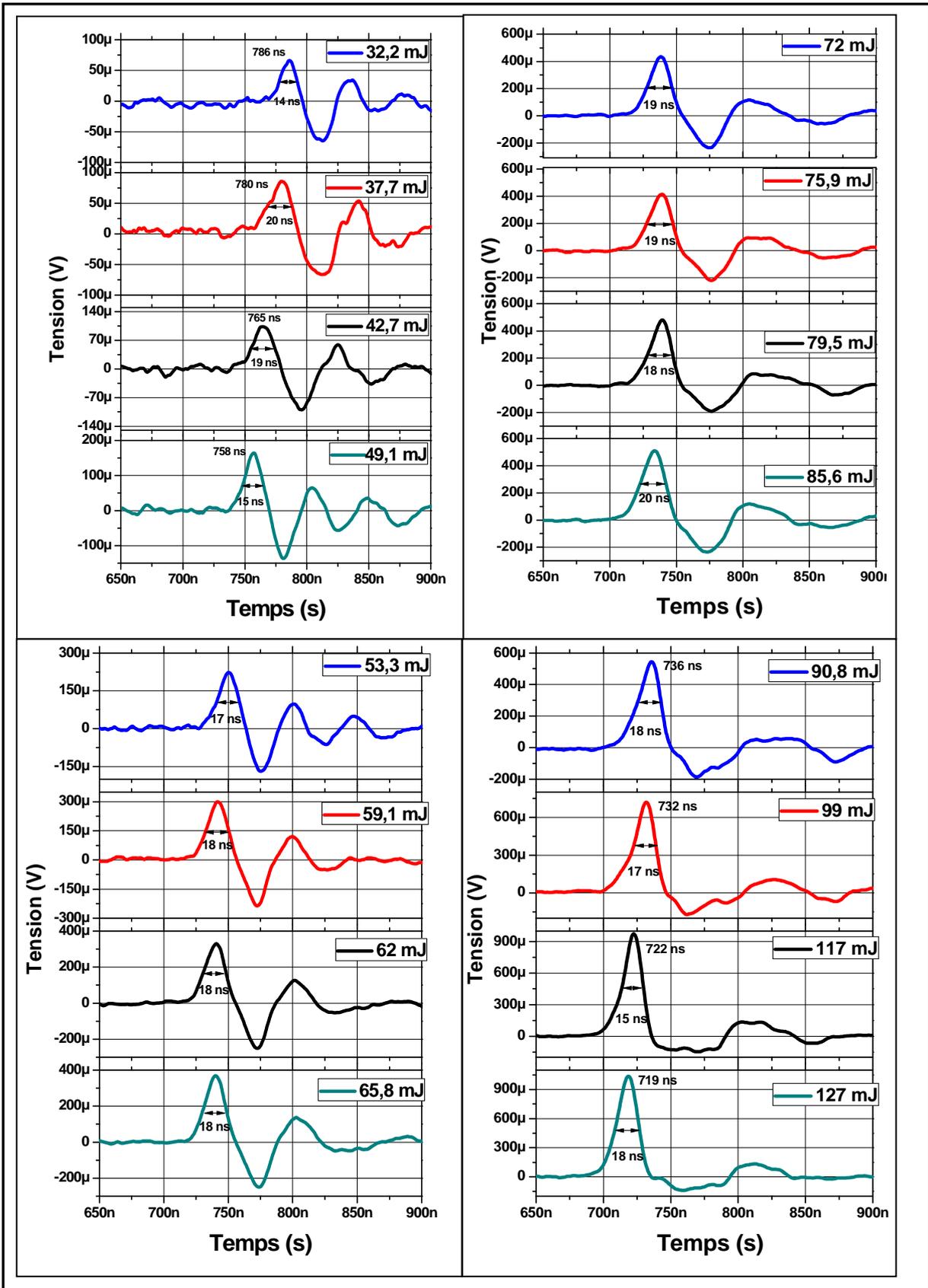
Figure 4- 26 : Schéma de principe de la mesure d'absorption de l'encre Chine.

Nous avons étudié à l'aide la LIPP le mécanisme de génération de l'onde de pression pour des liquides opaques. La cible est recouverte de différentes hauteurs d'encre de chine (20, 320, 960 et 1600 μm). La hauteur d'encre de chine de 20 μm a été évaluée à partir de la masse de liquide déposée sur une cible. A partir de la masse, de la densité d'encre et de la surface de la cible la hauteur de liquide peut être facilement déduite (hauteur = masse / [masse volumique x surface]). Dans le cas des autres épaisseurs, la hauteur de liquide a été déduite du volume déposé sur la cible de surface connue.

4.3.1.2. Résultats pour une couche d'encre de 20 μm

La Figure 4- 27 représente les profils temporels du pic d'entrée en fonction de l'énergie délivrée par le laser (32,2 mJ à 200 mJ). Plusieurs tests réalisés dans les mêmes conditions ont montré que ces mesures étaient reproductibles dans cette gamme d'énergie. Les maxima et les minima des pics sont reportés sur la Figure 4- 28 Pour des énergies comprises entre 32,2 mJ et 62 mJ les profils présentent un pic positif et un pic négatif relativement symétriques qui augmentent en amplitude avec l'énergie du laser. Au-delà de 62 mJ, une dissymétrie apparaît, le pic positif augmente avec l'énergie, le pic négatif diminue. Pour une énergie de l'ordre de 200 mJ, le signal dépasse 2500 μV et le pic négatif diminue jusqu'à disparaître. Deux processus distincts contribuent donc à la formation de l'onde de pression. Ils seront étudiés dans la partie discussion de ce chapitre.

La durée à mi-hauteur de l'onde de pression en fonction de l'énergie laser varie entre 15 ns et 20 ns (Figure 4- 29).



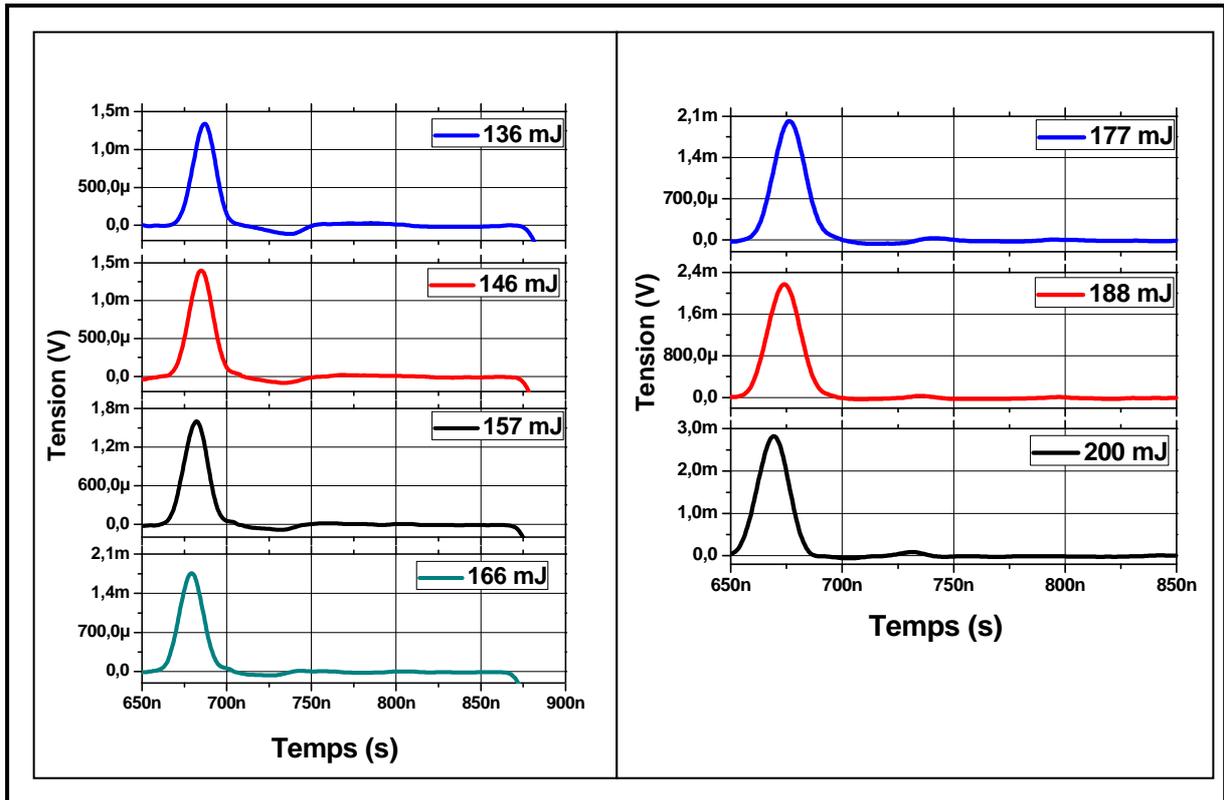


Figure 4- 27 : Profils des pics d'entrée en fonction de l'énergie laser pour une hauteur de $20 \mu\text{m}$ d'encre ; dépôt par un pinceau ; cible en Al ; 20°C ; 3kV ; PET $480 \mu\text{m}$.

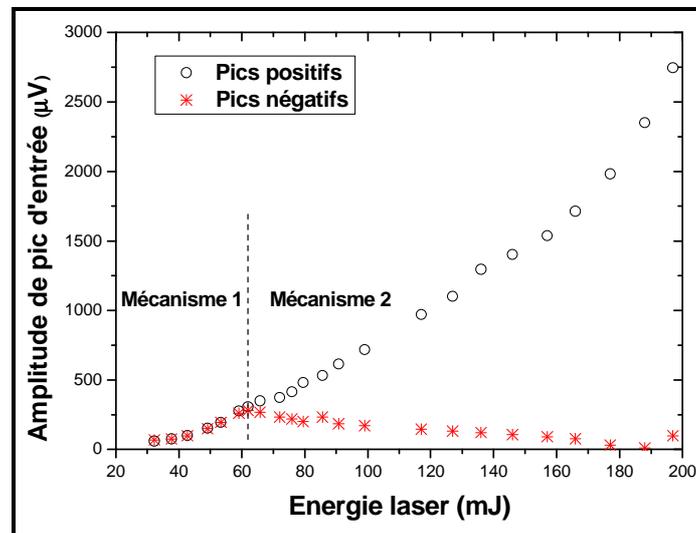


Figure 4- 28 : Amplitude du pic positif et du pic négatif en fonction de l'énergie laser dans le cas d'un dépôt de $20\mu\text{m}$ d'encre chine ; cible en Al ; 20°C ; 3kV ; PET $480 \mu\text{m}$.

Pour des énergies supérieures à 200 mJ, les profils enregistrés ne sont plus reproductibles, une forte dispersion apparaît entre les mesures. Un exemple est donné pour 220 mJ sur la Figure 4- 30. Cette valeur de 220 mJ constitue un nouveau seuil d'énergie pour lequel un autre mécanisme de génération de l'onde de la pression est probable.

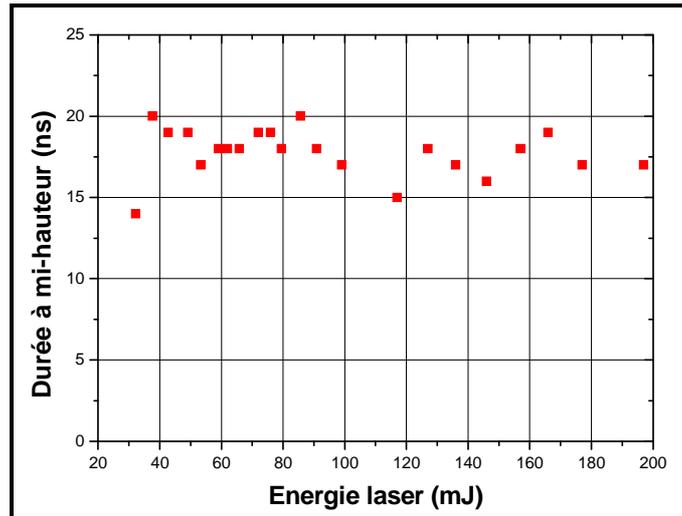


Figure 4- 29 : Durée à mi-hauteur du pic positif en fonction de l'énergie avec une hauteur d'encre de $20\mu\text{m}$.

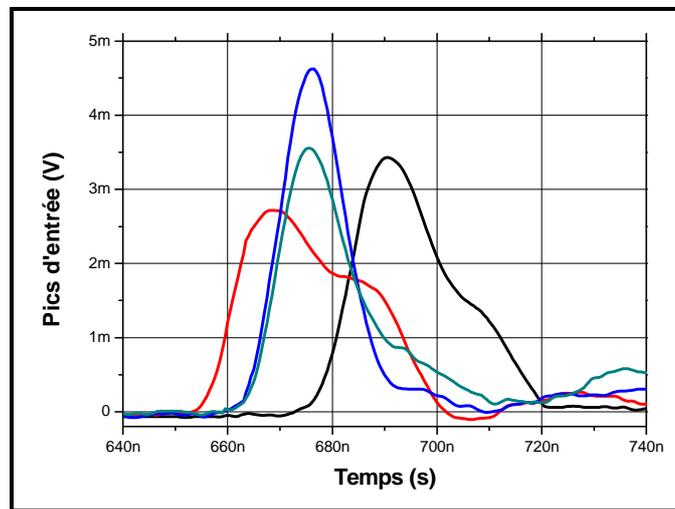


Figure 4- 30 : Quatre profils du pic d'entrée obtenu à 220 mJ, avec une hauteur d'encre de $20\mu\text{m}$; cible Al, 20°C ; 3 kV ; PET $480\mu\text{m}$.

4.3.1.3. Résultats pour une couche d'encre de 320 μm .

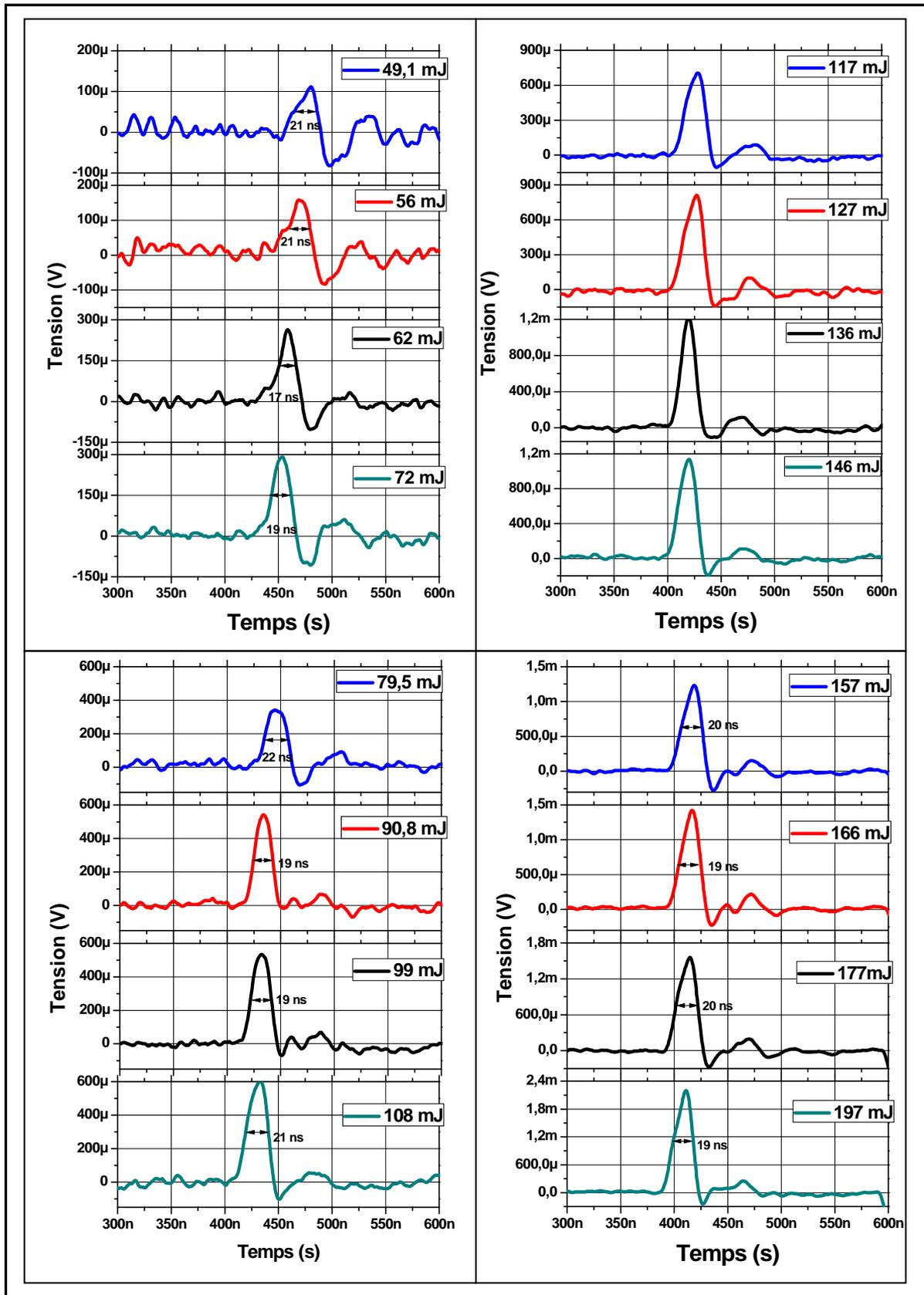


Figure 4- 31 : -Profils des pics d'entrée en fonction de l'énergie laser dans le cas du dépôt d'encre de 0,32 mm ; cible en Al ; 20°C ; 3kV ; PET 480 μm .

Pour un dépôt d'encre de Chine de 320 μm la réponse de la LIPP est donnée sur la Figure 4- 31. L'énergie du faisceau laser a été augmentée de 49 mJ à 197 mJ. Plusieurs tests réalisés dans les mêmes conditions ont montré que ces mesures étaient reproductibles dans cette gamme d'énergie. Nous constatons que l'évolution des profils est similaire à celle enregistrée dans le cas précédent pour une épaisseur de 20 μm . Le seuil à partir duquel le pic d'amplitude positive et le pic d'amplitude négative sont différents se situe autour de 49 mJ. Au dessus de 240 mJ, les profils ne sont plus reproductibles. Les énergies laser de 49 mJ et 240 mJ correspondent aux seuils de changement de mécanismes de génération de l'onde de pression. L'amplitude des pic positifs et négatifs sont représenté sur la Figure 4- 32.

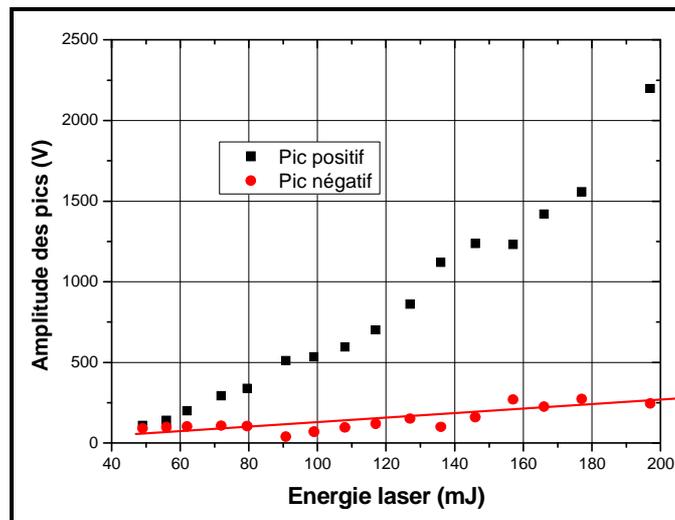


Figure 4- 32 : Amplitude du pic positif et pic négatif en fonction de l'énergie laser dans le cas du dépôt d'encre de 320 μm , cible Al ; 20°C ; 3 kV ; PET 480 μm .

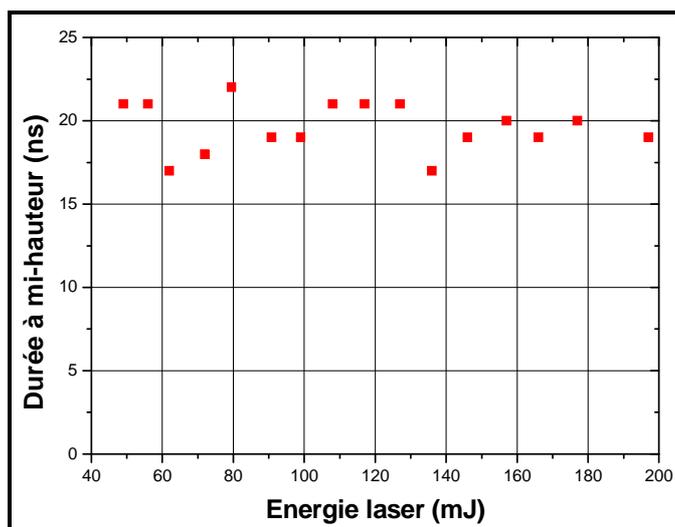


Figure 4- 33 : Durée à mi-hauteur du pic positif en fonction de l'énergie avec une hauteur d'encre de 320 μm

La durée à mi-hauteur de l'onde induite est représentée sur la Figure 4- 33. Comme pour le cas précédent, la durée varie entre 17 ns et 21 ns et reste assez stable quelle que soit l'énergie.

4.3.1.4. Résultats pour une couche d'encre de 960 μm .

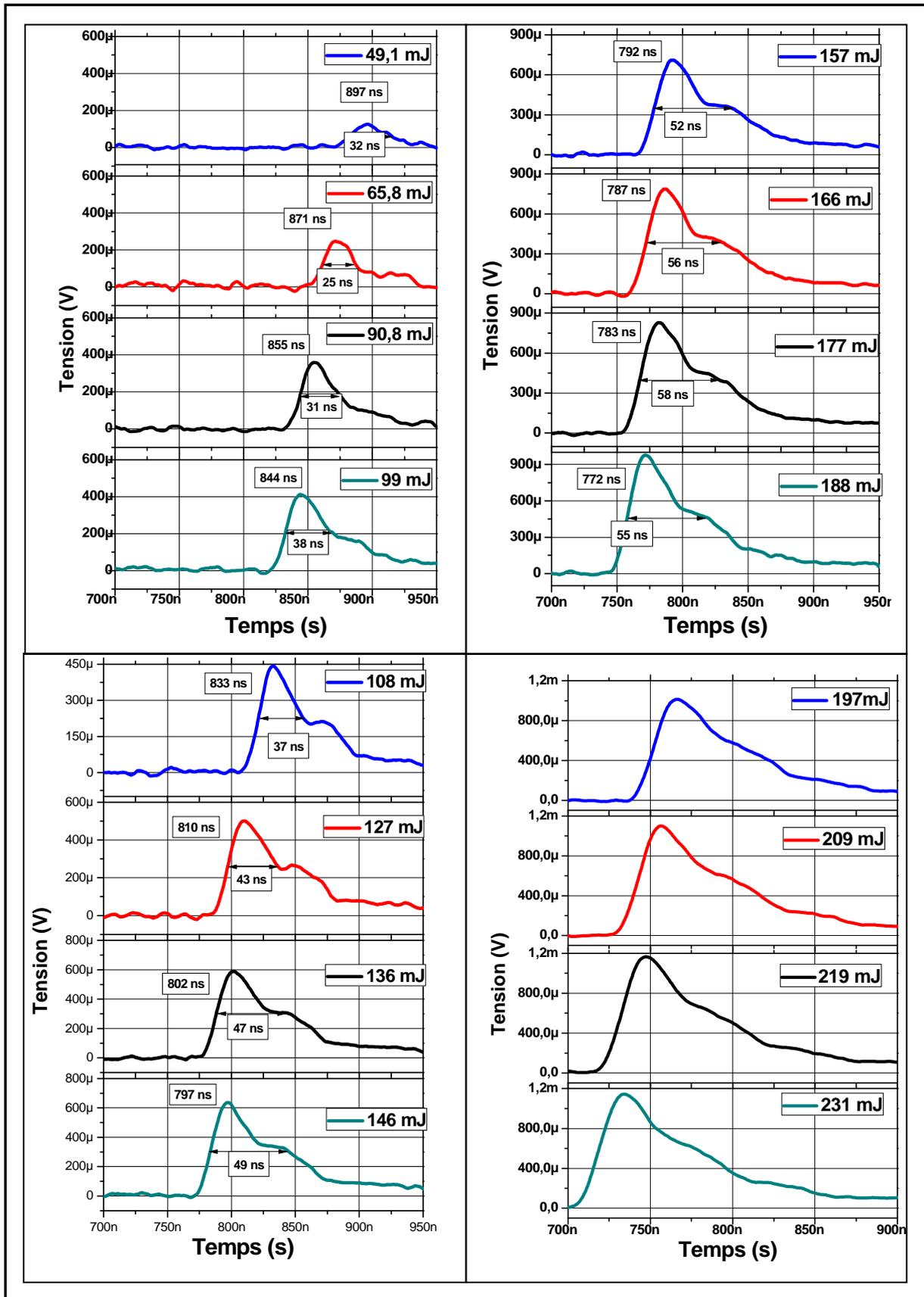


Figure 4- 34 : Profils des pics d'entrée en fonction de l'énergie laser dans le cas du dépôt d'encre de 0,96 mm.

La Figure 4- 34 représente les profils temporels du pic d'entrée pour la gamme d'énergie comprise entre 49 mJ et 231 mJ. Les profils sont unipolaires contrairement à ceux relevés pour les plus faibles niveaux de liquides. Par ailleurs, la largeur du pic augmente avec l'énergie (Figure 4- 35). Contrairement aux deux cas précédents (20 et 320 μm), tous les résultats sont reproductibles quel que soit le niveau d'énergie fourni par le laser jusqu'à 350 mJ (limite de notre dispositif laser). Il n'y apparaît pas de nouveau seuil. Les amplitudes augmentent linéairement en fonction de l'énergie laser (Figure 4- 38).

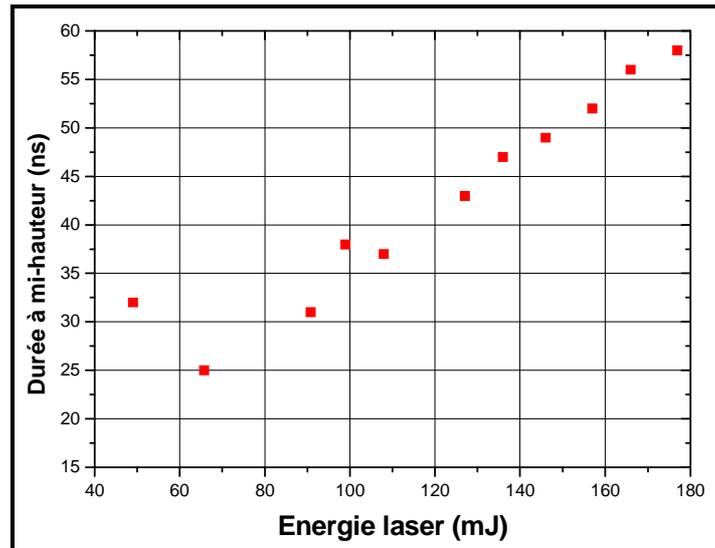


Figure 4- 35 : Durée à mi-hauteur du pic positif en fonction de l'énergie avec une hauteur d'encre de 960 μm .

4.3.1.5. Résultats pour une couche d'encre de 1600 μm

La Figure 4- 36 représente les profils temporels du pic d'entrée pour des énergies comprises entre 25,3 mJ à 177 mJ. Le signal présente une partie essentiellement positive dont l'amplitude augmente avec l'énergie. Jusqu'à 72 mJ environ, cette impulsion positive est suivie d'une impulsion négative de très faible l'amplitude. La largeur du pic positif augmente également avec l'énergie (Figure 4- 37). Ces résultats sont reproductibles sur toute la gamme d'énergie fournie par le laser. Les amplitudes augmentent linéairement en fonction de l'énergie laser (Figure 4- 38).

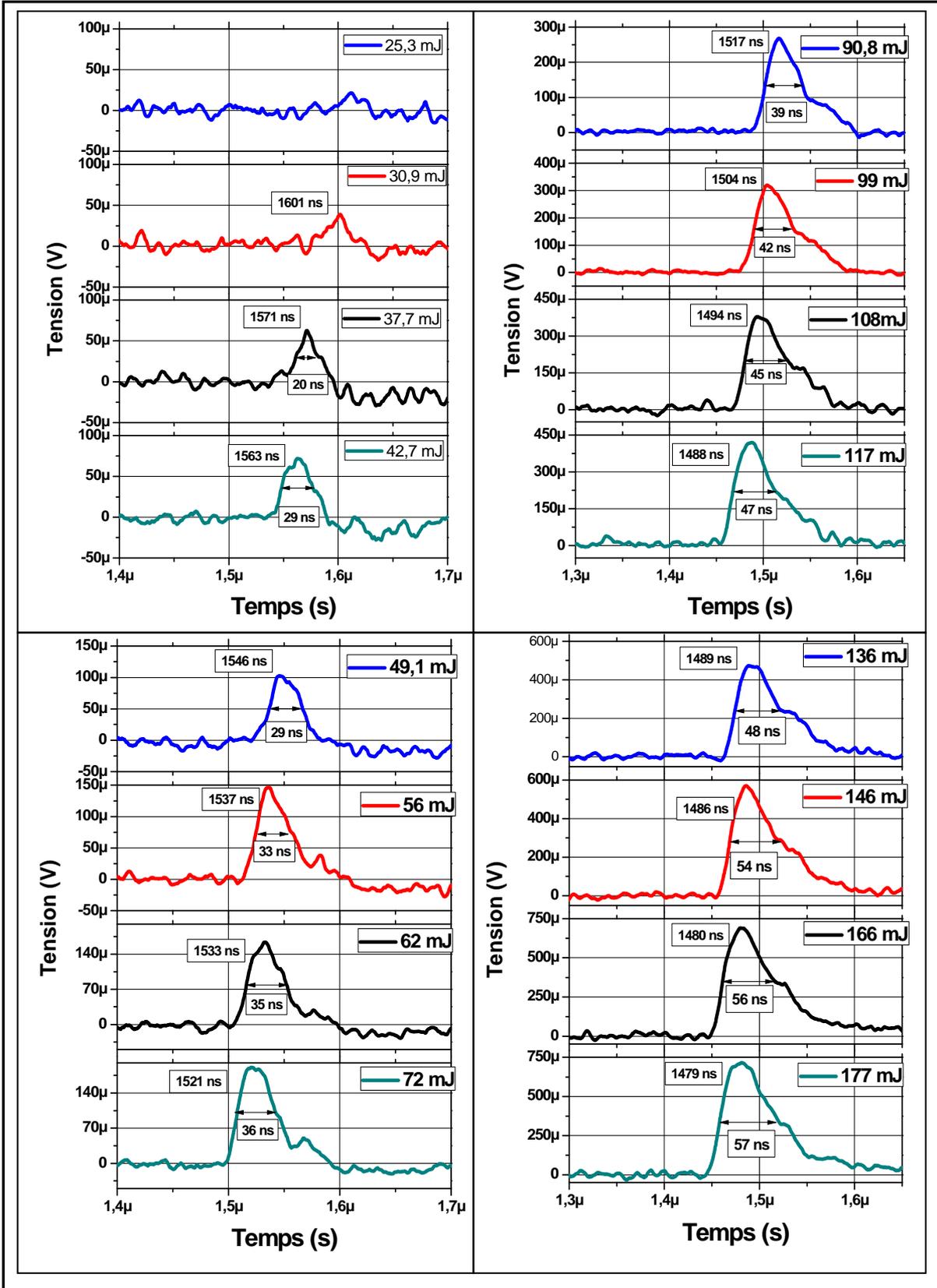


Figure 4- 36 : Profils des pics d'entrée en fonction de l'énergie laser dans le cas du dépôt d'encre de 1600 μm ; cible Al ; 20°C ; 3kV ; PET 480 μm .

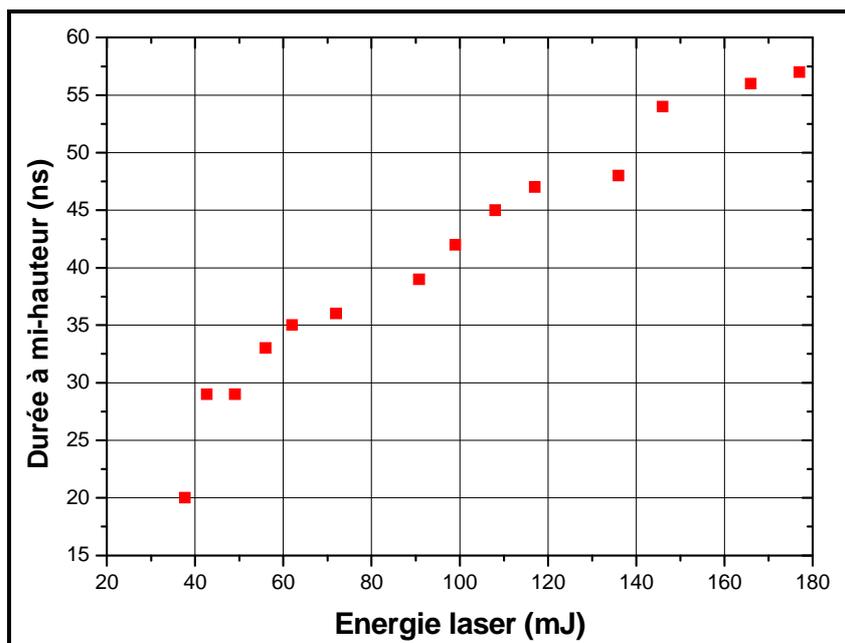


Figure 4- 37 : Durée à mi-hauteur du pic positif en fonction de l'énergie avec une hauteur d'encre de 1600 μm .

4.3.1.6. Synthèse des résultats

a. Comparaison des amplitudes du pic positif en fonction de l'énergie laser

La comparaison des résultats obtenus pour les quatre niveaux de hauteur de liquide est donnée sur la Figure 4- 38

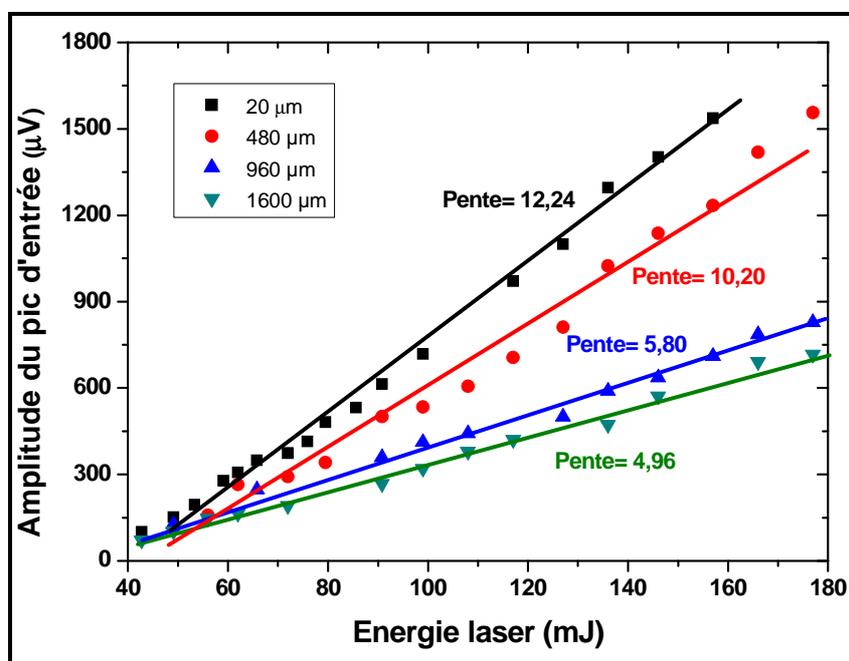


Figure 4- 38 : Amplitude du pic d'entrée positif en fonction de l'énergie laser pour les quatre hauteurs de liquide.

Pour obtenir une onde de pression la plus importante possible il convient donc d'utiliser une couche d'encre la plus petite possible.

b. Estimation de la vitesse de l'onde de pression

Une estimation de la vitesse de l'onde de pression dans l'encre de chine a été faite en comparant une distribution dans l'eau, où nous avons montré que l'onde était générée à l'interface cible/liquide, et un profil obtenu avec de l'encre de Chine, dans laquelle le faisceau incident laser ne peut pas traverser. Nous avons choisi une hauteur de liquide de $1600 \mu\text{m}$ et une énergie laser de $90,8 \text{ mJ}$. La cible est en aluminium. La Figure 4- 39 représente les deux profils enregistrés. La différence entre les instants d'apparition des impulsions de pression selon que la cible soit couverte d'eau ou d'encre permet de déduire une vitesse de propagation de l'onde de pression de 1524 m/s . Cette estimation de la vitesse du son dans l'encre de Chine est à comparer à celle obtenue dans les liquides qui est du même ordre de grandeur (1500m/s). Les figures 4- 31 à 4- 33 montrent que les impulsions de pression parviennent de plus en plus rapidement à l'interface cible/diélectrique. Ceci suggère une augmentation de la vitesse de propagation avec l'énergie de l'onde.

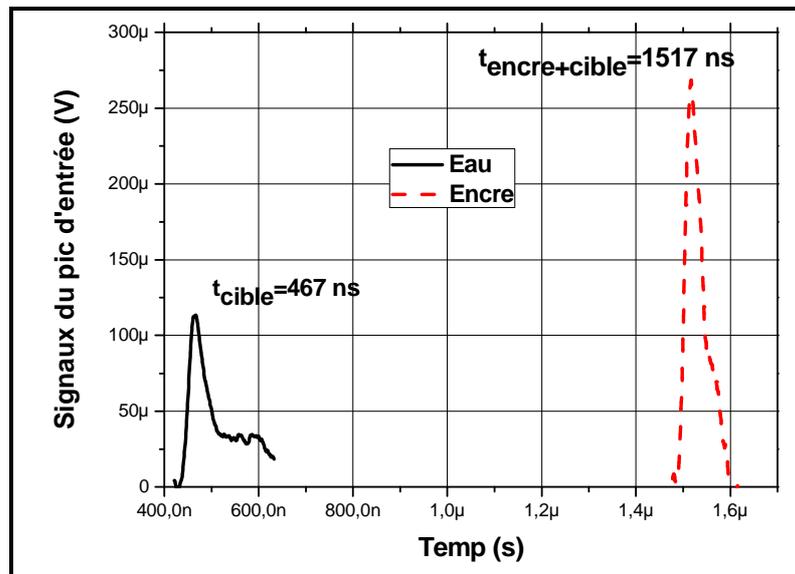


Figure 4- 39 : Comparaison du profil du pic d'entrée dans le cas d'un dépôt sur la cible de $1,6 \text{ mm}$ d'eau et $1,6 \text{ mm}$ d'encre. $E=90,8 \text{ mJ}$.

4.3.2. Discussion

4.3.2.1. Couche d'encre de $20 \mu\text{m}$

Pour les énergies inférieures à 62 mJ , le profil de pression est bipolaire symétrique. Ce type de signature pour la pression correspond à un mécanisme de dilatation.

Au-delà de ce seuil, le phénomène de dilatation est toujours présent et superposé à un phénomène de vaporisation. Ce dernier augmente avec l'énergie. L'apparition du phénomène de vaporisation change l'état de surface du liquide. Plus l'énergie augmente, plus l'état de surface est modifié par les panaches de vapeur. Cela permet de justifier la décroissance de

l'amplitude du pic négatif [4.55]. L'onde de compression due à la dilatation de la zone chauffée n'est pas sensible à cette perturbation de l'état de surface qui intervient ultérieurement. En revanche, l'onde de dépression (négative) qui résulte de la contraction de la zone chauffée intervient dans un deuxième temps alors que la surface aura été modifiée. Plus l'énergie laser augmente, plus la contraction de la zone chauffée aura lieu dans une zone non homogène. Le pic négatif qui en résulte sera donc atténué.

Au-delà de 200 mJ, l'amplitude du pic positif n'augmente plus de façon linéaire avec l'énergie mais plus fortement. Le pic négatif disparaît. Cela correspond également à une plus forte dispersion des signaux (Figure 4- 30). Ces observations sont cohérentes avec l'apparition à cette énergie d'un phénomène de projection de gouttelettes liquides, c'est-à-dire d'ablation du liquide. Celles-ci augmentent l'amplitude de l'onde de compression par conservation de la quantité de mouvement, mais avec une moins bonne reproductibilité à cause de l'aspect macroscopique des instabilités générées. De plus, la perturbation de l'état de surface est encore plus importante que précédemment donc l'onde négative n'est pas non plus observable.

Le régime thermo-élastique obtenu pour des énergies inférieures à 62mJ permettrait une bonne reproductibilité des mesures et éviterait de déposer du liquide à chaque tir. Cependant, dans ces conditions, la sensibilité et la résolution sont moins bonnes que dans le régime de vaporisation. De plus, ces conditions de mesures ne permettraient pas une lecture directe des spectres et imposeraient un traitement numérique du signal adapté.

Le régime de vaporisation avec l'énergie laser de 200 mJ constitue le meilleur compromis entre reproductibilité, sensibilité et résolution.

4.3.2.2. Couche d'encre de 320 μm

Contrairement à ce qui a été observé pour la couche d'encre de 20 μm , le signal est dissymétrique dès les plus faibles énergies laser utilisées. Néanmoins, l'énergie de 49 mJ peut être considérée comme proche de la valeur seuil puisqu'elle conduit à des amplitudes assez similaires des impulsions positives et négatives.

Dans toute la gamme d'énergie, le pic négatif existe toujours et il a tendance à augmenter. Contrairement au cas de la fine couche d'encre (20 μm), la vaporisation du liquide ne provoque pas une diminution de l'amplitude de ces pics négatifs. En effet, avec une épaisseur d'encre plus importante, la surface doit être moins perturbée, et l'onde de pression négative également. On constate même une légère augmentation de l'amplitude du pic négatif aux énergies supérieures au seuil de vaporisation. En effet, le fond de la zone chauffée n'est jamais vaporisé mais est chauffé de plus en plus quand l'énergie laser augmente. L'onde de

pression produite par le phénomène de dilatation a donc toujours lieu et son amplitude (pics positif et négatif) augmente avec l'énergie laser.

Ceci ne sera plus vrai lors de l'ablation totale de la zone chauffée. A 200 mJ, l'amplitude du pic positif est 2220 μV , mais l'amplitude du pic négatif est de 240 μV . Même si l'amplitude du pic positif est 9 fois plus grande que celle du pic négatif, l'existence d'un grand pic négatif n'est pas bonne pour la méthode LIPP. Cela introduit une confusion avec l'existence de charges négatives dans les mesures de calibration. C'est un inconvénient du dépôt d'épaisseur 320 μm . Par ailleurs, la durée à mi-hauteur du pic positif est plus large que pour l'épaisseur de 20 μm . Du point de vue de la résolution de la mesure, le dépôt d'encre de 20 μm est donc préférable.

4.3.2.3. Couches d'encre de 960 μm et 1600 μm .

Dans ces deux cas, la distance sur laquelle l'onde de pression doit se propager dans le volume d'encre est plus grande que dans les deux cas précédents (20 μm et 320 μm). L'onde de pression est donc plus fortement atténuée. Cette atténuation explique la diminution de l'amplitude (Figure 4- 38). Avec la longueur de propagation plus importante, l'onde est également plus dispersée d'où l'élargissement de l'impulsion positive. Cet élargissement est illustré par l'augmentation des durées à mi-hauteur des impulsions de tension (Tableau 4- 8). Plus les épaisseurs d'encre sont importantes, plus l'onde due à la vaporisation s'élargit au cours de sa propagation. Sur l'onde résultante, le pic négatif dû à la dilatation disparaîtrait par superposition avec la queue de l'onde de vaporisation. Cette explication suppose que l'onde de vaporisation s'élargit davantage que l'onde de dilatation, ce qui pourrait s'expliquer par une influence de l'énergie. Néanmoins, ceci n'explique pas la disparition du pic négatif aux plus faibles énergies lorsque la vaporisation n'a pas lieu.

Tableau 4- 7 : Durées à mi-hauteur des impulsions de tension selon l'épaisseur d'encre et l'énergie du laser.

Hauteur d'encre [μm]	Energie laser [mJ]	Durée à mi-hauteur des impulsions de tension [ns]
960	65,8	25
	188	55
1600	37,7	20
	177	57

L'élargissement de l'onde de pression diminue la résolution temporelle du signal. Le temps de propagation de l'onde dans une plaque de PET de 0,5 mm est de 200 ns, tandis que la durée à mi-hauteur de l'onde d'énergie 200 mJ est de l'ordre de 50 ns. Il est clair que ces conditions sont moins intéressantes que celles obtenues avec une faible épaisseur d'encre.

4.3.2.4. Conclusions.

- L'onde de pression peut être produite par l'impact d'une impulsion laser sur un liquide opaque à la longueur d'onde du laser.
- Le mécanisme de génération de l'onde de pression est contrôlé par la dilation thermique et la vaporisation du liquide. Le mécanisme de vaporisation est d'autant plus prépondérant que l'énergie du laser est grande.
- La sensibilité de la mesure (amplitude de l'onde de pression) est meilleure avec des hauteurs de liquide faibles.
- La résolution temporelle de la LIPP se dégrade lorsque l'énergie est trop importante car une instabilité apparaît au niveau de la surface du liquide. La largeur de l'onde de pression s'élargit, lorsque l'épaisseur de l'encre augmente.
- L'ablation de l'encre de Chine déposée sur la cible peut avoir lieu si l'énergie de l'impulsion laser dépasse un seuil d'énergie. Ce seuil dépend de la hauteur de l'encre de Chine déposée sur la cible. Les mécanismes mis en jeu au-delà de ce niveau d'énergie conduisent à une mauvaise reproductibilité de l'onde de pression.
- Les conditions optimales pour produire l'onde de pression dans la méthode LIPP à 20°C sont :
 - Dépôt d'encre de Chine sur la cible en faible épaisseur, par exemple au moyen d'un pinceau.
 - Energie de l'impulsion laser de 200 mJ.

4.4. OPTIMISATION A LA TEMPERATURE 60°C

Dans les études de caractérisations électriques, il est bien connu que la température est un paramètre influent. Nous avons précédemment mis en évidence les conditions expérimentales optimales pour atteindre le meilleur compromis sensibilité-résolution à 20°C. La sensibilité de la méthode est améliorée par l'évaporation de la solution d'encre de Chine, plus précisément par celle du solvant.

A température plus élevée, le solvant disparaîtra plus facilement et contribuera à la diminution de la sensibilité d'autant plus que l'opérateur mettra du temps pour effectuer la mesure. Pour améliorer la sensibilité il convient donc d'utiliser un mélange où l'évaporation du solvant est retardée. La réponse d'un mélange encre de Chine/eau a été caractérisée pour définir les conditions optimales.

Les résultats obtenus à 20°C avec l'énergie laser 110 mJ et à 60°C avec l'énergie laser 200 mJ sont représentés respectivement sur la Figure 4- 40 et la Figure 4- 41.

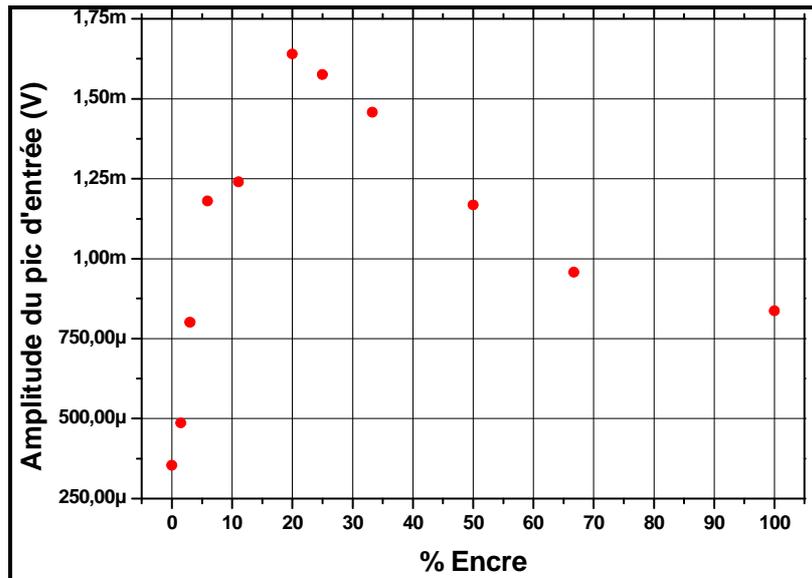


Figure 4- 40 : Amplitude du pic d'entrée en fonction du pourcentage volumique d'encre de Chine à 20°C ; 110 mJ

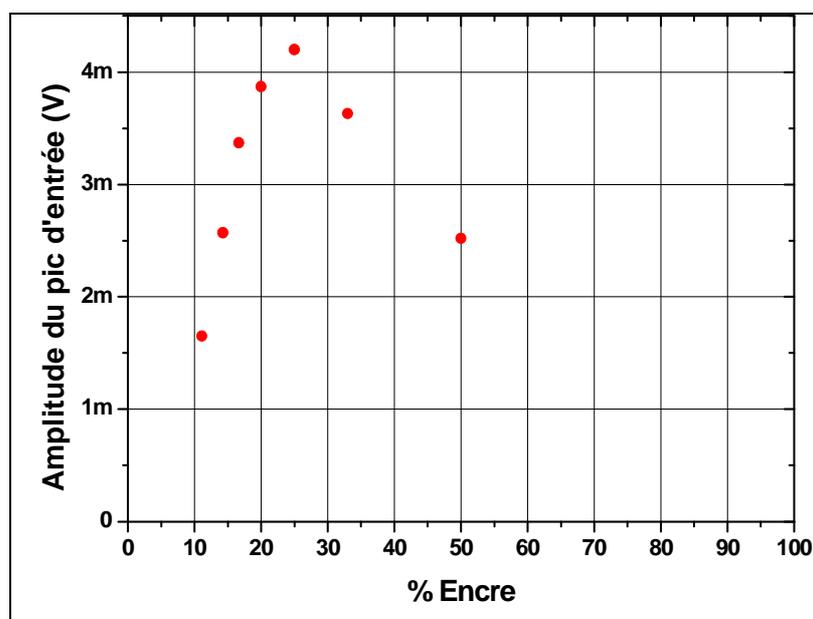


Figure 4- 41 : Amplitude du pic d'entrée en fonction du pourcentage d'encre de Chine à 60°C ; 200 mJ

A 20°C, le signal augmente avec la diminution du pourcentage d'encre dans la solution pour atteindre un maximum pour 20% d'encre de Chine. Ensuite le phénomène s'inverse, le signal décroît avec la baisse du taux d'encre. La réponse de la LIPP est similaire à 60°C avec un optimum qui s'est déplacé à 25%.

Le mélange encre/eau renforce la capacité d'évaporation de la solution et conduit donc à une meilleure sensibilité tant que la teneur en encre est suffisante pour que le rayonnement laser soit absorbé correctement. En deçà de l'optimum d'encre, le rayonnement laser n'est pas absorbé de façon optimale. A l'inverse, si la concentration en encre est trop importante, l'évaporation est restreinte.

Le pourcentage d'encre optimal est donc le meilleur compromis entre l'augmentation de la capacité d'évaporation du mélange et une bonne absorption du rayonnement.

Ce mélange est surtout intéressant aux températures élevées pour lesquelles l'encre sèche rapidement.

4.5. CONCLUSIONS

- L'impact de l'impulsion laser avec un liquide transparent ou opaque déposé sur une cible métallique produit une onde de pression.
- Dans la gamme d'énergie laser 0-350 mJ, les différents phénomènes de génération d'onde de pression ont été mis en évidence et interprétés par des mécanismes de dilatation thermique et de vaporisation.
- La sensibilité de la technique est meilleure en utilisant un liquide opaque comme l'encre de Chine qu'avec les liquides transparents utilisés.
- Les conditions optimales pour les mesures à 20°C avec de l'encre seule sont obtenues avec:
 - Dépôt sur la cible d'une faible épaisseur de liquide (environ 20 µm).
 - Énergie laser de 200 mJ.
- Les conditions optimales pour les mesures à 60°C sont identiques aux conditions optimales à 20°C mais avec un ratio volumique encre/eau de 1 pour 3.
- Dans ces conditions optimales, le mécanisme dominant est la vaporisation du liquide. L'onde de pression est alors générée par conservation de la quantité de mouvement.

CHAPITRE 5 : RESULTATS ET DISCUSSIONS SUR L'INJECTION DE CHARGE D'ESPACE.

5.1. INJECTION DE CHARGES SOUS TENSION CONTINUE

5.1.1. Résultats

5.1.1.1. Dynamique des charges d'espace

Afin d'étudier l'influence du temps de polarisation, l'échantillon de PET avec métallisations en aluminium sur les deux faces est polarisé sous un champ continu de 6 kV/mm à 60°C. La Figure 5- 1 présente les mesures hors champ en fonction du temps de polarisation jusqu'à 74 heures.

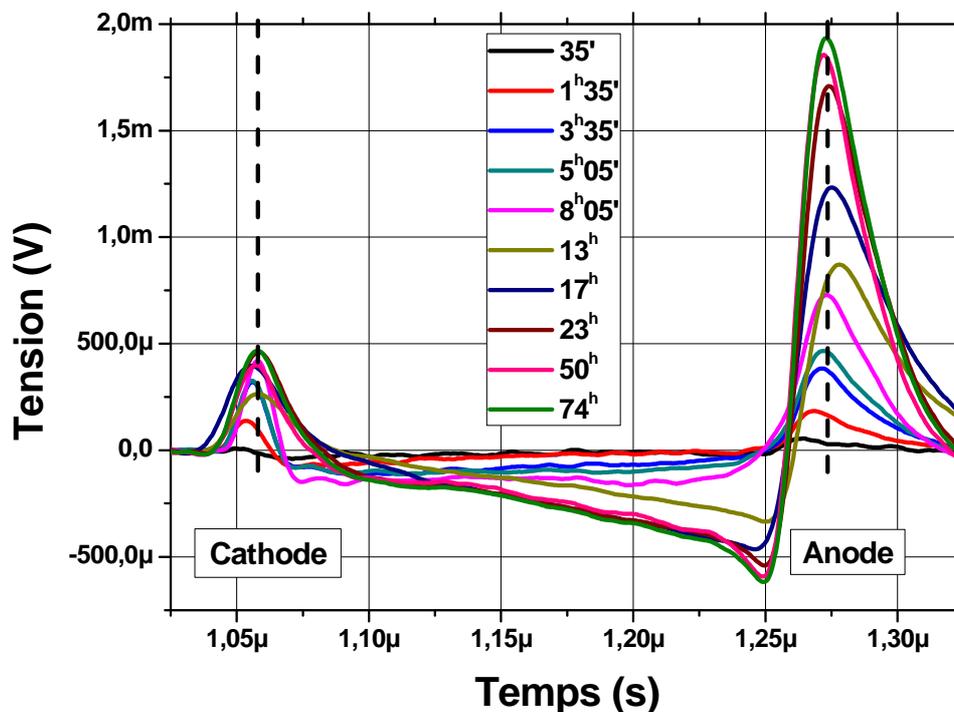


Figure 5- 1 : Signaux des mesures des charges d'espace hors champ en fonction du temps de polarisation ; PET 480 μm ; électrodes métallisées par Al ; champ appliqué 6 kV/mm ; 60°C

Seules des charges de polarité négative sont observées. Les premières sont visibles après une trentaine de minutes. Ces charges ne s'accumulent pas à la cathode mais traversent le diélectrique et s'accumulent à l'anode. Après quelques dizaines d'heures de polarisation, la distribution de charges se stabilise.

5.1.1.2. Mesure de courant

La mesure de courant (voir §3.3.1) est réalisée avec l'échantillon en PET de 480 μm avec métallisation en aluminium sur les deux faces sous 3 kV à la température de 60°C. La Figure 5- 2 présente la densité de courant en fonction du temps.

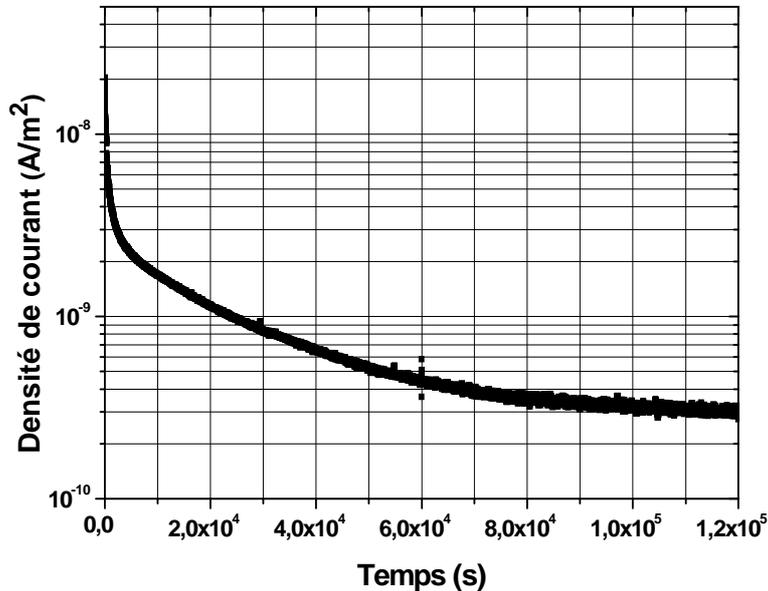


Figure 5- 2 : Densité de courant en fonction du temps ; PET de 480 μm , électrodes métallisées par Al ; tension appliquée 3 kV ; 60°C

Après la chute initiale due à la décroissance du courant capacitif, le courant décroît jusqu'au niveau du courant de conduction $j_{\text{conduction}} = 3.10^{-10}$ (A/m²) qui est atteint après environ 10⁵ s, soit 28 h de polarisation.

5.1.2. Discussion

5.1.2.1. Analyse.

Les charges négatives accumulées à proximité de l'anode sont des hétérocharges dues à l'injection des électrons à la cathode et au transport de charges négatives jusqu'à l'anode. Les électrons peuvent être injectés :

- par saut par-dessus la barrière de potentiel du contact métal/isolant si le contact est de type bloquant. Dans ce cas, les électrons sont injectés dans l'isolant lorsque leur énergie est supérieure à la hauteur de la barrière de potentiel. Le champ à la cathode qui gouverne l'injection est « régulé » par les homocharges à proximité : plus leur concentration augmente, plus le champ diminue.

- via des états de la surface. Dans ce cas le nombre de charges injectées initialement correspond à celui des états de la surface [5.1, 5.2]. Le transport des charges dans le volume du matériau libère ensuite ces pièges pour d'autres injections.

Ces électrons sont transportés, sous l'action du champ électrique, vers l'anode à proximité de laquelle ils s'accumulent. Cette accumulation des charges négatives à l'anode peut s'expliquer de deux manières :

- Les électrons ne sont pas neutralisés à l'anode.
- Une partie des électrons transférés vers l'anode est neutralisée sur cette électrode et une autre partie s'accumule.

L'injection de charges négatives et leur accumulation à proximité de l'anode a été également rapporté dans le PET mais à forte température (150°C) sous 5 kV et sur une épaisseur de 190 μm [5.3]. Probablement en raison de la température élevée, le transport de charges de la cathode à l'anode n'avait pas été observé car il devait être immédiat. C'est directement l'augmentation des hétérocharges à l'anode qui était visualisée.

5.1.2.2. Comparaisons charges d'espace/courant

Grâce à la calibration des mesures, les graphes de la Figure 5- 1 permettent d'établir la distribution des charges dans l'épaisseur du matériau. La Figure 5- 3 en est un exemple pour 3 h de polarisation. L'intégration des charges pour chaque temps de polarisation permet d'établir la Figure 5- 4 qui présente la charge totale accumulée dans le volume du diélectrique en fonction du temps de polarisation. Les charges d'espace accumulées se stabilisent après environ 10^5 secondes, soit 28 heures de polarisation.

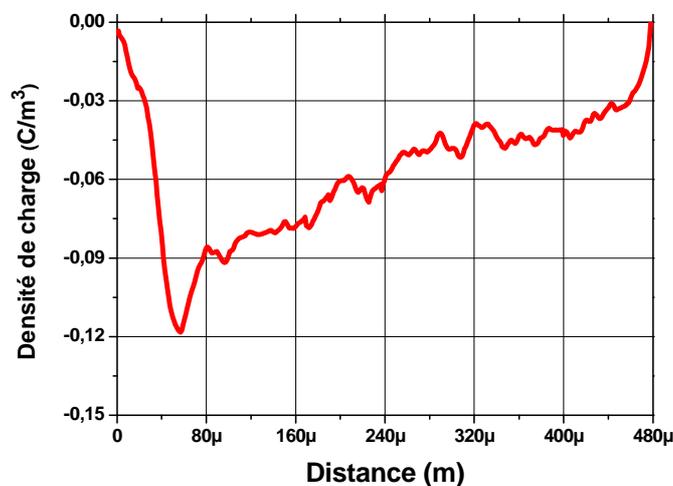


Figure 5- 3 : Distribution des charges dans le volume après 3h de polarisation.

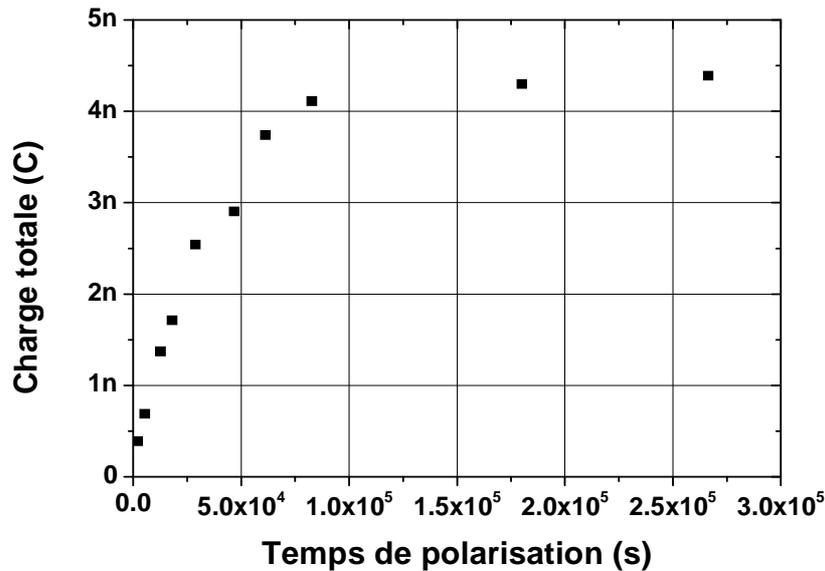


Figure 5- 4 : Charge totale accumulée dans le volume en fonction du temps de polarisation.

La variation de charge accumulée dans le volume de l'isolant en fonction du temps a nécessité un courant $i=dQ/dt$. La densité surfacique de ce courant est calculée pour la section de 8 mm du faisceau laser. La Figure 5- 5 compare cette densité de courant calculée due aux charges d'espace et la densité de courant correspondant au courant mesuré.

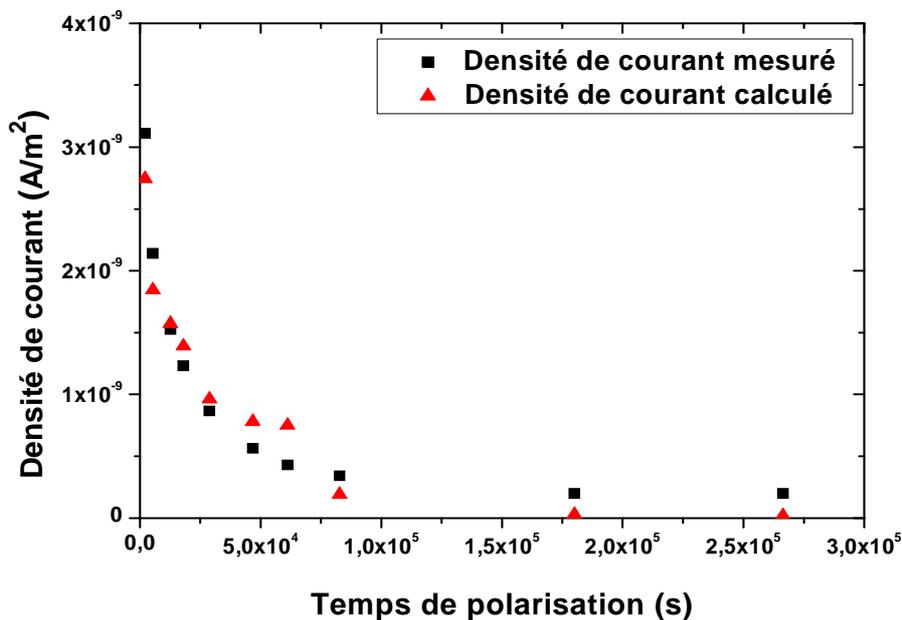


Figure 5- 5 : Comparaison de la densité de courant mesurée et de la densité de courant calculée à partir de la variation des charges d'espace accumulées dans le volume.

Deux observations peuvent être faites. D'une part, les durées des deux régimes transitoires sont comparables. D'autre part et surtout, les deux courants sont identiques.

5.1.2.3. Analyse du courant transitoire

Le courant d'absorption résultant de la différence entre le courant de charge et le courant de conduction est représenté sur la Figure 5- 6.

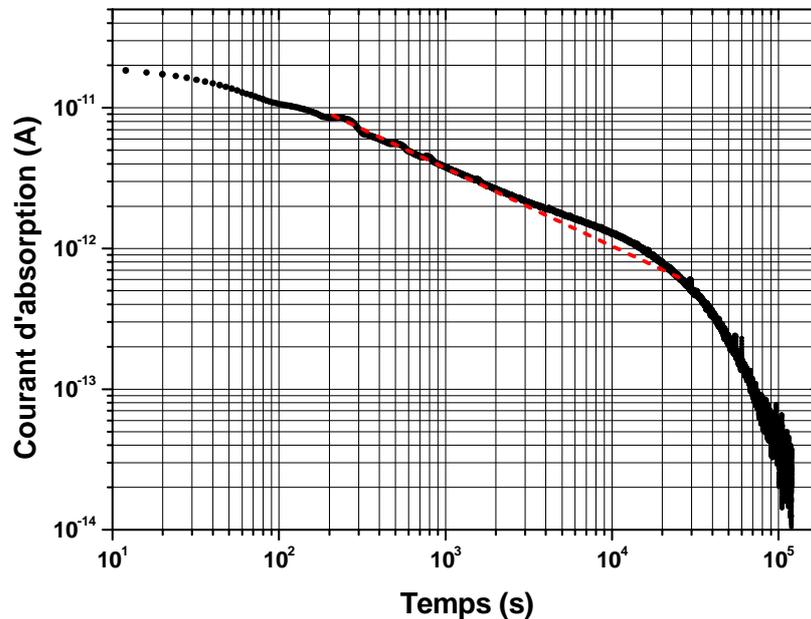


Figure 5- 6 : Courant d'absorption en fonction du temps ; PET de 480 μm , électrodes métallisées par Al ; tension appliquée 3 kV ; 60°C

Après la chute due à la décroissance du courant capacitif, la courbe présente une partie linéaire de la forme $I(t) = A t^{-n}$ avec $n=0,45$. Cette valeur est dans le bas de la gamme des valeurs recensées dans le PET dans diverses conditions expérimentales [5.4]. Un écart à la linéarité est observé qui se caractérise par une forme de bosse. Ce comportement est caractéristique d'un courant transitoire limité par charges d'espace (« transient SCLC »), conformément à la théorie proposée par Many et Rakavy [5.5]. Ce comportement a aussi pu être observé par exemple dans une résine époxyde [5.6].

Diverses hypothèses avaient été émises pour justifier le régime transitoire observé [5.7, 5.8]:

- polarisation d'électrode due à des dissociations de charge dans le matériau,
- polarisation lente due à des transferts de chaînes,
- polarisation dipolaire lente,
- injection de charges conduisant à des effets de charges piégées,
- conduction électronique par saut (hopping).

L'équivalence des courants mesurés et des courants calculés à partir de l'injection des charges d'espace (paragraphe 5.1.2.2.) permet d'identifier la nature du régime transitoire observé. Les phénomènes de polarisation lente qui avait été écartés par Lovell [5.8] pour des raisons d'énergie d'activation ne sont en effet pas concernés ou négligeables dans l'amplitude du courant. Il n'est pas observé non plus d'hétérocharges, dues à des dissociations dans le matériau ($AB \rightarrow A^+B^-$), qui auraient provoqué des polarisations d'électrode. L'injection de charges et le transport de porteurs négatifs qui se piègent dans l'épaisseur inter-électrode sont responsables ici du régime transitoire.

L'utilisation des techniques de mesures de charge d'espace permet donc de clarifier les mécanismes impliqués. Une comparaison analogue entre les courants transitoires et les charges injectées a été menée avec la méthode de l'impulsion électro-acoustique (PEA) sur une résine époxyde [5.9]. Les courants mesurés et calculés à partir des variations de charge d'espace avaient des allures similaires mais les amplitudes étaient décalées d'un écart de l'ordre d'une décade.

5.1.2.4. Analyse du régime permanent.

Après quelques dizaines d'heures de polarisation, la distribution des charges se stabilise. Deux hypothèses pouvaient être formulées a priori pour ce régime de stabilisation:

- Première hypothèse : l'anode est une électrode bloquante et suite à l'accumulation de charges négatives, l'injection de charges à la cathode s'annule. Les deux électrodes sont alors bloquées. C'est-à-dire aucune charge négative n'est injectée à la cathode ni extraite à l'anode :

$$j_{\text{cathode}} = j_{\text{anode}} = j_{\text{transfert}}(z) = 0 \quad \text{équation 5- 1}$$

- Deuxième hypothèse : la quantité des charges injectées à la cathode est égale à celle des charges déplacées dans le volume et est égale celle des charges extraites à la l'anode, c'est-à-dire que :

$$j_{\text{cathode}} = j_{\text{anode}} = j_{\text{transfert}}(z) = j_{\text{conduction}} \neq 0 \quad \text{équation 5- 2}$$

C'est pour trancher entre ces deux possibilités que la mesure du courant de conduction sous 6 kV/mm à 60°C a été effectuée (Figure 5- 2). La densité du courant de conduction n'est pas nulle, $j_{\text{conduction}} = 3.10^{-10} \text{ A/m}^2$. Ceci valide la deuxième hypothèse : les deux électrodes ne sont pas bloquantes, les charges négatives sont neutralisées à l'anode.

Ces charges négatives sont détectées à proximité de l'anode après quelques heures de polarisation. Elles s'accumulent pendant plusieurs d'heures car les conditions de leur neutralisation à l'anode ne sont pas satisfaites. En s'accumulant, ces hétérocharges renforcent

le champ à proximité de l'anode et c'est ce champ qui gouverne la neutralisation des charges négatives, donc le courant d'anode. La Figure 5- 7 représente la distribution de champ lors de la stabilisation. Il apparait alors presque un facteur 2 entre les champs à proximité des deux électrodes (4,7 kV/mm à la cathode et 8,5 kV/mm à l'anode). Ces niveaux de champ seraient ceux qui permettent alors de rendre égaux les phénomènes d'injection aux niveaux des deux électrodes : l'injection d'électrons à la cathode et leur neutralisation à l'anode ($j_{\text{anode}}=j_{\text{cathode}}$).

La durée du régime transitoire (28h) correspond alors au temps qu'il faut pour permettre cette égalisation des courants. Ceci nécessite d'accumuler suffisamment de charges négatives pour diminuer le champ à la cathode et augmenter le champ à l'anode pour atteindre cet équilibre.

Enfin, la densité du courant de conduction et le calcul du champ à la cathode après stabilisation fournissent un critère d'évaluation du niveau d'injection des charges.

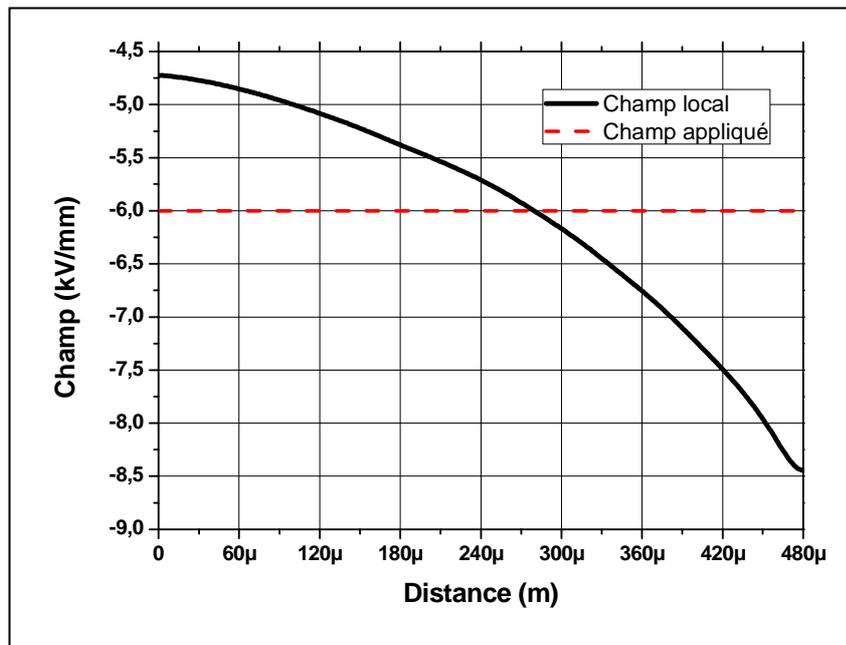


Figure 5- 7 : Distribution du champ dans le volume de PET de 480 µm après 50 heures de polarisation sous un champ moyen de 6 kV/mm ; 60°C

5.1.2.5. Estimation de la hauteur de la barrière de potentiel.

En régime permanent, avec le champ à la cathode calculé ci-dessus et connaissant la densité de courant, une estimation peut être faite de la barrière de potentiel en considérant une loi de type Schottky.

En prenant une permittivité relative $\epsilon_r=3$, le calcul conduit à une hauteur de barrière de l'ordre de 1.41 eV. Ce niveau peut être comparé à la valeur de 1.35 eV proposée dans [5.4].

En réalité, une extrapolation à champ nul de mesures pour plusieurs champs électriques serait nécessaire pour conforter cette évaluation.

5.2. PARAMETRES MODIFIANT L'INJECTION.

5.2.1. Influence de la nature des électrodes métallisées

5.2.1.1. Résultats.

Afin d'étudier l'influence de la nature des électrodes sur l'injection de charges, quatre échantillons ont été métallisés sur les deux faces avec des métaux différents : argent (Ag), aluminium (Al), or (Au) et nickel (Ni). Les quatre échantillons ont été polarisés sous 6 kV/mm à 60°C. La Figure 5- 8 représente les signaux mesurés sous champ après 2 minutes de polarisation des 4 échantillons. Ces signaux de calibration sont logiquement identiques, la métallisation n'intervenant pas sur les valeurs de capacité. Cela permet donc de comparer directement les signaux mesurés hors champ.

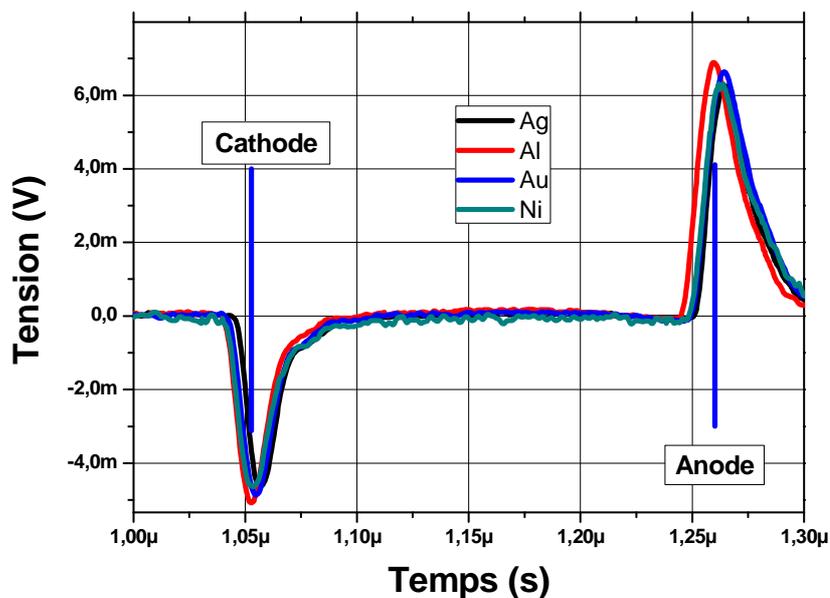


Figure 5- 8 : Signaux mesurés sous champ après 2 minutes de polarisation pour 4 échantillons métallisés avec 4 métaux différents ; épaisseur 480 μm ; 6 kV/mm ; 60°C

Les Figure 5- 9 à Figure 5- 11 représentent respectivement les signaux de mesures hors champ après 1h30, 3h et 5h de polarisation pour les quatre échantillons. Dans ces quatre cas, seules des charges négatives sont observées dans le volume. Ce type de distribution a déjà été observé au paragraphe précédent. Il résulte de l'injection et du transport de charges négatives.

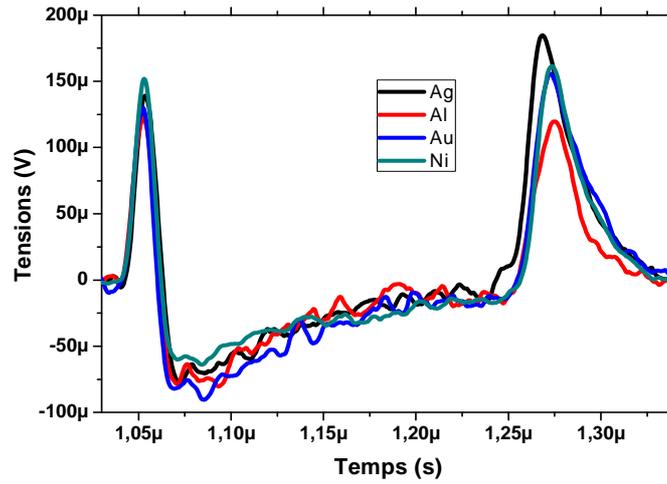


Figure 5- 9 : Signaux de mesure de charges d'espace hors champ avec différents métaux, après 1h30 de polarisation ; tension 3 kV ; PET de 480 μm ; 60°C.

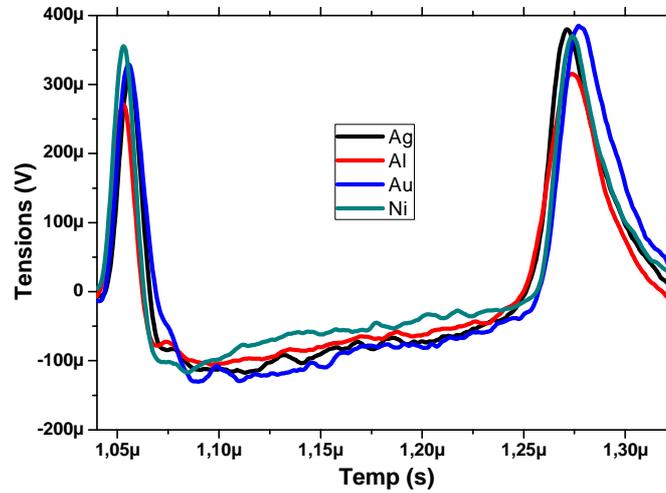


Figure 5- 10 : Signaux de mesure de charges d'espace hors champ avec différents métaux, après 3h de polarisation ; tension 3 kV ; PET de 480 μm ; 60°C.

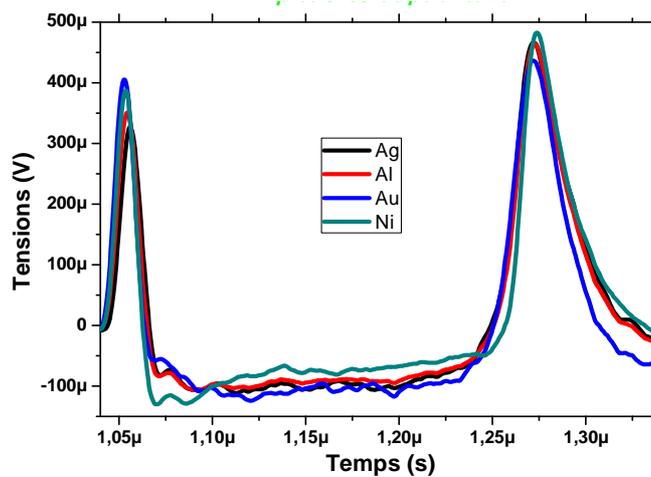


Figure 5- 11 : Signaux de mesure de charges d'espace hors champ avec différents métaux, après 5h de polarisation ; tension 3 kV ; PET de 480 μm ; 60°C.

5.2.1.2. Discussion.

Selon une loi d'injection de type Schottky, les électrons sont injectés par dessus la barrière de potentiel et la quantité de charge injectée dépend de la hauteur de la barrière. Celle-ci dépend du travail de sortie du métal. Plus le travail de sortie est petit, plus les électrons sont facilement injectés (voir chapitre 1 paragraphe 1.2).

Néanmoins, aucune différence significative n'est détectée dans les distributions de charge des trois figures précédentes. Ceci incite à penser que dans les conditions d'expérience utilisées, les états de surface facilitant l'injection sont prédominants.

En effet, certains auteurs avaient montré avec des mesures de photocourants que dans le PET l'injection d'électrons n'est que très peu sensible à la nature du métal mais est plutôt contrôlé par des états de surface [5.10, 5.11]. Ces états de surface, en fait des pièges à électrons, sont attribués aux molécules d'oxygène à la forte affinité électronique adsorbées sur le polymère [5.10]. Pour ces mêmes auteurs, l'injection dépend de la nature du métal dans la plupart des polymères. Le polyimide est un des rares exemples relatés par les mêmes auteurs de polymère où les états de surface seraient également dominants [5.12]. Néanmoins, des effets du métal de la cathode ont été observés dans le PET comme dans le PEN de structure proche (voir paragraphe 1.2.4.). Une influence du travail de sortie des métaux d'électrodes, comme l'injection de trous avec des électrodes d'or et pas avec des électrodes en aluminium a pourtant été rapportée [5.13, 5.14]. C'est ce qui avait aussi été observé à la fois sur une résine époxyde et lors de nos premières mesures sur le PET [5.15]. Mais il s'agissait d'un PET amorphe alors que celui que nous avons utilisé ici est semi-cristallin. Le Melinex 238 d'ICI utilisé dans [5.13, 5.14], spécifié comme transparent à 88%, devait donc être aussi essentiellement amorphe. La cristallinité des échantillons utilisés dans [5.10, 5.11] n'a pas été précisée. L'injection dans le PET amorphe serait alors fonction du métal de l'électrode ce qui ne serait pas le cas pour le PET semi-cristallin. Les phases amorphes sont connues pour faciliter le transport de charges [5.16]. Ce serait alors l'injection qui serait limitante. Dans le PET semi-cristallin au contraire, le piégeage et le transport de charges limiteraient le champ à l'interface injectrice et le courant d'injection.

5.2.2. Influence d'un vieillissement par UV

5.2.2.1. Résultats.

La face de la plaque de PET qui sera utilisée contre la cathode de l'échantillon PET est irradiée sous rayonnement UV pendant 24 h à la température de 60°C. Les spectres d'absorption infrarouge de l'échantillon vierge et de l'échantillon irradié sont comparés sur la

Figure 5- 12. Une nouvelle bande d'absorption à 2360 cm^{-1} montre que l'échantillon a subi une dégradation.

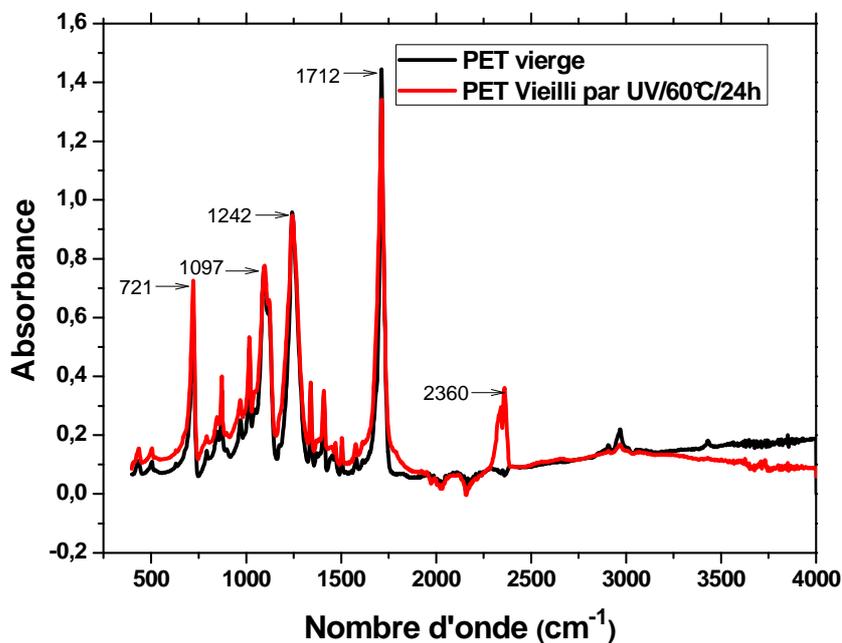


Figure 5- 12 : Comparaisons des spectres d'absorption infrarouge des échantillons vierge et vieilli.

La Figure 5- 13 et la Figure 5- 14 présentent les comparaisons des mesures hors tension de charges d'espace pour les échantillons vierges et vieillis après 1h30 et 3h30 de polarisation sous 10 kV/mm à la température de 60°C .

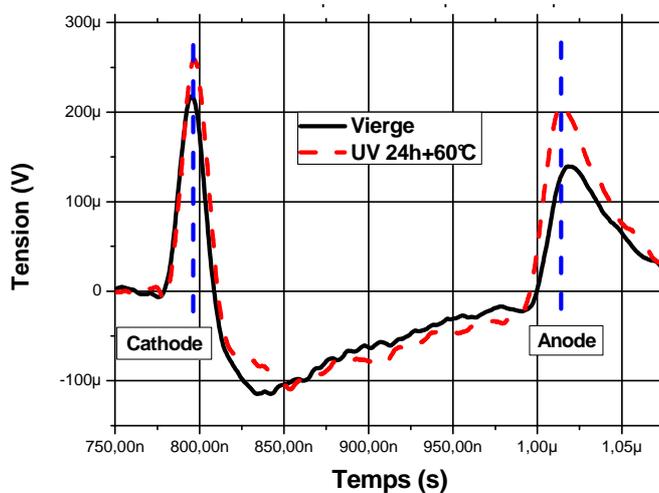


Figure 5- 13 : Comparaison des échantillons vierges et vieillis après 1h30 de polarisation sous 10 kV/mm à 60°C .

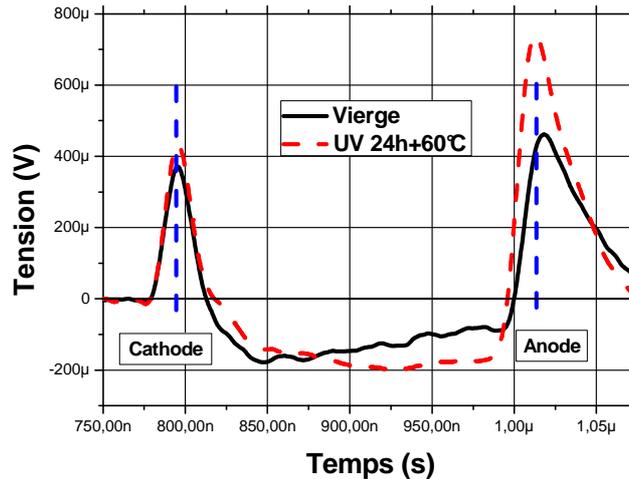


Figure 5- 14 : Comparaison des échantillons vierges et vieillis après 3h30 de polarisation sous 10 kV/mm à 60°C

Après 1h30 de polarisation, les signaux des mesures des charges d'espace entre deux échantillons sont proches. Après 3h30, il apparaît une diminution des charges à la cathode et une augmentation à l'anode. En comparant à la dynamique des charges observées au début de ce chapitre (§ 5.1.1.1.), cela signifie que les charges négatives injectées traversent l'échantillon et s'accumulent plus rapidement à proximité de l'anode dans l'échantillon vieilli.

5.2.2.2. Discussion.

L'action des UV sur le PET provoque la formation de groupes carboxyles sur les couches superficielles du matériau (de l'ordre du μm) [5.17]. Dans la mesure où ces groupes sont susceptibles de fixer facilement des électrons, cette irradiation favoriserait l'injection. Cependant, elle ne modifie pas le transport des charges d'une électrode à l'autre.

Il apparaît non pas une plus forte accumulation de charges à la cathode mais un transfert et une accumulation plus rapide de ces charges vers l'anode. Un débit de charge plus important vers l'anode alors que le champ au cœur du matériau est moins favorable sur l'échantillon traité ne s'expliquerait que par une limitation par l'injection. L'amplitude de l'injection de charge se caractériserait alors par le temps de stabilisation des charges à l'anode : plus l'injection est élevée, plus la stabilisation décrite au paragraphe 5.1.2.3. serait atteinte rapidement. Des mesures à temps plus long sont nécessaires pour confirmer ce point.

Cependant, le traitement thermique de 24 h à 60°C a pu également modifier les propriétés de conduction ou d'injection du matériau en modifiant par exemple le taux de cristallinité du matériau, bien que la température soit restée inférieure à la transition vitreuse. Des effets en apparence contradictoires de la température ont été relatés [5.4]. Des mesures

spécifiques après traitement thermique sans irradiation UV ou après irradiation UV à 20°C permettraient de discerner les effets respectifs des deux traitements.

5.2.3. Rugosité de la surface.

5.2.3.1. Résultats.

Avec la métallisation des échantillons, une rugosité du polymère peut induire des renforcements de champs locaux susceptibles de modifier l'injection. Afin d'étudier l'influence de la rugosité, nous avons utilisé deux échantillons : un échantillon avec la surface du film telle que fournie par le fabricant et l'autre avec une rugosité accrue par abrasion manuelle au papier de verre. Les profils des deux échantillons sont mesurés avec le profilomètre (Figure 5- 15).

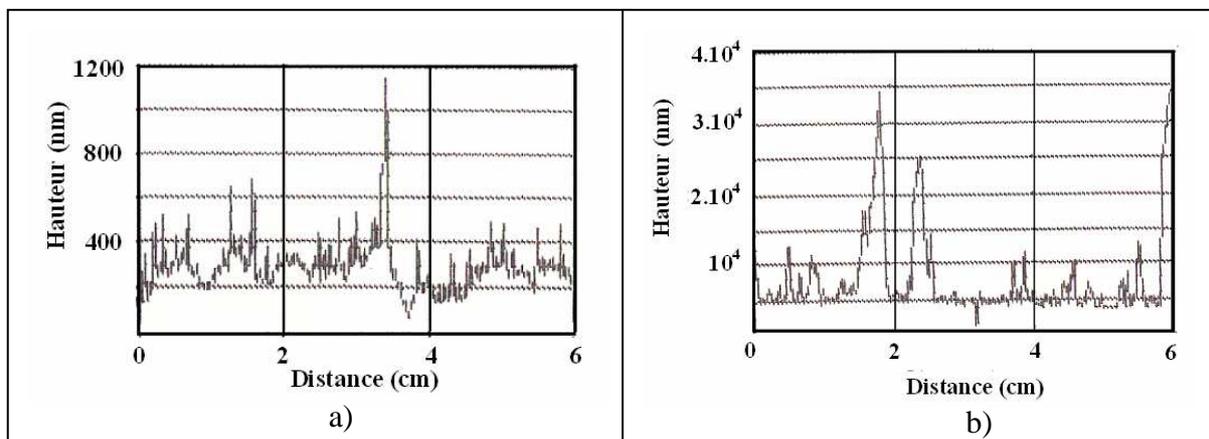


Figure 5- 15 : Rugosité de l'échantillon lisse (a) et de l'échantillon rugueux (b)

Pour caractériser la rugosité de la surface, l'écart moyen arithmétique du profil R_A de l'échantillon est utilisé. Il correspond à la moyenne arithmétique sur une longueur de base L de toutes les distances $y_i(x)$ entre la ligne moyenne et le profil (comme sur la Figure 5- 16) et est déterminé par la formule suivant :

$$R_A = \frac{1}{L} \int_0^L y_i(x) dx \quad \text{équation 5- 3}$$

Les écarts moyens arithmétiques des échantillons sans changement de la rugosité et avec changement de rugosité sont respectivement $R_A = 107$ nm et $R_A = 5213$ nm.

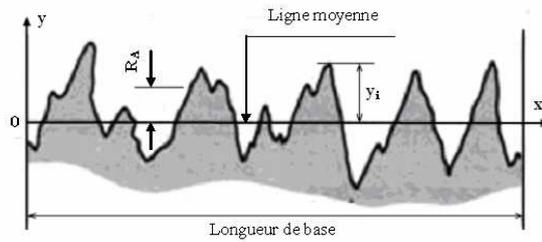


Figure 5- 16 : Ecart moyen arithmétique du profil R_A

La Figure 5- 17 présente les distributions de charge obtenues pour les deux rugosités après 1h30 et 3h de polarisation sous champ de 10 kV/mm à 60°C. Après 1h30 de polarisation comme après 3h, les signaux obtenus sont identiques. Aucun effet de la rugosité n'est donc décelé dans ces conditions expérimentales.

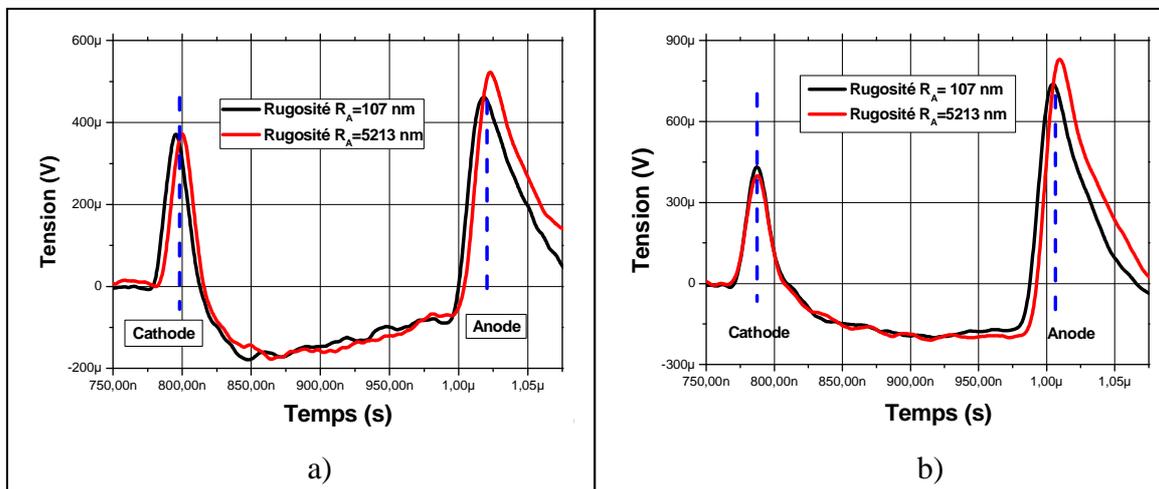


Figure 5- 17 : Comparaison des échantillons lisse et rugueux après 1h30 (a) et 3h (b) de polarisation sous 10 kV/mm à 60 °C

5.2.3.2. Discussion.

L'influence de la rugosité sur l'injection de charges a par ailleurs été mise en évidence à fort champ [5.18]. Il apparaît que ce n'est donc pas le cas dans la gamme de champ autour de 10 kV/mm et dans nos conditions expérimentales.

Une loi d'injection de type Schottky permet d'expliquer un moindre effet d'un facteur de renforcement de champ local pour un champ moyen inter-électrodes plus faible [5.19]. Cet effet est illustré sur la Figure 5- 18 pour un renforcement de champ à la cathode de 5. Ainsi pour un champ moyen de 6 kV/mm, un renforcement local d'un facteur 5 augmente le courant injecté d'un facteur 10 alors que pour un champ moyen de 60 kV/mm, cette augmentation de densité de courant est de plus de trois décades, donc plus de cent fois plus.

Ceci expliquerait une moindre influence de la rugosité par rapport à ce qui a pu être observé à fort champ mais n'explique pas pourquoi les différences observées sont aussi faibles.

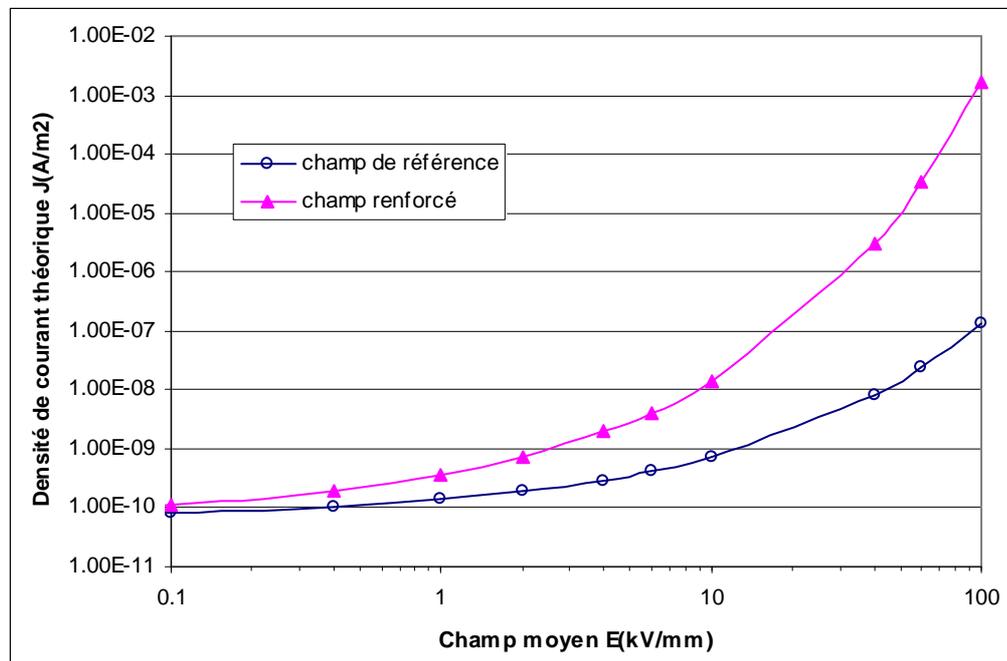


Figure 5- 18 : influence d'un facteur 5 de renforcement de champ à la cathode en fonction du champ moyen pour une densité de courant de type Schottky.

5.2.4. Influence de l'épaisseur

5.2.4.1. Résultats.

Afin d'étudier l'influence de l'épaisseur de l'échantillon sur l'injection des charges, deux échantillons d'épaisseurs 350 μm et 480 μm ont été utilisés. Les mesures des charges d'espace sont réalisées pour les deux champs 5 kV/mm et 10 kV/mm à la température de 60°C.

a. Polarisation sous un champ de 5 kV/mm

De la Figure 5- 19 à la Figure 5- 23 sont présentées les distributions des charges de 1 h à 5 h de polarisation pour les deux épaisseurs, en valeurs absolues et en valeurs relatives. Les distributions de charges en valeurs réelles sont assez proches pour les deux épaisseurs sur une large partie de la distance inter-électrodes. L'accumulation des hétérocharges pour la plus faible épaisseur provoque un écart côté anode. Les distributions en valeurs relatives tendent à se superposer lorsque l'accumulation des charges d'espace se stabilise.

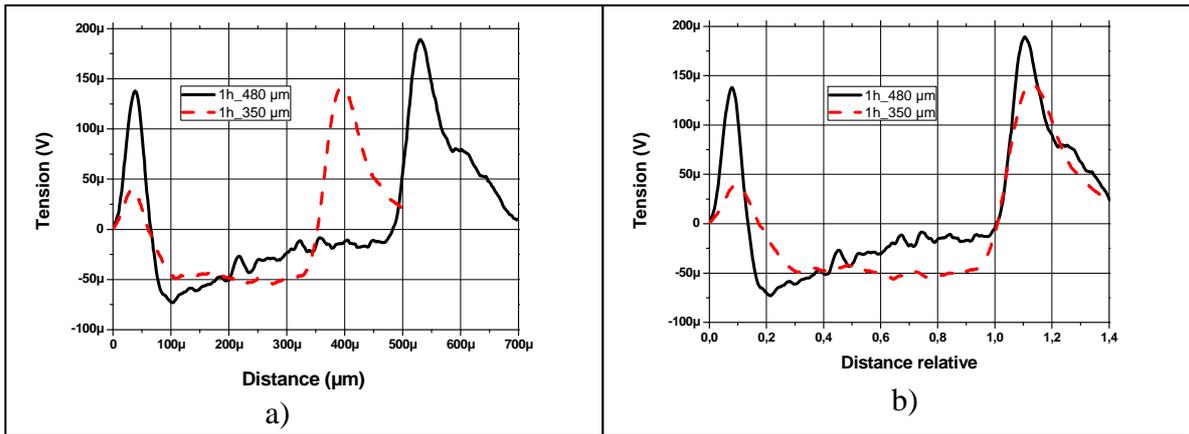


Figure 5- 19 : Comparaison des signaux de mesures de charges d'espace hors tension après 1 h de polarisation sous 5 kV/mm à 60°C des deux échantillons d'épaisseur 350 μm et 480 μm. Métallisation Ag

a) Distance en μm, b) Distance relative à enlever ?

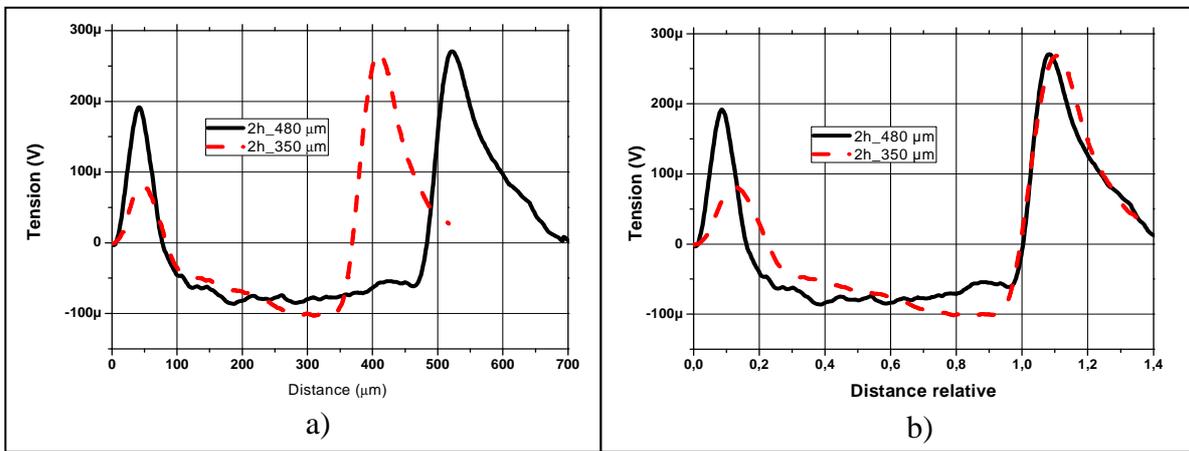


Figure 5- 20 : Comparaison des signaux de mesures de charges d'espace hors tension après 2h de polarisation sous 5 kV/mm à 60°C des deux échantillons d'épaisseur 350 μm et 480 μm. Métallisation Ag

a) Distance en μm, b) Distance relative

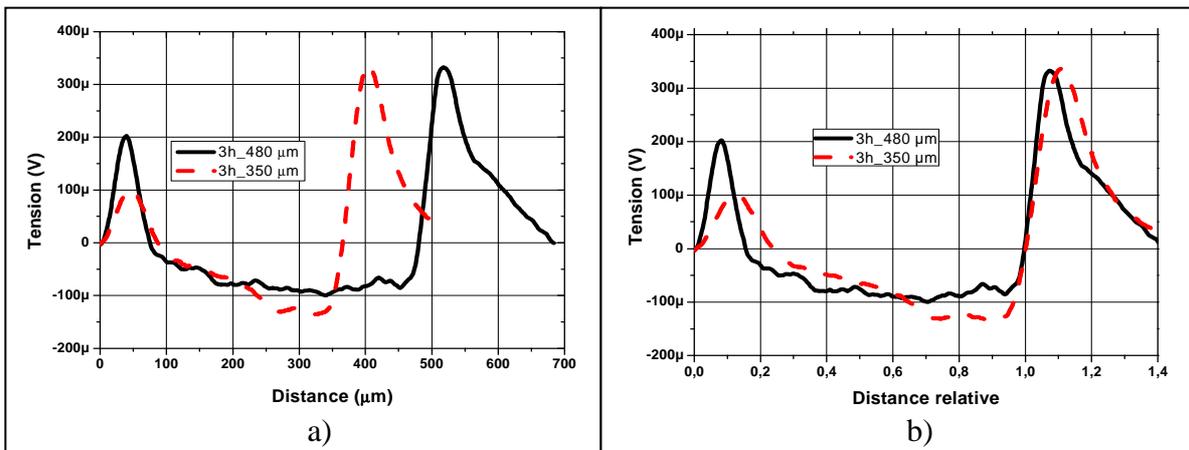


Figure 5- 21 : Comparaison des signaux de mesures de charges d'espace hors tension après 3h de polarisation sous 5kV/mm à 60°C des deux échantillons d'épaisseur 350 μm et 480 μm. Avec métallisation Ag

a) Distance en μm, b) Distance relative

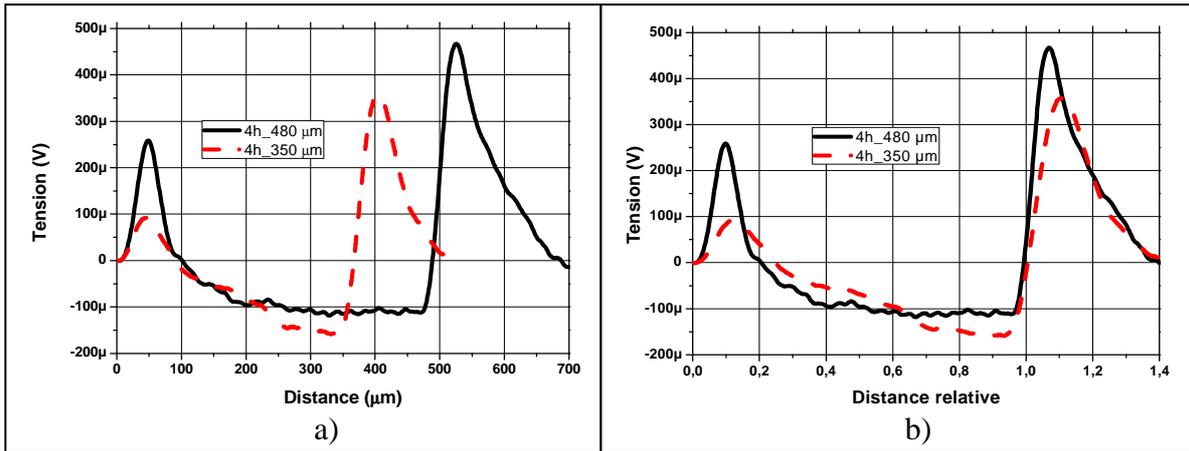


Figure 5- 22 : Comparaison des signaux de mesures de charges d'espace hors tension après 4h de polarisation sous 5 kV/mm à 60°C des deux échantillons d'épaisseur 350 μm et 480 μm , avec métallisation Ag
a) Distance en μm , b) Distance relative

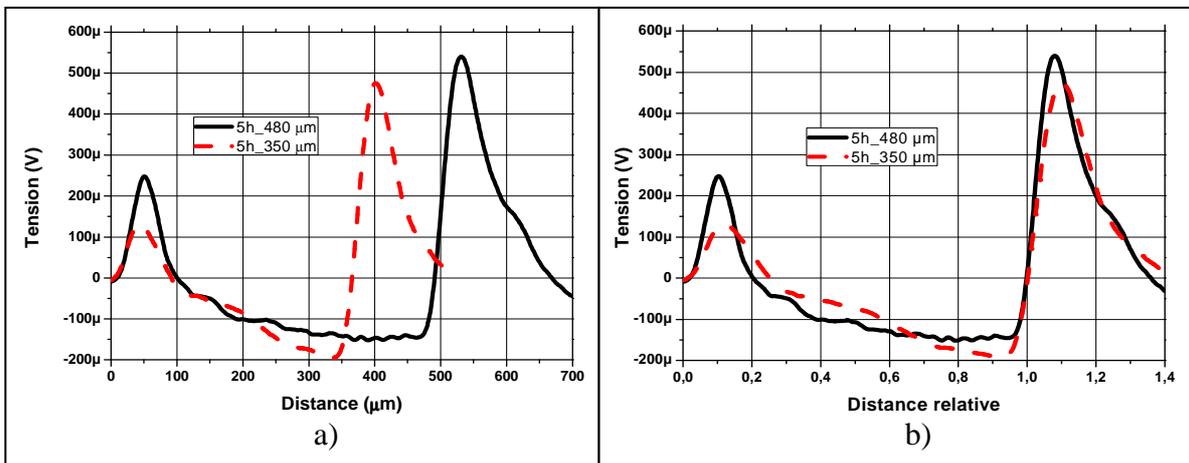


Figure 5- 23 : Comparaison des signaux de mesures de charges d'espace hors tension après 5h de polarisation sous 5 kV/mm à 60°C des deux échantillons d'épaisseur 350 μm et 480 μm , avec métallisation Ag
a) Distance en μm , b) Distance relative

b. Polarisation sous un champ de 10 kV/mm

De la Figure 5- 24 à la Figure 5- 26 sont présentées les distributions des charges de 1h30 à 5h sous un champ de 10 kV/mm. De façon plus nette que pour 5 kV/mm, la Figure 5- 24 a montre que les distributions de charges en valeurs réelles sont confondues pour les deux épaisseurs sur l'essentiel de la distance inter-électrodes. Pour l'épaisseur de 350 μm , l'accumulation de charges négatives à l'anode commence à être visible après 1h30. Cette accumulation est plus nette après 3h (Figure 5- 25) et 5h (Figure 5- 26). Ici aussi, ce sont logiquement les distributions en valeurs relatives qui tendent à se superposer lorsque l'accumulation des charges d'espace se stabilise. Une mesure supplémentaire au-delà de 5 h aurait sans doute permis d'obtenir une bonne superposition des courbes.

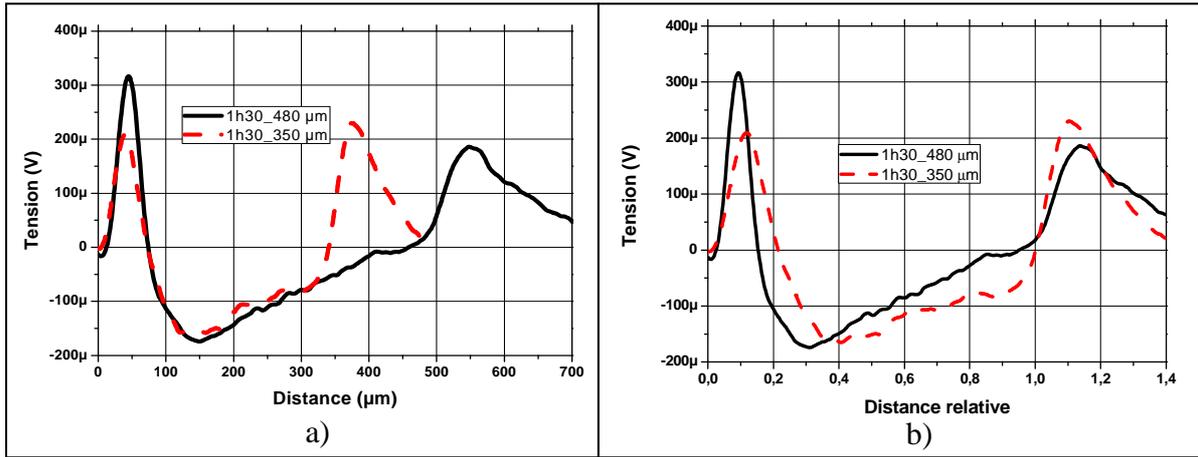


Figure 5- 24 : Comparaison des signaux de mesures de charges d'espace hors tension après 1h30 de polarisation sous 10 kV/mm à 60°C des deux échantillons d'épaisseur $350 \mu\text{m}$ et $480 \mu\text{m}$, avec métallisation Ag
 a) Distance en μm , b) Distance relative

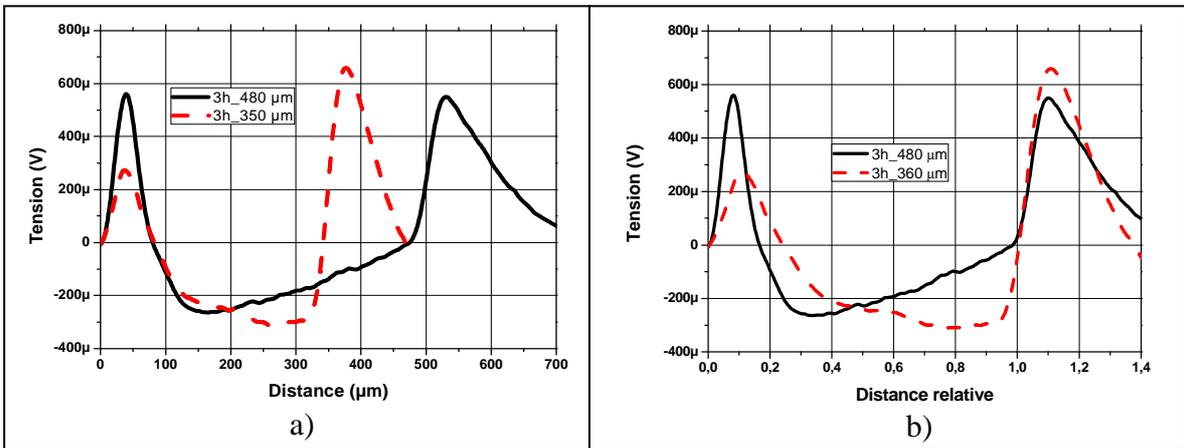


Figure 5- 25 : Comparaison des signaux de mesures de charges d'espace hors tension après 3h de polarisation sous 10 kV/mm à 60°C des deux échantillons d'épaisseur $350 \mu\text{m}$ et $480 \mu\text{m}$, avec métallisation Ag
 a) Distance en μm , b) Distance relative

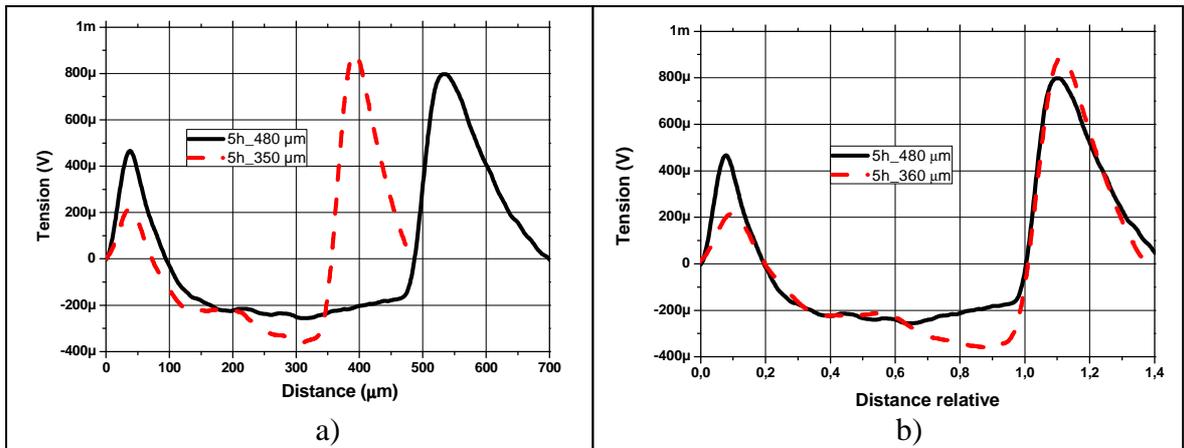


Figure 5- 26 : Comparaison des signaux de mesures de charges d'espace hors tension après 5h de polarisation sous 10 kV/mm à 60°C des deux échantillons d'épaisseur $350 \mu\text{m}$ et $480 \mu\text{m}$, avec métallisation Ag
 a) Distance en μm , b) Distance relative

5.2.4.2. Discussion

L'augmentation du temps de stabilisation avec la distance inter-électrodes souligne que le temps de transfert des charges à travers le diélectrique intervient. Ce temps de stabilisation semble sensiblement proportionnel à l'épaisseur de l'échantillon.

5.3. RESULTATS POUR L'INJECTION DES CHARGES SOUS LA TENSION ALTERNATIVE

La Figure 5- 27 représente les signaux de mesure pour différents angles de phase lorsque l'échantillon est soumis à un champ alternatif de $6 \text{ kV}_{\text{crête}}/\text{mm}$ et de fréquence 1 Hz.

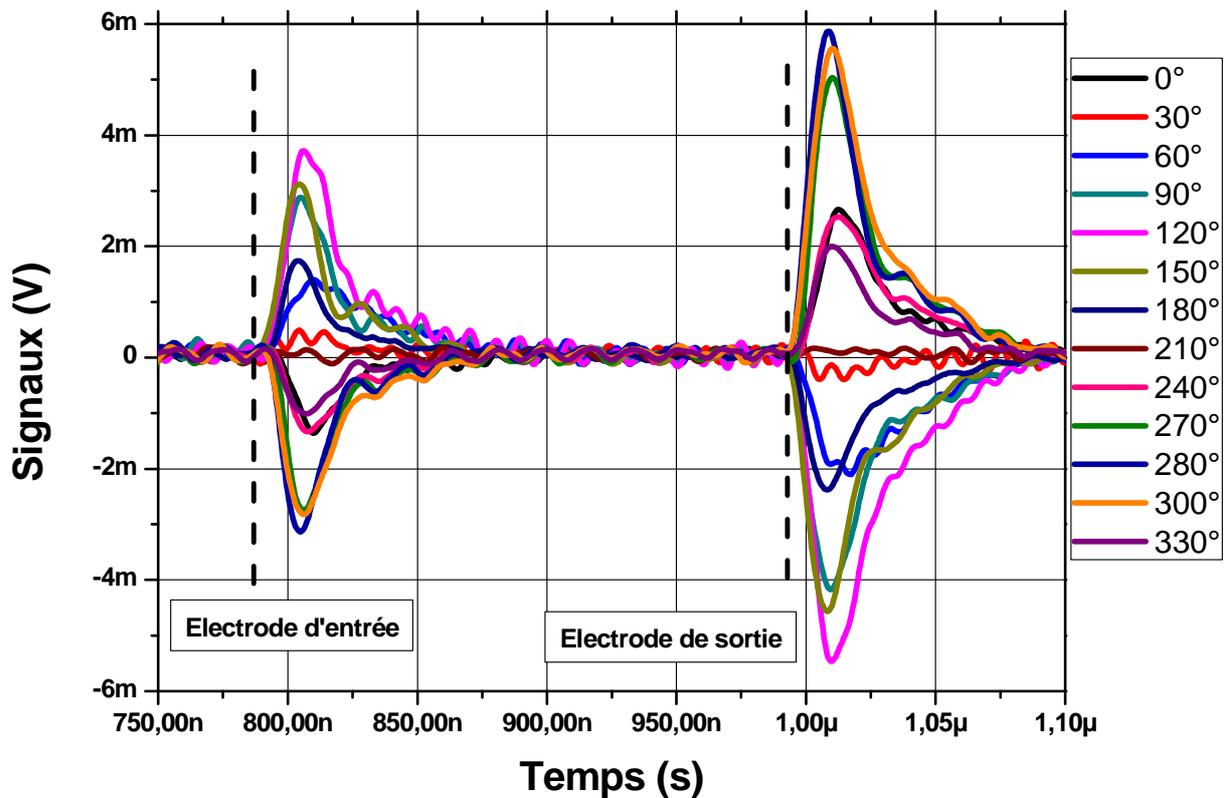


Figure 5- 27 : Signaux LIPP mesurés sous le champ alternatif $6 \text{ kV}_{\text{crête}}/\text{mm}$ et 1 Hz appliquée sur un film PET $480 \mu\text{m}$, à 60°C .

Les signaux sont plus bruités que sous tension continue avec la superposition d'un signal de fréquence 100 MHz et d'amplitude $0,5 \text{ mV}_{\text{cc}}$. En-dehors de ce bruit supplémentaire, les signaux présentent une allure similaire à ceux obtenus sous tension continue avec en particulier un pic de sortie agrandi en raison de la réflexion de l'onde à l'interface d'air située entre la métallisation arrière du film et l'électrode massive (voir § 2.4.1.2). Compte-tenu de la réflexion théorique d'un facteur deux à cette électrode, l'atténuation de l'onde lors de sa traversée de l'échantillon peut être estimée. La valeur du coefficient d'atténuation $\alpha = 0,77 \text{ mm}^{-1}$ est logiquement en accord avec celle trouvée sous tension continue (voir § 2.4.1.2).

La Figure 5- 28 présente l'amplitude du pic d'entrée en fonction de l'angle de la phase de la tension alternative appliquée. Malgré quelques imperfections, cette courbe décrit un signal sinusoïdal de même fréquence que la tension appliquée avec un retard de phase de l'ordre de 20°. Ce déphasage est dû à la chute de la tension aux bornes de la résistance. Cette chute de tension diminue aussi la tension appliquée sur l'échantillon.

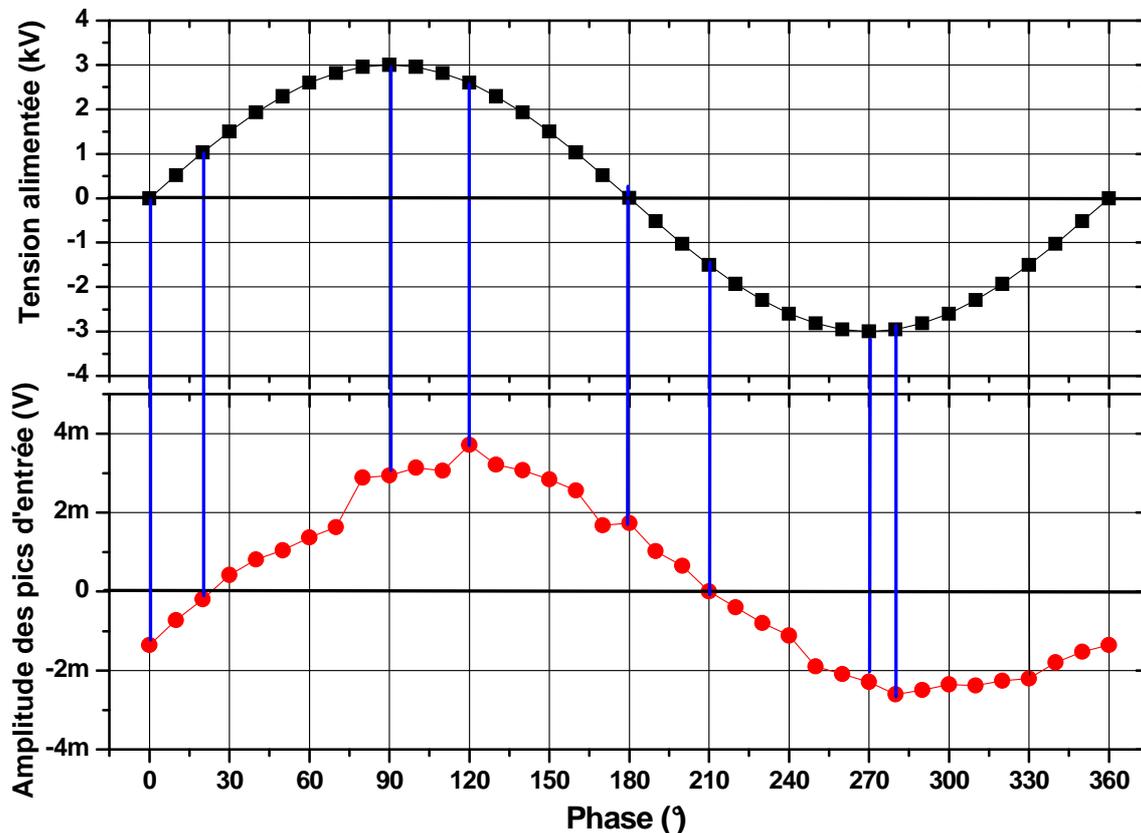


Figure 5- 28 : Amplitude du pic d'entrée en fonction de l'angle de phase de la tension alternative en sortie de l'amplificateur haute tension ; PET 480 μm à 60°C.

5.4. CONCLUSIONS

- Les charges d'espace observées à 60°C sous 6 kV/mm dans le PET sont des charges négatives injectées qui vont s'accumuler en grande partie à proximité de l'anode.
- La comparaison des mesures de charges d'espace et des mesures de courants transitoires permet de constater l'équivalence entre le courant d'absorption et le courant induit par l'injection et le transport des charges observées dans le volume.
- Ceci permet de proposer une justification des phénomènes observés :
 - La stabilisation est atteinte lorsque le courant de neutralisation des charges négatives à l'anode correspond au courant d'injection à la cathode. L'égalité de ces deux courants est rendu possible par l'accumulation de charges négatives à proximité de l'anode qui renforcent le champ et donc le courant à l'anode.

- La durée du régime transitoire correspond donc à la durée nécessaire pour transporter et accumuler les charges nécessaires pour égaliser ces courants d'injection et de neutralisation.
- Plusieurs paramètres de surface ont été considérés. Dans les conditions de l'étude, il apparaît que :
 - La nature du métal influe peu sur l'injection qui est contrôlée par des pièges à la surface du PET.
 - La rugosité a une faible influence. Celle-ci devrait être plus importante à plus fort champ.
 - L'injection ne dépend pas de l'épaisseur de l'échantillon, donc pas de la tension appliquée, mais uniquement du champ à l'interface injectrice. En revanche, puisque la stabilisation n'a lieu qu'après le transport et l'accumulation vers l'électrode opposée, la durée de stabilisation augmente avec l'épaisseur.
- Un dispositif de mesure des charges d'espace sous tension alternative a été mis en place.

CONCLUSION GENERALE

Cette thèse était consacrée à l'étude de l'injection de charges dans le PET sous tension continu et alternative. Elle était centrée autour de la méthode LIPP dans laquelle l'onde de pression est induite par l'interaction d'une impulsion laser sur une cible en contact avec le matériau diélectrique.

Les études bibliographiques des paramètres qui influencent l'injection de charges dans les polymères sous tension continue et alternative ont été effectuées.

Les signaux obtenus par la méthode LIPP sous tension et hors tension ont été analysés en considérant l'onde de pression comme une impulsion de Dirac ou avec une largeur non nulle.

Afin d'optimiser les mesures, l'étude physique de la génération de l'onde de pression a été réalisée pour différents liquides transparents ou opaques déposés sur une cible métallique.

Les dispositifs expérimentaux ont été adaptés pour permettre l'étude de la génération de l'onde de pression et les mesures des charges injectées sous tension alternative.

Les conclusions sur les résultats obtenus sont rappelées ci-dessous.

Pour l'étude physique de la génération de l'onde de pression

L'impact de l'impulsion laser avec un liquide transparent ou opaque déposé sur une cible métallique produit une onde de pression. Dans la gamme d'énergie 0-350 mJ, les différents mécanismes de génération d'onde de pression ont été mis en évidence et interprétés pour les deux types de liquide gouverné par la dilatation thermique ou vaporisation.

Pour le liquide transparent :

- L'onde de pression peut être produite par l'impact d'une impulsion laser à travers un liquide transparent déposé sur une surface métallique absorbante.
- L'onde de pression est produite à l'interface liquide/cible métallique.
- Le chauffage du liquide par l'impact de l'impulsion laser (8-14ns) a lieu hors équilibre thermodynamique (liquide surchauffé).
- La rugosité de la cible augmente la sensibilité de la conversion d'énergie en augmentant l'absorption du faisceau laser.

- Le mécanisme de génération de l'onde de pression est contrôlé par la dilatation thermique du liquide si l'énergie laser est inférieure au seuil d'ébullition du liquide et par la vaporisation du liquide si l'énergie laser est supérieure.
- Le seuil d'ébullition dépend :
 - de l'absorptivité de la cible.
 - des propriétés thermiques de la cible.
 - des propriétés du liquide déposé sur la cible.

Pour le liquide opaque :

- L'onde de pression peut être produite par l'impact impulsion laser sur un liquide absorbant à la longueur d'onde du laser.
- Le mécanisme de génération de l'onde de pression est contrôlé par la dilatation thermique et la vaporisation. Le mécanisme de vaporisation est d'autant plus prépondérant que l'énergie du laser est grande.
- La sensibilité de la mesure (amplitude de l'onde de pression) est meilleure avec des épaisseurs de liquide faibles.
- La résolution temporelle de l'onde induite est dégradée soit lorsque l'énergie laser est suffisamment forte pour provoquer une déformation de la surface, ce qui induit un élargissement de l'onde induite, soit lorsque l'épaisseur de l'encre augmente ce qui conduit à un plus grand élargissement de l'onde au cours de sa propagation.
- L'ablation totale de l'encre de Chine déposée sur la cible peut avoir lieu si l'énergie de l'impulsion laser dépasse un seuil d'énergie. Ce seuil dépend de la hauteur de l'encre de Chine déposée sur la cible. Les mécanismes mis en jeu au-delà de ce niveau d'énergie conduisent à une mauvaise reproductibilité de l'onde de pression induite.

Pour l'optimisation des mesures :

- La sensibilité de la technique est meilleure avec l'encre de Chine qu'avec les liquides transparents utilisés.
- Les conditions optimales sont obtenues à 20°C avec une couche d'encre fine (environ 20 μm) et une énergie laser de 200 mJ.

- Les conditions optimales sont obtenues à 60°C avec un mélange d'encre et d'eau dans un ratio de 1 pour 3, une fine couche de liquide (environ 20 µm) et une énergie laser de 200 mJ.

Pour l'injection de charge

- Les charges d'espace observées à 60°C sous 6 kV/mm dans le PET sont des charges négatives injectées qui vont s'accumuler en grande partie à proximité de l'anode.
- Dans ces conditions de champ et de température, la comparaison des mesures de charges d'espace et des mesures de courants transitoires permet de constater l'équivalence entre le courant d'absorption et le courant induit par l'injection et le transport des charges observées dans le volume.
- Ceci permet de proposer une justification des phénomènes observés :
 - La stabilisation est atteinte lorsque le courant de neutralisation des charges négatives à l'anode correspond au courant d'injection à la cathode. L'égalité de ces deux courants est rendu possible par l'accumulation de charges négatives à proximité de l'anode qui renforcent le champ et donc le courant à l'anode.
 - La durée du régime transitoire correspond donc à la durée nécessaire pour transporter et accumuler les charges nécessaires pour égaliser ces courants d'injection et de neutralisation.
- Plusieurs paramètres de surface ont été considérés. Dans les conditions de l'étude, il apparaît que :
 - La nature du métal influe peu sur l'injection qui est contrôlée par des pièges à la surface du PET.
 - La rugosité a une faible influence. Celle-ci devrait être plus importante à plus fort champ.
 - L'injection ne dépend pas de l'épaisseur de l'échantillon, donc pas de la tension appliquée, mais uniquement du champ à l'interface injectrice. En revanche, puisque la stabilisation n'a lieu qu'après le transport et l'accumulation vers l'électrode opposée, la durée de stabilisation augmente avec épaisseur.

- La mesure sous tension alternative est possible à différentes phases de la tension appliquée et pour différentes fréquences. Le dispositif est opérationnel pour des tensions jusqu'à $7 \text{ kV}_{\text{eff}}$ et des fréquences jusqu'à 10^{-2} Hz .

BIBLIOGRAPHIE

BIBLIOGRAPHIE DE L'INTRODUCTION

- [0.1] L.A. Dissado, G. Mazzanti and G.C. Montanari, "The role of space charges in the electrical aging of insulating materials ", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 4, N°5, 1997, p. 496-506.
- [0.2] Y. Zhang, J. Lewiner, C. Alquié, N. Hampton, "Evidence of a strong correlation between space charge buildup and breakdown in cable insulators under DC stress ", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 3, N°6, 1996, p. 778-783.
- [0.3] R. Liu, T. Takada and N. Takasu, "Pulsed electro-acoustic method for measurement of space charge distribution in power cables under both dc and ac electric fields", *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 26, 1993, p. 986-993.
- [0.4] C. Guillermin, P. Rain, A. Sylvestre, S. Rowe, "Influence de la température sur l'apparition de charges d'espace dans une résine époxy ", *3^{ème} Congrès de la Société Française d'Electrostatique SFE 2002*, Toulouse, 12 p., 3-4 juillet 2002.

BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 1

- [1.1] C. Laurent, “Diélectriques solides et charge d’espace”, *Techniques de l’ingénieur*, D2305, 1999.
- [1.2] P. Laurenceau, G. Dreyfus, et J. Lewiner, “New Principle for the Determination of Potential Distributions in Dielectrics”, *Physical Review Letters*, vol. 38, 1977, p. 46-49.
- [1.3] Yewen Zhang, J. Lewiner, C. Alquié, et N. Hampton, “Evidence of strong correlation between space-charge buildup and breakdown in cable insulation”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 3, 1996, p. 778-783.
- [1.4] L.A. Dissado et J.C. Fothergill, *Electrical degradation and breakdown in polymers*, IET, Peter Peregrinus, 1992.
- [1.5] V. Meritt, *Electrical properties of Polymers*, Academic Press, New York, 1982.
- [1.6] R. Dalven, *Introduction to applied solid state physics*, Plenum Press, 1990.
- [1.7] S. Serra, E. Tosatti, S. Iarlori, S. Scandolo, et G. Santoro, “Interchain electron states in polyethylene”, *Physical Review B*, vol. 62, 2000, p. 4389-4393.
- [1.8] J. O’Dwyer, *The theory of electrical conduction and breakdown in solid dielectrics*, Clarendon press - Oxford, 1973.
- [1.9] D.M. Taylor et T.J. Lewis, “Electrical conduction in polyethylene terephthalate and polyethylene films”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 4, 1971, p. 1346-1357.
- [1.10] R.H. Fowler et L. Nordheim, “Electron Emission in Intense Electric Fields”, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, vol. 119, Mai 1928, p. 173-181.
- [1.11] T. Mizutani, Y. Takai, T. Osawa, et M. Ieda, “Barrier heights and surface states of metal-polymer (PET) contacts”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 9, 1976, p. 2253-2259.
- [1.12] T. Mizutani, “Behavior of Charge Carriers in Organic Insulating Materials”, *2006 Annual Report - IEEE Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP)*, 2006, p. 1-10.
- [1.13] J. Parpal, J. Crine, et Chinh Dang, “Electrical aging of extruded dielectric cables. A physical model”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 4, 1997, p. 197-209.
- [1.14] M.C. Righi, S. Scandolo, S. Serra, S. Iarlori, E. Tosatti, et G. Santoro, “Surface states and negative electron affinity in polyethylene”, *Physical Review Letters*, vol. 87, 2001, p. 076802 (4 p.).

- [1.15] J. Jones, J. Llewellyn, et T. Lewis, “The contribution of field-induced morphological change to the electrical aging and breakdown of polyethylene”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 12, 2005, p. 951-966.
- [1.16] K. Kojima, Y. Takai, et M. Ieda, “Electronic conduction in polyethylene naphthalate at high electric fields”, *Journal of Applied Physics*, vol. 59, 1986, p. 2655-2659.
- [1.17] A.Y. Ko et J. Hirsch, “Contact-injected space charge in PET”, *Solid State Communications*, vol. 39, 1981, p. 215-218.
- [1.18] Y. Takai, T. Osawa, K.C. Kao, et T.M.A.M. Ieda, “Effects of Electrode Materials on Photocurrents in Polyethylene Terephthalate”, *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 14, 1975, p. 473-479.
- [1.19] S. Sapieha et H.J. Wintle, “Photoinjection into polyethylene terephthalate”, *Canadian Journal of Physics*, vol. 55, 1977, p. 646-653.
- [1.20] J.D. Comins et H.J. Wintle, “Photoelectric effects in poly(ethylene terephthalate) and polyethylene”, *Journal of Polymer Science: Polymer Physics Edition*, vol. 10, 1972, p. 2259-2280.
- [1.21] J. Hirsch, A. Ko, et A. Irfan, “Contact-injected Space Charge in PET”, *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, vol. EI-19, 1984, p. 190-192.
- [1.22] T. Mizutani et Y.T.A.M. Ieda, “Ultraviolet Transient Photocurrents in Polyethylene with Zero External Field”, *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 12, 1973, p. 1553-1557.
- [1.23] Y. Suzuoki, T. Furuta, H. Yamada, S. Han, T. Mizutani, M. Ieda, et N. Yoshifuji, “Study of space charge in polyethylene by direct probing: effects of oxidation”, *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, vol. 26, 1991, p. 1073-1079.
- [1.24] M. Taleb, G. Teyssèdre et S. Le Roy, “Role of the Interface on Charge Build-up in a Low-Density Polyethylene-Surface Roughness and Nature of the Electrode”, *2009 Annual Report - IEEE Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP)*, 2009.
- [1.25] Y. Takai, K. Ishii, T. Mizutani, et M. Ieda, “Photoinjection of holes into poly(2-chloro-p-xylylene (PCPX). II”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 12, 1979, p. 601-609.
- [1.26] Y. Takai, A. Kurachi, T. Mizutani, M. Ieda, K. Seki, et H. Inokushi, “Photoconduction and vacuum ultraviolet photoelectron spectroscopy of poly(p-xylylene)”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 15, 1982, p. 917-924.

- [1.27] P.J. Reucroft et S.K. Ghosh, “Carrier Generation Processes in Poly(N-Vinylcarbazole) Films”, *Physical Review B*, vol. 8, 1973, p. 803-807.
- [1.28] K. Kaneko, E. Nakane, Y. Suzuoki, et T. Mizutani, “Effects of Electrode on Space Charge Properties of Polyimide Films”, *8th International Conference on Properties and applications of Dielectric Materials*, 2006, p. 73-76.
- [1.29] K. Kaneko, R. Shiomi, Y. Suzuoki, T. Mizutani, H. Shiota, et H. Muto, “Effects of Electrode Material on Injection and Space Charge Formation in Polyimide”, *IEEE International Conference on Solid Dielectrics*, 2007, p. 518-521.
- [1.30] G. Chen, T. Tay, A. Davies, Y. Tanaka, et T. Takada, “Electrodes and charge injection in low-density polyethylene using the pulsed electroacoustic technique”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 8, 2001, p. 867-873.
- [1.31] S. Rahman et A. Maradudin, “Effect of surface roughness on the image potential”, *Physical Review B*, vol. 21, 1980, p. 504-521.
- [1.32] G. Palasantzas, “Roughness effects on the electrostatic-image potential near a dielectric interface”, *Journal of Applied Physics*, vol. 82, 1997, p. 351-355.
- [1.33] N. Félici, “Forces et charges de petits objets en contact avec une électrode affectée d'un champ électrique”, *Revue générale de l'électricité*, vol. 75, 1966, p. 1145-1160.
- [1.34] Y. Zhao, G. Wang, T. Lu, G. Palasantzas, et J.T.M.D. Hosson, “Surface-roughness effect on capacitance and leakage current of an insulating film”, *Physical Review B*, vol. 60, p. 9157-9164.
- [1.35] A. Petre, D. Mary, C. Pham, et L. Berquez, “3D cartography of space charges induced by UV irradiation”, *2007 Annual Report - Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP)*, 2007, p. 496-499.
- [1.36] Y. Yamaguchi, N. Hirai, T. Tanaka, Y. Ohki, Y. Tajitsu, M. Kohtoh, et S. Okabe, “Effects of ultraviolet photon irradiation on the space charge accumulation properties of several biodegradable polymers”, *Proceedings of 2005 International Symposium on Electrical Insulating Materials*, vol. 2, 2005, p. 421-424.
- [1.37] Y. Suzuoki, K. Yasuda, T. Mizutani, et M. Ieda, “The influence of oxidation on thermally stimulated currents from trapped carriers in high density polyethylene”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 10, 1977, p. 1985-1990.
- [1.38] T. Mizutani, T. Tsukahara, et M. Ieda, “The effects of oxidation on the electrical conduction of polyethylene”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 13, 1980, p. 1673-1679.

- [1.39] T. Mizutani et K.M.A.M. Ieda, "Influence of Antistatic Agent on Electrical Conduction of Polyethylene", *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 22, 1983, p. 677-680.
- [1.40] T. Mizutani, "Behavior of Charge Carriers in Organic Insulating Materials", *2006 Annual Report - Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP)*, 2006, p. 1-10.
- [1.41] T. Mizutani et S.I.A.M. Ieda, "Oxidation-Enhanced TSC and TSSP of Polyethylene", *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 25, 1986, p. 22-26.
- [1.42] A.E. Davies, G. Chen, X. Wu, N. Hampton, S.J. Sutton, et S.G. Swingler, "Calculation of charge density and electric stress in XLPE compounds", *5th Intel. Conf. Insulated Power Cables*, 1999, p. 728-732.
- [1.43] C. Alquie, C. Bert, J. Freestone, R. Hampton, C. Hennion, J. Lewiner, P. Pyne, et S. Verne, "Measurement of space charge distribution in XLPE cables under AC stress", *Seventh International Conference on Dielectric Materials, Measurements and Applications, (Conf. Publ. No. 430)*, 1996, p. 364-367.
- [1.44] S. Hole, C. Alquie, et J. Lewiner, "Measurement of space-charge distributions in insulators under very rapidly varying voltage", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 4, 1997, p. 719-724.
- [1.45] R. Liu, T. Takada, et N. Takasu, "Pulsed electro-acoustic method for measurement of space charge distribution in power cables under both DC and AC electric fields", *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 26, 1993, p. 986-993.
- [1.46] C. Thomas, G. Teysse, et C. Laurent, "A new method for signal averaging resorting to space charge measurements by the pulsed electro-acoustic method under AC stress", *IEEE International Conference on Solid Dielectrics*, 2007, p. 486-489.
- [1.47] C. Thomas, G. Teysse, et C. Laurent, "A New Method for Space Charge Measurements Under Periodic Stress of Arbitrary Waveform by the Pulsed Electro-Acoustic Method", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 15, 2008, p. 554-559.
- [1.48] Y. Ho, G. Chen, A. Davies, S. Swingler, S. Sutton, R. Hampton, et S. Hobdell, "Measurement of space charge in XLPE insulation under 50 Hz ac electric stresses using the LIPP method", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 9, 2002, p. 362-370.

- [1.49] C. Bert, C. Hennion, J. Lewiner, C. Alquié, N. Hampton, C. Freestone, et S. Verne, “Measurement of space charge distributions under 50 Hz AC stress”, *Proceedings International Conference on Insulated Power Cables, Jicable*, France, 1995, p. 195-199.
- [1.50] S. Holé, C. Alquié, et J. Lewiner, “Space charge distribution determination under AC stress”, *Comptes rendus de l'Académie des sciences. Série 2, Mécanique, Physique, Chimie, Sciences de l'univers, Sciences de la Terre*, vol. 316, 1993, p. 157-162.
- [1.51] X. Wu, G. Chen, A. Davies, Y. Tanaka, S. Sutton, et S. Swingler, “Space charge measurements in polyethylene under dc and ac operating conditions using the PEA technique”, *Eighth International Conference on Dielectric Materials, Measurements and Applications*, 2000, p. 57-62.
- [1.52] A. See, J.C. Fothergill, L.A. Dissado, et J.M. Alison, “Measurement of space charge distribution in solid insulators under rapidly varying voltage using the high-voltage, high speed pulsed electro-acoustic (PEA) apparatus”, *Measurement Science and Technology*, vol. 12, 2001, p. 1227-1234.
- [1.53] P. Notinger, A. Toureille, J. Santana, et M. Albertini, “Space charge in ac-poled XLPE for HV Cables”, *Proceedings 5th International Conference on Insulated Power Cables, Jicable*, Versailles, France, 1999, p. 701-706.
- [1.54] S. Angel, A. Toureille, G. Platbrood, et G. Geerts, “Study of ac charging Ability of XLPE insulating for power cable”, *Proceedings 5th International Conference on Insulated Power Cables, Jicable*, Versailles, France, 1999, p. 656-661.
- [1.55] X. Wang, N. Yoshimura, Y. Tanaka, K. Murata, et T. Takada, “Space charge characteristics in cross-linking polyethylene under electrical stress from dc to power frequency”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 31, 1998, p. 2057-2064.
- [1.56] T. Takada, “Acoustic and optical methods for measuring electric charge distributions in dielectrics,” *1999 Annual Report - Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP)*, vol.1, 1999, p. 1-14.
- [1.57] G. Montanari, F. Palmieri, G. Mazzanti, C. Laurent, et G. Teyssedre, “AC charge injection investigated by means of space charge measurements: threshold and frequency dependence”, *Proceedings of the 7th International Conference on Properties and Applications of Dielectric Materials*, vol.3, 2003, p. 895-899.
- [1.58] Y.L. Chong, G. Chen, H. Miyake, K. Matsui, Y. Tanaka, et T. Takada, “Space charge and charge trapping characteristics of cross-linked polyethylene subjected to ac electric stresses”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 39, 2006, p. 1658-1666.

- [1.59] A. Fujita, S. Bamji, M. Abou-Dakka, et A. Bulinski, "Electroluminescence and space charge distribution in XLPE subjected to ac fields at various frequencies", *2007 Annual Report - Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP)*, 2007, p. 772-775.
- [1.60] C. Thomas, G. Teyssedre, et C. Laurent, "Space Charge Measurements in Low-Density Polyethylene under AC stress by the Pulsed Electro-acoustic Method", *2008 Annual Report - Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP)*, 2008, p. 325-328.
- [1.61] S. Bamji, M. Abou Dakka, et A. Bulinski, "Phase-resolved pulsed electro-acoustic technique to detect space charge in solid dielectrics subjected to AC voltage", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 14, 2007, p. 77-82.
- [1.62] Y. Ho, G. Chen, A. Davies, R. Hampton, S. Swingler, et S. Sutton, "Do semicons affect space charge?", *Proceedings of the 2001 IEEE 7th International Conference on Solid Dielectrics*, 2001, p. 105-108.
- [1.63] Y. Ho, G. Chen, A. Davies, R. Hampton, S. Hobdell, S. Swingler, et S. Sutton, "Space charge measurements in XLPE insulation under 50 Hz ac electric stress," *Eighth International Conference on Dielectric materials, Measurements and Application*, 2000, p. 68-73.
- [1.64] G. Tardieu, G. Teyssedre, C. Laurent, G. Montanari, et L. Raffaelli, "Combined space charge and electroluminescence detection in polyethylene under AC stress", *2001 Annual Report - Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP)*, 2001, p. 32-35.
- [1.65] G. Montanari, L. Raffaelli, F. Palmieri, L. Martinotto, et S. Serra, "Techniques for the estimation of ac space charge accumulation threshold for insulating materials", *2001 Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP)*, 2001, p. 460-464.
- [1.66] G. Montanari, G. Mazzanti, E. Boni, et G. De Robertis, "Investigating ac space charge accumulation in polymers by PEA measurements", *2000 Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP)*, vol.1, 2000, p. 113-116 .
- [1.67] Y. Ho, H. Chen, A. Davies, S. Swingler, S. Sutton, et R. Hampton, "Effect of semiconducting screen on the space charge dynamic in XLPE and polyolefin insulation under DC and 50 Hz AC electric stresses conditions", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 10, 2003, p. 393-403.

- [1.68] C. Laurent, G. Teyssedre, et G. Montanari, "Time-resolved space charge and electroluminescence measurements in polyethylene under ac stress", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 11, 2004, p. 554-560.
- [1.69] C. Laurent, C. Mayoux, et S. Noel, "Mechanisms of electroluminescence during aging of polyethylene", *Journal of Applied Physics*, vol. 58, 1985, p. 4346-4353.
- [1.70] G. Chen, M. Fu, X.Z. Liu, et L.S. Zhong, "ac aging and space-charge characteristics in low-density polyethylene polymeric insulation", *Journal of Applied Physics*, vol. 97, 2005, p. 083713-7.
- [1.71] P. Notingher, A. Toureille, J. Santana, L. Martinotto, et M. Albertini, "Study of space charge accumulation in polyolefins submitted to ac stress", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 8, 2001, p. 972-984.
- [1.72] G. Mazzanti, G. Montanari, et L. Dissado, "A space-charge life model for ac electrical aging of polymers", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 6, 1999, p. 864-875.
- [1.73] J. Simmons, "Theory of metallic contacts on high resistivity solids-I. Shallow traps", *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, vol 32, 1971, p.1987-1999.
- [1.74] J. Simmons, "Theory of metallic contacts on high resistivity solids-(II) Ddeep traps", *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, vol 32, 1971, p. 2581-2591.
- [1.75] P. Morin, "Etude des phénomènes de conduction dans un diélectrique par la mesure simultanée des charges d'espace et du courant externe", *Thèse de doctorat de l'université Paris VI*, 1995.
- [1.76] M. Fukuma, M. Nagao, M. Kosaki, K. Fukunaga, et T. Maeno, "Short interval measurement of transient space charge distribution and electrical breakdown in polymer film in high temperature region", *2001 Annual Report - Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena,(CEIDP)*, 2001, p. 504-507.
- [1.77] O. Fanjeau, D. Mary, et D. Malec, "A note on charge recombination in low density polyethylene under a moderate ac 50 Hz field", *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 33, 2000, p. L61-L64.
- [1.78] D. Mary, D. Malec, et O. Fanjeau, "Strong evidence of charge recombination in LDPE under a moderate 50 Hz AC field", *2000 Annual Report - Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena,(CEIDP)*, vol.1, 2000, p. 141-144.
- [1.79] L. Cisse, G. Teyssedre, G. Mary, et C. Laurent, "Influence of voltage frequency, the electrode material and a superimposed dc bias on ac electroluminescence of polymer

films”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 9, 2002, p. 124-129.

BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 2

- [2.1] P. Laurenceau, G. Dreyfus, et J. Lewiner, “New Principle for the Determination of Potential Distributions in Dielectrics”, *Physical Review Letters*, vol. 38, 1977, p. 46-49.
- [2.2] C. Alquié, G. Dreyfus, et J. Lewiner, “Stress-Wave Probing of Electric Field Distributions in Dielectrics”, *Physical Review Letters*, vol. 47, Nov. 1981, p. 1483-1487.
- [2.3] P. Morin, “Etude des phénomènes de conduction dans un diélectrique par la mesure simultanée des charges d'espace et du courant externe”, *Thèse de doctorat de l'université Paris VI*, 1995.
- [2.4] C. Alquié, “Etude de distributions de charges électriques par perturbation locale induite par laser”, *Thèse de l'université Pierre et Marie Curie*, 1983.
- [2.5] L. Aïnouche, “Contrôle non destructif de défauts d'adhésion par une méthode photoacoustique et une méthode photothermique”, *Thèse de l'université Paris VI*, 1998.
- [2.6] T. Ditchi, “Perfectionnement de la méthode de l'onde de pression. Application à l'étude de structures isolantes à base de polyéthylène”, *Thèse de doctorat de l'université Paris VI*, 1990 .
- [2.7] G. Bouillier, “Etude d'une méthode de mesure des distributions de charges électriques dans des structures métal-isolant-semiconducteur”, *Thèse de doctorat de l'université Paris VI*, 1987.
- [2.8] O. Naz-Paris, “Etude d'isolants soumis à des champs divergents par une mesure direct des distributions de charges injectées”, *Thèse de doctorat de l'université Paris VI*, 2000.
- [2.9] D. Malec, “Etude du rôle des charges d'espace dans la rupture diélectrique des isolants solides par la méthode d'onde de pression induite par impact laser: réalisation technologique et étude thermique”, *Thèse de l'université Paul Sabatier*, 1996.
- [2.10] J.F. Ready, “Effects Due to Absorption of Laser Radiation”, *Journal of Applied Physics*, vol. 36, 1965, p. 462-468.
- [2.11] C. Alquié, “Evolution of space charge measurements: new approaches to physical problems”, *Proceedings 10th International Symposium on Electrets*, 1999, p. 11-18.
- [2.12] J. Lewiner, S. Holé, et T. Ditchi, “Pressure wave propagation methods: a rich history and a bright future”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 12, 2005, p. 114-126.
- [2.13] Hee K. Park et al, “Pressure generation and measurement in the rapid vaporization of water on a pulsed laser heated surface”, *Journal of Applied Physics*, vol 80(7), 1996, p. 4072-4081.

BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 4

- [4.1] D. Kim, M. Ye, et C. Grigoropoulos, "Pulsed laser-induced ablation of absorbing liquids and acoustic-transient generation", *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, vol. 67, 1998, p. 169-181.
- [4.2] L. M. Lyamshev et K.A. Naugol'nykh, "Optical generation of sound: nonlinear effects", *Sov. Phys. Acoust.*, vol. 27, 1981, p. 357.
- [4.3] H.M. Lai et K. Young, "Theory of the pulsed optoacoustic technique", *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 72, Déc. 1982, p. 2000-2007.
- [4.4] G. Paltauf et H. Schmidt-Kloiber, "Microcavity dynamics during laser-induced spallation of liquids and gels", *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, vol. 62, Mar. 1996, p. 303-311.
- [4.5] E.F. Carome, N.A. Clark, et C.E. Moeller, "Generation of acoustic signals in liquids by ruby laser-induced thermal stress transients", *Applied Physics Letters*, vol. 4, Mar. 1964, p. 95-97.
- [4.6] S. Brueck, H. Kildal, et L. Belanger, "Photo-acoustic and photo-refractive detection of small absorptions in liquids", *Optics Communications*, vol. 34, Aoû. 1980, p. 199-204.
- [4.7] F.W. Cross, R.K. Al-Dhahir, P.E. Dyer, et A.J. MacRobert, "Time-resolved photoacoustic studies of vascular tissue ablation at three laser wavelengths", *Applied Physics Letters*, vol. 50, Avr. 1987, p. 1019-1021.
- [4.8] R.O. Esenaliev, A.A. Karabutov, N.B. Podymova, et V.S. Letokhov, "Laser ablation of aqueous solutions with spatially homogeneous and heterogeneous absorption", *Applied Physics B: Lasers and Optics*, vol. 59, Juillet 1994, p. 73-81.
- [4.9] A.A. Oraevsky, S.L. Jacques, et F.K. Tittel, "Mechanism of laser ablation for aqueous media irradiated under confined-stress conditions", *Journal of Applied Physics*, vol. 78, Juillet 1995, p. 1281-1290.
- [4.10] A.A. Karabutov, N.B. Podymova, et V.S. Letokhov, "Time-resolved laser optoacoustic tomography of inhomogeneous media", *Applied Physics B: Lasers and Optics*, vol. 63, Déc. 1996, p. 545-563.
- [4.11] M. Frenz, G. Paltauf, et H. Schmidt-Kloiber, "Laser-Generated Cavitation in Absorbing Liquid Induced by Acoustic Diffraction", *Physical Review Letters*, vol. 76, Mai 1996, p. 3546-3549.

- [4.12] S. Hunter, W. Jones, et D. Malbrough, "Nonthermal acoustic signals from absorption of a cylindrical laser beam in water", *Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 69, 1981, p. 1563-1567.
- [4.13] S.I. Kudryashov et S.D. Allen, "Photoacoustic study of explosive boiling of a 2-propanol layer of variable thickness on a KrF excimer laser-heated Si substrate", *Journal of Applied Physics*, vol. 95, Mai 2004, p. 5820-5827.
- [4.14] S. Andreev, S. Orlov, et A. Samokhin, "Simulation of pulsed-laser-induced explosive boiling", *Physics of Wave Phenomena*, vol. 15, Juin 2007, p. 67-80.
- [4.15] N.C. Anderholm, "Laser-generated stress waves", *Applied Physics Letters*, vol. 16, Fév. 1970, p. 113-115.
- [4.16] O. Yavas, P. Leiderer, H.K. Park, C.P. Grigoropoulos, C.C. Poon, W.P. Leung, N. Do, et A.C. Tam, "Optical reflectance and scattering studies of nucleation and growth of bubbles at a liquid-solid interface induced by pulsed laser heating", *Physical Review Letters*, vol. 70, Mar. 1993, p. 1830.
- [4.17] O. Yavas, P. Leiderer, H.K. Park, C.P. Grigoropoulos, C.C. Poon, W.P. Leung, N. Do, et A.C. Tam, "Optical and acoustic study of nucleation and growth of bubbles at a liquid-solid interface induced by nanosecond-pulsed-laser heating", *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, vol. 58, Avr. 1994, p. 407-415.
- [4.18] H.K. Park, C.P. Grigoropoulos, C.C. Poon, et A.C. Tam, "Optical probing of the temperature transients during pulsed-laser induced boiling of liquids", *Applied Physics Letters*, vol. 68, Jan. 1996, p. 596-598.
- [4.19] S.H. Jeong, R. Greif, et R.E. Russo, "Propagation of the shock wave generated from excimer laser heating of aluminum targets in comparison with ideal blast wave theory", *Applied Surface Science*, Mai 1998, p. 1029-1034.
- [4.20] A. Samokhin, S. Klimentov, et P. Pivovarov, "Acoustic diagnostics of the explosive boiling up of a transparent liquid on an absorbing substrate induced by two nanosecond laser pulses", *Quantum Electronic*, vol. 37, 2007, p. 967-970.
- [4.21] M.W. Sigrist, "Laser generation of acoustic waves in liquids and gases", *Journal of Applied Physics*, vol. 60, Oct. 1986, p. R83-R122.
- [4.22] L. M. Lyamshev, "Optoacoustic sources of sound", *Sov. Phys. Usp.*, vol. 24, 1981, p. 977.
- [4.23] C.H. Skeen et C.M. York, "Laser-induced "Blow-off" phenomena", *Applied Physics Letters*, vol. 12, Juin 1968, p. 369-371.

- [4.24] L.C. Yang, “Detonation of Insensitive High Explosives by a Q-Switched Ruby Laser”, *Applied Physics Letters*, vol. 19, 1971, p. 473-475.
- [4.25] R. Fabbro, J. Fournier, P. Ballard, D. Devaux, et J. Virmont, “Physical study of laser-produced plasma in confined geometry”, *Journal of Applied Physics*, vol. 68, Juillet 1990, p. 775-784.
- [4.26] D. Devaux, R. Fabbro, L. TOLLIER, et E. Bartnicki, “Generation of shock waves by laser-induced plasma in confined geometry”, *Journal of Applied Physics*, vol. 74, 1993, p. 2268-2273.
- [4.27] H. Kurniawan, W.S. Budi, M.M. Suliyanti, A.M. Marpaung, et K. Kagawa, “Characteristics of a laser plasma induced by irradiation of a normal-oscillation YAG laser at low pressures”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 30, 1997, p. 3335-3345.
- [4.28] Y.F. Lu, M.H. Hong, et T.S. Low, “Laser plasma interaction at an early stage of laser ablation”, *Journal of Applied Physics*, vol. 85, 1999, p. 2899-2903.
- [4.29] C.K.N. Patel et A.C. Tam, “Pulsed optoacoustic spectroscopy of condensed matter”, *Reviews of Modern Physics*, vol. 53, Juillet 1981, p. 517-550.
- [4.30] H.K. Park, D. Kim, C.P. Grigoropoulos, et A.C. Tam, “Pressure generation and measurement in the rapid vaporization of water on a pulsed-laser-heated surface”, *Journal of Applied Physics*, vol. 80, Oct. 1996, p. 4072-4081.
- [4.31] J.H. Yoo, S.H. Jeong, R. Greif, et R.E. Russo, “Explosive change in crater properties during high power nanosecond laser ablation of silicon”, *Journal of Applied Physics*, vol. 88, 2000, p. 1638-1649.
- [4.32] R. Kelly et A. Miotello, “Comments on explosive mechanisms of laser sputtering”, *Applied Surface Science*, Avr. 1996, p. 205-215.
- [4.33] N. Do, L. Klees, A.C. Tam, P.T. Leung, et W.P. Leung, “Photodeflection probing of the explosion of a liquid film in contact with a solid heated by pulsed excimer laser irradiation”, *Journal of Applied Physics*, vol. 74, 1993, p. 1534-1538.
- [4.34] F. Lang et P. Leiderer, “Liquid–vapour phase transitions at interfaces: sub-nanosecond investigations by monitoring the ejection of thin liquid films”, *New Journal of Physics*, vol. 8, 2006, p. 14 (10. p).
- [4.35] Y. Dou, L.V. Zhigilei, N. Winograd, et B.J. Garrison, “Explosive Boiling of Water Films Adjacent to Heated Surfaces: A Microscopic Description”, *The Journal of Physical Chemistry A*, vol. 105, Mar. 2001, p. 2748-2755.

- [4.36] A.C. Tam, W.P. Leung, W. Zapka, et W. Ziemlich, "Laser-cleaning techniques for removal of surface particulates", *Journal of Applied Physics*, vol. 71, Avr. 1992, p. 3515-3523.
- [4.37] M.W. Sigrist et F.K. Kneubuhl, "Laser-generated stress waves in liquids", *The Journal of the Acoustical Society of America*, vol. 64, Déc. 1978, p. 1652-1663.
- [4.38] E. Garmire et C.H. Townes, "Stimulated Brillouin Scattering in Liquids", *Applied Physics Letters*, vol. 5, 1964, p. 84-86.
- [4.39] F.V. Bunkin et V.M. Komissaro, "Optical excitation of sound waves (electrostriction and radiation absorption mechanisms)", *Soviet Physics-Acoustics*, vol. 19, Déc. 1973, p. 203-211.
- [4.40] A. Vogel et V. Venugopalan, "Mechanisms of pulsed laser ablation of biological tissues," *Chemical Reviews*, vol. 103, Fév. 2003, p. 577-644.
- [4.41] E. Dieulesaint et D. Royer, *Propagation acoustique dans un fluide*, Technique de l'ingénieur, AF 3812, 2001
- [4.42] J. Jouhaneau, *Propagation des ondes acoustiques*, *Techniques de l'ingénieur*, TE 5130, 2001.
- [4.43] J.C. Bushnell et D.J. McCloskey, "Thermoelastic Stress Production in Solids", *Journal of Applied Physics*, vol. 39, Nov. 1968, p. 5541-5546.
- [4.44] H.K. Park, X. Xu, C.P. Grigoropoulos, N. Do, L. Klees, P.T. Leung, et A.C. Tam, "Temporal profile of optical transmission probe for pulsed-laser heating of amorphous silicon films", *Applied Physics Letters*, vol. 61, 1992, p. 749-751.
- [4.45] B.S.Yilbas et A.F.M. Arif, "Laser Short Pulse Heating and Elastic-Plastic Wave Generation", *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 39, 2000, p. 5879-5888.
- [4.46] Q. Lu, S.S. Mao, X. Mao, et R.E. Russo, "Delayed phase explosion during high-power nanosecond laser ablation of silicon", *Applied Physics Letters*, vol. 80, Avr. 2002, p. 3072-3074.
- [4.47] T.W. Murray et J.W. Wagner, "Laser generation of acoustic waves in the ablative regime", *Journal of Applied Physics*, vol. 85, Fév. 1999, p. 2031-2040.
- [4.48] J.R. Ho, C.P. Grigoropoulos, et J.A.C. Humphrey, "Computational study of heat transfer and gas dynamics in the pulsed laser evaporation of metals", *Journal of Applied Physics*, vol. 78, Oct. 1995, p. 4696-4709.
- [4.49] M. Terzic et M.W. Sigrist, "Diffraction characteristics of laser-induced acoustic waves in liquids", *Journal of Applied Physics*, vol. 56, Juillet 1984, p. 93-95.

- [4.50] S. Akhmanov, V. Gusev, et A. Karabutov, "Pulsed laser optoacoustics: Achievements and perspective", *Infrared Physics*, vol. 29, Mai 1989, p. 815-838.
- [4.51] N. Bulgakova et A. Bulgakov, "Pulsed laser ablation of solids: transition from normal vaporization to phase explosion", *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, vol. 73, 2001, p. 199-208.
- [4.52] I. Kartashov, A. Samokhin, et I.Y. Smurov, "Boundary conditions and evaporation front instabilities", *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 38, Oct. 2005, p. 3703-3714.
- [4.53] Dwight E. Gray, "American institute of physics handbook" third edition, McGraw-Hill, 1975
- [4.54] C.T. Avedisian, "The Homogeneous Nucleation Limits of Liquids", *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, vol. 14, Juillet 1985, p. 695-729.
- [4.55] R.K. Dhahir, P.E. Dyer, et Z. Zhu, "Photoacoustic studies and selective ablation of vascular tissue using a pulsed dye laser", *Applied Physics B: Lasers and Optics*, vol. 51, Juillet 1990, p. 81-85.

BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE 5

- [5.1] A. Thielen, J. Niezette, G. Feyder et J. Vanderschueren, “Thermally stimulated current study of space charge formation and contact effects in metal-Polyethylene Terephthalate film-metal systems. I. Generalities and theoretical model”, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, vol. 57, Nov. 1996, p. 1567-1580.
- [5.2] T. Mizutani, S. Ikeda et M. Ieda, “Oxidation enhanced TSC and TSSP of Polyethylene”, *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 22, 1986, p. 22-26.
- [5.3] S. Ishizaki, K. Miyatake, Y. Tanaka and T. Tanaka, “Space charge accumulation process in PET film at high temperature under high electric stress”, *2002 Annual Report - Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena,(CEIDP)*, 2002, p. 660-663
- [5.4] D.M. Taylor et T.J. Lewis, “Electrical conduction in polyethylene terephthalate and polyethylene films”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 4, 1971, p. 1346-1357.
- [5.5] A. Many A and G. Rakavy , “Theory of transient space-charge limited currents in solids in the presence of charge trapping”, *Phys. Rev.* , vol. 126, p1980–1988, 1962
- [5.6] C. Guillermin, P. Rain and S. Rowe, “Transient and steady-state currents in epoxy resin”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 39, 2006, p.515–524
- [5.7] D.K. Das Gupta et K. Joyner, “On the nature of absorption currents in polyethylene terephthalate”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 9, 1976, p. 829-840.
- [5.8] R. Lovell, “Decaying and steady currents in an epoxy polymer at high electric fields”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 7, 1974, p. 1518-1530.
- [5.9] O. Gallot-Lavallée, G. Teyssedre, C. Laurent et S. Rowe, “Space charge and orientational polarization within epoxy as probed by the Pulsed Electro-acoustic technique”, *2003 Annual Report - Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena,(CEIDP)*, 2003, p. 249-252
- [5.10] T. Mizutani, Y. Takai, T. Osawa, et M. Ieda, “Barrier heights and surface states of metal-polymer (PET) contacts”, *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 9, 1976, p. 2253-2259.
- [5.11] M. Ieda, “Electrical conduction and carrier traps in polymeric materials”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 19, N°3, 1984, p. 162-178.
- [5.12] K. Kaneko, R. Shiomi, Y. Suzuoki, T. Mizutani, H. Shiota and H. Muto, “Effects of Electrode Material on Injection and Space Charge Formation in Polyimide”, *2007*

- International Conference on Solid Dielectrics*, Winchester, UK, July 8-13, 2007, p. 518-521
- [5.13] A.Y. Ko et J. Hirsch, “Contact-injected space charge in PET”, *Solid State Communications*, vol. 39, 1981, p. 215-218.
- [5.14] J. Hirsch, A. Ko, et A. Irfan, “Contact-injected Space Charge in PET”, *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, vol. EI-19, 1984, p. 190-192.
- [5.15] P. Rain et J.L. Augé, “Influence of the electrode metal on the injection of space charges in PET and epoxy resin”, *2007 International Conference on Solid Dielectrics*, Winchester, UK, July 8-13, 2007, p. 466-469
- [5.16] L.E. Amborski, “Structural dependence of the electrical conductivity of polyethylene terephthalate”, *Journal of Polymer Science*, vol. 62, p. 331-346.
- [5.17] G.J.M. Fachine, M.S. Rabello, R.M. Souto Maior, et L.H. Catalani, “Surface characterization of photodegraded poly(ethylene terephthalate). The effect of ultraviolet absorbers”, *Polymer*, vol. 45, Mar. 2004, p. 2303-2308.
- [5.18] N. Gaillard, “Etude des Propriétés Morphologiques, Electriques et Chimiques de l’Interface Métal/Isolant et de leur Impact sur les Performances de la Capacité TiN/Ta2O5/TiN”, *Thèse de l’université Joseph Fourier*, 2006.
- [5.19] M. Tableb, G. Teyssède et S. Le Roy, “Role of the interface on charge build-up in a Low-Density Polyethylene: Surface roughness and Nature of the Electrode”, *2009 Annual Report - Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena,(CEIDP)*, 2009.

ANNEXE

ANNEXE 1

	Point d'ébullition (°C)	Chaleur spécifique (Cp)		Enthalpie de vaporisation (L)	
		J/mol K ⁻¹	J/gK ⁻¹	kJ/mol	J/g
Isooctane (C ₈ H ₁₈)	99,3	238,6	2,093	35,24	309,12
Decane C ₁₀ H ₂₂)	174	314	2,211	39,3	276,76
2,2 dimethylbutane (C ₆ H ₁₄)	49,73	190	2,209	27,93	324,77
Cyclooctane (C ₈ H ₁₆)	151	215	1,92	43,5	388,39
Eau (H ₂ O)	100	75,24	4,18	40,7	2261

Résumé :

L'injection de charges dans le PET sous champ électrique est étudiée par la méthode de l'onde de pression induite par impulsion laser. La méthode LIPP (Laser-Induced Pressure Pulse) consiste à générer une impulsion de pression avec un laser pulsé qui frappe une cible en métal recouverte de liquide. En se propageant dans la cible puis dans l'isolant, cette onde induit un courant, image de la distribution des charges dans l'isolant. Afin d'optimiser la mesure, la génération de l'onde de pression a été étudiée pour différents liquides (transparents ou opaques). Les mécanismes dominants, dilatation thermique ou vaporisation, ont été identifiés selon l'énergie laser. Le régime transitoire d'injection de charges est bien corrélé au courant transitoire. L'accumulation d'hétérocharges à l'anode fournit un critère de stabilisation en termes de champ de neutralisation. Les faibles influences du métal de l'électrode et de la rugosité du film dans ces conditions de mesure ont été interprétées.

Mots clés : LIPP, méthode de l'onde de pression, injection de charge, charge d'espace, PET, courant transitoire, génération de pression, onde acoustique, interaction laser-matière.

TITRE en Anglais

Charge injection in the polyethylene terephthalate with the laser-induced pressure pulse (LIPP) method: physical modelling and optimization of the procedure, influence of the parameters of the metal-insulator interface.

Abstract:

The charge injection in PET under electric field has been studied using the method of the pressure wave induced by laser pulse. The method LIPP (Laser Induced Pressure Pulse) consists to generate an acoustic wave pulse from a pulsed laser that strikes a metal target covered with liquid. This wave propagation in the target and in the insulation induces a current that corresponds to the distribution of charges in the insulation. To optimize the measurement, the generation of the pressure wave has been studied for different liquids (transparent or opaque). The main mechanisms, thermal expansion and vaporization, were identified as a function of the laser energy. The transient regime of charge injection is well correlated with the transient current. The accumulation of heterocharges provides a criterion of stabilization in terms of neutralization field at the anode. The weak influence of the metal electrode and roughness of the film in these conditions of measurement were discussed.

Keywords: LIPP, laser-induced pressure pulse, charge injection, space charge, PET, transient current, pressure generation, acoustic wave.

