



**HAL**  
open science

# Cartographie de charges d'espace par méthode FLIMM / Complémentarité avec les méthodes PEA et TPT

Cong-Duc Pham

► **To cite this version:**

Cong-Duc Pham. Cartographie de charges d'espace par méthode FLIMM / Complémentarité avec les méthodes PEA et TPT. Mécanique [physics.med-ph]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2009. Français. NNT: . tel-00452132

**HAL Id: tel-00452132**

**<https://theses.hal.science/tel-00452132>**

Submitted on 1 Feb 2010

**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.



# THÈSE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par *l'Université Toulouse III - Paul Sabatier*  
Discipline ou spécialité : *Génie Electrique*

---

Présentée et soutenue par *Cong Duc PHAM*  
Le 30 novembre 2009

**Titre :** *Cartographie de charges d'espace par méthode FLIMM / Complémentarité avec les méthodes PEA et TPT*

---

### JURY

*J. MARTINEZ-VEGA, Professeur à l'Université Paul Sabatier, Toulouse III, Président*  
*S. AGNEL, Professeur à l'Université Montpellier II, Rapporteur*  
*G. TOUCHARD, Professeur émérite à l'Université de Poitiers, Rapporteur*  
*L. BERQUEZ, Maître de Conférences à l'Université Paul Sabatier, Toulouse III, Directeur de thèse*  
*A. PETRE, Maître de Conférences à l'IUT Bayonne, Examineur*  
*S. HOLE, Maître de Conférences à l'Université Pierre et Marie Curie-Paris 6, Examineur*

---

**Ecole doctorale :** *Génie Electrique, Electronique, Télécommunications:du système au nanosystème*  
**Unité de recherche :** *Laboratoire Plasma et Conversion d'Energie (UMR 5213)*  
**Directeur(s) de Thèse :** *Laurent BERQUEZ*  
**Rapporteurs :** *Serge AGNEL, Gérard TOUCHARD*



*A mes parents, à ma famille*

*A mon épouse*



## *Remerciement*

Les travaux présentés dans ce mémoire ont été réalisés au Laboratoire Plasma et Conversion d'Énergie (Laplace) UMR 5213 à Toulouse dans l'équipe «Diélectriques Solides et Fiabilité» sous la direction de Laurent Berquez, Maître de Conférences à l'Université Paul Sabatier, Toulouse III. Je lui exprime en premier lieu toute ma gratitude pour le formidable encadrement dont il a fait preuve tout au long de ma thèse. Avec une grande disponibilité, il a su orienter mes recherches tout en me transmettant sa passion pour la recherche scientifique.

Je tiens à remercier Anca Petre et Virginie Griseri, qui m'ont appris énormément de choses. Merci à vous deux pour vos encouragements et votre aide dans les moments difficiles.

Je remercie sincèrement Monsieur Juan Martinez-Vega, professeur à l'Université Paul Sabatier, Toulouse III, de m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de thèse.

J'adresse également ma profonde reconnaissance à Monsieur Serge Agnel, professeur à l'Université Montpellier II et à Monsieur Gérard Touchard, professeur émérite à l'Université de Poitiers, pour avoir accepté de juger mon travail et de participer à mon jury de thèse en tant que rapporteurs. J'ai été aussi particulièrement honoré par la présence dans mon jury de Monsieur Stéphane Holé, Maître de Conférences à l'Université Pierre et Marie Curie-Paris 6.

Je tiens aussi à mentionner le plaisir que j'ai eu à travailler au sien du Laplace et j'en remercie tous les membres, particulièrement Monsieur Christian Laurent, directeur du laboratoire, et Monsieur Gilbert Teyssedre, responsable d'équipe DSF où j'ai été accueilli. J'exprime également ma gratitude à tous les membres de l'Institut pour la Physique, Université de Potsdam, en particulier Monsieur Axel Mellinger, qui m'ont accueilli en Allemagne.

Je remercie bien évidemment mes collègues de bureau, Nadine, Tung, Mustapha, pour leur aide, leur soutien quotidien et pour l'excellente ambiance générale partagée ensemble. Je pense aussi à toutes les personnes avec qui j'ai partagé des moments agréables au travail et ailleurs, merci à Bertrand, Mandana, Cécilien, Eddy, Michaël, Axel, Sombel, Cristina, Louison.

Je ne pourrais poursuivre cette page sans dire un grand merci à ma famille au Vietnam, qui loin des yeux, certes, a toujours été près de mon cœur. Leur amour, leur soutien et leur protection m'ont permis d'être là aujourd'hui.

Je souhaite également exprimer mon amour et ma gratitude à mon épouse Nga Nguyen qui a été un autre propulseur important dans ma vie pour arriver à accomplir ce grand objectif. Son support et son amour m'ont maintenu à l'avant de cette lutte sans repos.

Pour terminer, je profite de l'occasion pour remercier tous mes amis de longue date (Quan, Hung chanh), bien sûr la communauté vietnamienne de Toulouse (bac Ai, bac Giam, bac Dinh, anh Liem, chi Huong), et tous mes amis vietnamiens (anh Tuan Lass, Tai R., Tuan Nice, Nam Loulou, Linh Cloé, anh Doanh, Hung, Hai, Hoan, Linh Tung), et autant d'autres amis qui m'ont permis de me sentir, en France, comme si j'étais chez moi, en partageant des moments très agréables.



# Table des matières

<b>INTRODUCTION GENERALE</b> .....	11
<b>CHAPITRE 1. ETAT DE L'ART</b> .....	14
1.1. HISTORIQUE .....	14
1.2. CHARGE D'ESPACE .....	16
1.3. L'INJECTION ET LE TRANSPORT DES CHARGES .....	17
1.3.1. Conduction ionique .....	18
1.3.2. Conduction électronique .....	19
1.3.3. Mécanismes contrôlés par l'interface .....	19
1.3.3.1. Effet Schottky .....	20
1.3.3.2. Effet Fowler-Nordheim .....	21
1.3.4. Mécanismes contrôlés par le volume du polymère .....	22
1.3.4.1. Courants limités par charge d'espace .....	22
1.3.4.2. Conduction par « hopping » .....	25
1.3.4.3. Mécanisme de Poole-Frenkel .....	26
1.4. POLARISATION .....	26
1.4.1. Polarisation électronique et ionique .....	28
1.4.2. Polarisation dipolaire .....	28
1.4.3. Polarisation inter-faciale (Maxwell-Wagner) .....	29
1.4.4. Polarisation par charge d'espace .....	29
1.5. METHODES DE MESURE DE CHARGES D'ESPACE DANS LES ISOLANTS SOLIDES .....	30
1.5.1. Méthodes thermiques .....	31
1.5.1.1. Implémentation expérimentale des méthodes thermiques .....	32
1.5.1.2. Génération du signal .....	34
1.5.1.3. Distribution de la température .....	36
1.5.1.4. Déconvolution mathématique .....	37
1.5.1.5. Méthode TPT .....	38
1.5.2. Méthodes acoustiques .....	39
1.5.2.1. Méthode PEA classique .....	40
1.5.2.2. Méthode PEA sans contact .....	43



1.6.	COMPARAISON ENTRE LES METHODES THERMIQUES ET ACOUSTIQUES .....	44
1.7.	TENDANCES ET PERSPECTIVES .....	46
<b>CHAPITRE 2. EVOLUTION ET PERSPECTIVES DE DEVELOPPEMENT DE LA METHODE FLIMM.....</b>		<b>48</b>
2.1.	INTRODUCTION.....	48
2.2.	PRINCIPE DE LA METHODE.....	49
2.3.	DESCRIPTION DU BANC DE MESURE .....	50
2.4.	PROBLEME ELECTROSTATIQUE.....	52
2.5.	DECONVOLUTION MATHEMATIQUE.....	58
2.5.1.	<i>Problématique</i> .....	58
2.5.2.	<i>Méthode d'approximation</i> .....	58
2.5.3.	<i>Méthode de régularisation</i> .....	59
2.6.	PERFORMANCES ET LIMITATIONS.....	60
2.7.	MESURES FLIMM SOUS CONTRAINTE ELECTRIQUE CONTINUE.....	62
2.7.1.	<i>Principe</i> .....	62
2.7.2.	<i>Problème électrostatique</i> .....	64
2.8.	NOUVELLE STRATEGIE DE MESURE.....	68
2.8.1.	<i>Principe</i> .....	68
2.8.2.	<i>Programme d'acquisition</i> .....	69
2.9.	PERSPECTIVES DE DEVELOPPEMENT ET CONCLUSIONS.....	70
<b>CHAPITRE 3. MODELISATION DE LA TEMPERATURE.....</b>		<b>72</b>
3.1.	INTRODUCTION.....	72
3.2.	MODELISATION DE LA TEMPERATURE.....	72
3.2.1.	<i>Equation générale de la chaleur</i> .....	73
3.2.2.	<i>Modèle 3D trois couches de la température</i> .....	74
3.2.2.1.	Géométrie du problème.....	74
3.2.2.2.	Equation de chaleur.....	74
3.2.2.3.	Modélisation de la source de chaleur .....	75
3.2.2.4.	Résolution .....	78
3.2.3.	<i>Modèle 1D quatre couches</i> .....	78
3.2.3.1.	Géométrie du problème.....	79
3.2.3.2.	Equations de la chaleur .....	79
3.2.3.3.	Modélisation des sources de chaleur.....	80
3.2.3.4.	Expression de la température .....	82

3.2.4.	<i>Modèle 1D multicouches</i> .....	83
3.2.4.1.	<i>Nouvelle méthode de calcul</i> .....	83
3.2.4.2.	<i>Calcul de la source de chaleur dans une couche <math>i</math></i> .....	84
3.2.4.3.	<i>Calcul de la température dans une couche <math>i</math></i> .....	86
3.2.4.4.	<i>Modèle 1D multicouches</i> .....	89
3.2.5.	<i>Modèle 1D six couches</i> .....	91
3.2.6.	<i>Comparaison des modèles</i> .....	94
3.2.7.	<i>Modélisation multicouches de la température en 3D par éléments finis</i> .....	96
3.3.	MESURES EXPERIMENTALES DU FAISCEAU LASER .....	100
3.3.1.	<i>Aspect théorique</i> .....	100
3.3.2.	<i>Aspect expérimental</i> .....	101
3.4.	CALIBRATION DU NIVEAU DE CHARGE .....	105
3.4.1.	<i>Calibration du gradient thermique</i> .....	105
3.4.2.	<i>Etude de la faisabilité</i> .....	108
3.4.3.	<i>Résultats de calibration</i> .....	109
3.5.	ABLATION DES ELECTRODES .....	111
3.6.	CONCLUSION .....	116
	<b>CHAPITRE 4. RESULTATS ET INTERPRETATIONS</b> .....	118
4.1.	INTRODUCTION .....	118
4.2.	TOMOGRAPHIE TRIDIMENSIONNELLE DE PROFILS DE POLARISATION PAR FLIMM ET TPT .....	118
4.2.1.	<i>Contexte de l'étude</i> .....	118
4.2.2.	<i>Préparation des échantillons</i> .....	119
4.2.3.	<i>Résultats obtenus par la méthode FLIMM</i> .....	121
4.2.4.	<i>Résultats obtenus par la méthode TPT</i> .....	123
4.2.5.	<i>Discussion des résultats</i> .....	125
4.3.	ETUDE DU PEN IRRADIE PAR UV .....	127
4.3.1.	<i>Matériau étudié</i> .....	128
4.3.2.	<i>Calibration du niveau de charge</i> .....	128
4.3.3.	<i>Préparation des échantillons</i> .....	129
4.3.4.	<i>Cartographie 3D de charges d'espace</i> .....	131
4.3.5.	<i>PEN soumis à hauts champs</i> .....	133
4.4.	ETUDE DE PTFE IRRADIE PAR UN FAISCEAU D'ELECTRONS MONOENERGETIQUE ...	136
4.4.1.	<i>Contexte de l'étude</i> .....	136

4.4.2.	<i>Matériau étudié</i> .....	137
4.4.3.	<i>Simulation par CASINO V2.42</i> .....	138
4.4.4.	<i>Préparation des échantillons</i> .....	140
4.4.5.	<i>Cartographie 3D de charges d'espace</i> .....	141
4.5.	DISTRIBUTIONS DE CHARGES D'ESPACE PAR FLIMM ET PEA.....	145
4.5.1.	<i>Conductivité induite sous rayonnement</i> .....	146
4.5.2.	<i>Préparation des échantillons</i> .....	146
4.5.3.	<i>Résultats obtenus sur PTFE de 100 <math>\mu</math>m</i> .....	147
4.5.4.	<i>Résultats obtenus sur PTFE de 50 <math>\mu</math>m</i> .....	150
4.5.5.	<i>Etude de la relaxation dans l'air</i> .....	151
4.6.	CONCLUSION .....	154
	<b>CONCLUSION GENERALE</b> .....	156
	<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES</b> .....	159
	<b>ANNEXE</b> .....	174

## Introduction générale

Les matériaux diélectriques sont largement utilisés en tant qu'isolants électriques dans des applications très variées, allant du composant électronique jusqu'aux machines électriques. Afin de pouvoir garantir la fiabilité de ces composants et de ces machines, il est nécessaire de connaître les limites d'utilisation des isolants employés et leur évolution à long terme notamment lorsqu'ils doivent résister à de forts gradients de tension de l'ordre de quelques kV/mm.

En effet, lorsqu'un isolant est soumis à diverses contraintes (champ électrique élevé, irradiation, rayonnement solaire UV, efforts et frottements mécaniques importants, variations de température), il apparaît dans certaines régions de l'isolant, un excès de charges électriques. Ces charges sont un facteur potentiel de vieillissement des matériaux à travers les distorsions de champ interne qu'elles provoquent, et peuvent être à l'origine d'un claquage électrique dans certains cas. Il est donc important de pouvoir caractériser de façon aussi ponctuelle que possible la charge d'espace piégée.

Durant les trois dernières décennies, des nombreuses techniques non destructives de mesure de charges d'espace et de polarisation ont été développées. Elles ont été utilisées dans de nombreuses études portant sur les processus de vieillissement des matériaux piézoélectriques, le développement et l'optimisation de capteurs piézoélectriques, les phénomènes de rupture dans les câbles ou les revêtements diélectriques pour le contrôle thermique des satellites géostationnaires.

Notre équipe a ainsi développé depuis une dizaine d'année, une méthode originale appelée FLIMM (Focused Laser Induced Modulation Method). Les avantages spécifiques de cette technique sont une excellente résolution près des interfaces et la possibilité d'effectuer des cartographies en trois dimensions des charges d'espace avec une résolution inférieure à la dizaine de microns.

L'objectif principal de ce travail de thèse était d'optimiser la méthode FLIMM, tant du point de vue théorique qu'expérimental. Les développements effectués nous ont permis de proposer une méthode pour calibrer le niveau de charge et d'effectuer des cartographies de charge d'espace en 3D avec une haute résolution spatiale et latérale.

Le premier chapitre rappelle les principaux mécanismes d'injections, de transport de charges et de polarisation dans les polymères et détaille les différentes techniques de mesure de charges d'espace. Ce chapitre se termine en évoquant les tendances et les perspectives de développement des techniques de mesure de charges d'espace.

Le second chapitre est axé plus particulièrement sur la méthode FLIMM. Après avoir rappelé le principe de cette méthode, détaillé le problème électrostatique et la description du banc de mesure expérimental, évoqué les problèmes de déconvolution, les performances escomptées sont précisées. Pour terminer les récentes évolutions de la FLIMM ainsi que les perspectives de développement sont évoquées.

Le troisième chapitre est consacré à la modélisation thermique. Après un bref rappel des différents modèles existants, un nouveau modèle 1D multicouche est présenté, il rend le calcul plus souple, plus flexible et prend en compte l'environnement thermique de la nouvelle cellule de mesure. Un modèle adapté aux cartographies a également été développé, il consiste en une modélisation multicouche de la température en 3D par éléments finis qui permet une prise en compte plus fine de l'environnement thermique de l'échantillon, de l'absorption et de la focalisation du faisceau laser. Pour terminer ce chapitre, une méthode de calibration du niveau de charge permettant la vérification expérimentale de l'évolution théorique du gradient de température au sein de l'échantillon irradié par le faisceau laser, est également utilisé pour déterminer un coefficient de calibration.

Le quatrième chapitre est consacré aux résultats expérimentaux obtenus sur divers échantillons. Des cartographies 3D de profil de charges d'espace ou de polarisation sont réalisées avec une très bonne résolution spatiale et latérale sur des films minces de PEN, de PVDF-TrFE ou de PTFE. Des cartographies de profil de polarisation sur des échantillons de PVDF ont été réalisées par les méthodes FLIMM et TPT en collaboration avec l'Institut pour la Physique de Potsdam. La complémentarité entre les méthodes FLIMM et PEA a été mise

en évidence sur des mesures de charges d'espace effectuées sur les films minces de PTFE irradiés par un faisceau d'électrons.

Enfin, une conclusion dressera les points forts et les points faibles des trois méthodes (FLIMM, TPT, PEA), ainsi que les perspectives, nombreuses, ouvertes par ce travail.

# Chapitre 1. Etat de l'art

## 1.1. Historique

Les polymères en tant que matériau sont connus depuis longtemps : par exemple, l'emploi du caoutchouc naturel donné par l'hévéa est pratiqué depuis plus de cent ans (vulcanisation au soufre mise au point par Goodyear vers 1840). C'est ainsi que le premier câble transatlantique destiné aux communications téléphoniques, installé en 1860, utilisait comme isolant du gutta-percha, un polymère naturel. Avec l'arrivée des polymères synthétiques, les performances se sont améliorées et de nouvelles applications ont été développées. Depuis leur invention dans la première moitié du 20<sup>ème</sup> siècle, les polymères isolants ont été employés intensivement pour l'isolation de câble électrique. Depuis ces applications initiales, des matériaux capables de stocker les charges pendant plusieurs heures ont été développés comme électrets [KAW 69], [TUR 75]. Les applications de plus en plus exigeantes dans le domaine de l'électronique, ont amené le développement de composants à base de polymère comme des condensateurs à hautes performances en films minces, des isolants pour les hautes tensions, des connecteurs ou des substrats de circuits intégrés. Bien que la plupart des polymères soient des bons isolants électriques ne signifie pas que l'existence de polymères conducteurs ou semi-conducteurs ne soit pas recherchée. En 2000, pour leurs travaux novateurs, Heeger, Macdiarmid et Shirakawa ont obtenus le prix Nobel de chimie [GOS 00].

Sous l'action de nombreux facteurs (champ électrique, température, humidité, radiation, etc.), les propriétés des matériaux polymères se dégradent dans le temps de manière irréversible. Les mécanismes à l'origine de ce phénomène, appelé vieillissement,

font intervenir synergiquement l'ensemble des contraintes auxquelles l'isolant est soumis. Le vieillissement engendre des effets défavorables pour les composants électriques, qui peuvent se manifester par l'apparition de défaillances sous contraintes bien plus faibles que celles prises en compte à la conception <sup>[TOU 07a]</sup>.

Dans l'industrie spatiale, des films minces de polymères comme le Téflon (PTFE) et le Polyimide sont couramment utilisés. Ces matériaux utilisés sur des satellites en orbites spatiales sont exposés à des radiations gamma et des bombardements électroniques, qui provoquent le piégeage durable de charges. L'accumulation de ces charges peut conduire à des phénomènes de rupture dans les revêtements spatiaux voir la perte d'instruments par décharge électrostatique.

Pour toutes ces raisons, les charges électriques qui ont tendance à s'accumuler dans les isolants font l'objet d'études approfondies depuis une vingtaine d'années. On assiste alors à l'apparition de nombreuses méthodes permettant de quantifier ces charges. Le fonctionnement de chacune de ces techniques est différent, mais leur principe de base est le même : appliquer une perturbation non uniforme à l'échantillon afin de mesurer un signal caractéristique de la distribution de la charge d'espace. La plupart de ces méthodes utilisent comme stimulus (révélateur de charge) soit la pression, soit la température, soit une impulsion de tension.

La technique de l'impulsion thermique ou TPM (Thermal Pulse Method), mise au point à Washington par Collins <sup>[COL 75]</sup>, utilise le laser pour créer un pulse thermique. La technique LIPP (Laser Induced Pressure Pulse) <sup>[LAU 77]</sup>, mise au point à Paris par Alquié <sup>[ALQ 81]</sup>, puis reprise à Darmstadt par Sessler <sup>[SES 81]</sup>, utilise un laser pour créer un pulse de pression sur l'échantillon. La méthode L IMM (Laser Impulse Modulation Method), mise au point par Lang et Das-Gupta, utilise un faisceau laser pour créer un gradient thermique dans l'échantillon <sup>[LAN 81]</sup>. La technique PIPWP (Piezoelectrically Induced Pressure Wave Propagation), utilise une impulsion électrique appliquée sur un film piézoélectrique pour créer des ondes acoustiques dans l'échantillon, celles-ci provoquent alors un déplacement élémentaires des charges <sup>[EIS 82]</sup>. La MOT (méthode de l'onde thermique) ou TSM (Thermal Step Method), mise au point à Montpellier par Toureille et son équipe <sup>[TOU 87], [TOU 91]</sup>, utilise un front constant de température. Maeno <sup>[MAE 85], [MAE 88]</sup> a mis au point la méthode PEA



(Pulse Electro Acoustique), cette technique utilise une onde de pression créée par une impulsion électrique dans l'échantillon. Franceschi et notre équipe [FRA 97], [FRA 00] ont développé la méthode FLIMM (Focused Laser Intensity Modulation Method) basée sur la méthode LIMM, en focalisant le faisceau laser afin d'obtenir des distributions de charges d'espace en 3 dimensions sur des échantillons de plusieurs dizaines de microns.

Ainsi, la multiplication des méthodes de mesure des charges d'espace est justifiée scientifiquement d'abord pour aboutir avec des nouveaux outils à une meilleure connaissance des isolants, et industriellement ensuite avec le développement de composants électriques d'encombrements toujours plus réduits tout en améliorant les performances.

## 1.2. Charge d'espace

Un isolant parfait ne devrait pas contenir d'autres charges que les noyaux atomiques et les électrons des couches internes et de valence. En réalité, 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.

Lorsqu'un isolant est soumis à de fortes contraintes (champ électrique élevé, irradiation, rayonnement solaire UV, efforts et frottements mécaniques importants, variations de température), il apparaît dans certaines régions de l'isolant un excès de charges électriques. Nous appellerons charge d'espace l'ensemble des charges réelles, positives ou négatives, contenu dans un isolant, ce qui inclut les charges de surface et de volume. Il semble aujourd'hui de plus en plus probable que les problèmes de baisse de performances et de rupture des isolants soient liés à la présence et à l'accumulation de la charge d'espace en volume et en surface. En effet, le champ électrique dû à la charge d'espace dit « champ résiduel » peut augmenter localement la contrainte électrique, en sur-sollicitant l'isolant. De plus, lors d'un piégeage massif de la charge accumulée, l'énergie relaxée est considérable et peut endommager localement ou complètement le matériau [TOU 07a], [LAU 99].

Les charges injectées créent des homocharges qui diminuent le champ interfacial, et augment le champ volumique. Inversement, l'accumulation de porteurs aux électrodes y

constitue des hétérocharges qui conduisent donc à une augmentation du champ interfacial et à une diminution du champ volumique.

Nous pouvons classer les charges électriques dans un diélectrique en deux catégories :

- les charges extrinsèques sont les électrons et trous injectés à partir des électrodes, ou les ions qui diffusent des électrodes vers l'isolant. Elles peuvent aussi résulter du contact entre la surface libre du diélectrique et un plasma gazeux ou un faisceau de particules chargées ;

- les charges intrinsèques sont les ions contenus initialement dans l'isolant, ou générés soit par électrodissoiation d'espèces neutres, soit par ionisation des constituants du solide par interaction avec des rayonnements énergétiques ou des particules énergétiques.

### 1.3. L'injection et le transport des charges

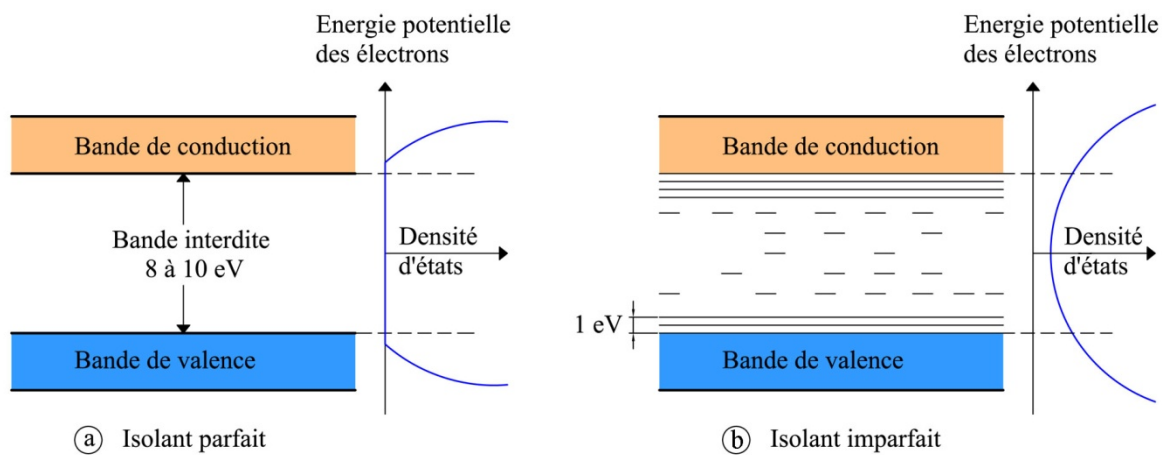
Dans les matériaux diélectriques (matériaux polymères) de structure semi-cristalline complexe, plusieurs phénomènes ou mécanismes de conduction électriques peuvent générer de très faibles courants.

Nous pouvons représenter la conductivité des isolants dans le cadre de la théorie des bandes d'énergie <sup>[KIT 83]</sup>, en considérant le diélectrique comme un semi-conducteur de bande interdite supérieure à 5 eV. Pour les polymères, il faudra également tenir compte de leur structure moléculaire très spécifique et de leur grande densité de pièges. Cependant, la physique du solide prévoit des valeurs de conductivité extrinsèque (en présence d'impureté) extrêmement faibles, de l'ordre de  $10^{-35}$  S/m à 300 K, alors que des mesures effectuées sur des échantillons supposés ohmiques révèlent des conductivités minimales de  $10^{-18}$  S/m, <sup>[TAN 69]</sup>. Ceci s'explique par l'existence de phénomènes qui augmentent le nombre de porteurs libres ou qui favorisent leur conduction. Ainsi, pour expliquer le comportement des matériaux non cristallins comme les polymères, plusieurs auteurs <sup>[DIS 92], [COE 93a]</sup> ont fait des ajustements à la théorie de bandes :

- les frontières entre la bande de valence, la bande interdite et la bande de conduction ne sont plus parfaitement définies à un niveau donné et on peut trouver une certaine densité

d'états occupables dans ce qui était précédemment la bande interdite. Ces états, qui sont occupés ou vides selon leur position par rapport au niveau de Fermi, sont dits «localisés», car ils sont énergétiquement distincts de leurs plus proches voisins ;

- la mobilité des porteurs occupant éventuellement ces états sera de plus en plus faible au fur et à mesure que l'on se rapproche du milieu de la bande de conduction.



**Figure 1.1.** Diagramme de bande d'un isolant parfait (a) et d'un isolant imparfait (b) <sup>[LAU 99]</sup>

### 1.3.1. Conduction ionique

Des ions, en plus ou moins grandes quantités, existent dans tous les matériaux diélectriques. Ils proviennent des impuretés, dépendent des procédés de fabrication, des processus d'ionisation liés par exemple, à l'absorption de rayonnement, des processus de dégradation du matériau ou, encore, de l'absorption de contamination, comme des molécules d'eau qui peuvent en se dissociant former des ions OH<sup>-</sup> <sup>[SEG 00]</sup>.

Le transport des ions se différencie de celui des électrons par deux facteurs principaux :

- la taille des espèces transportées est incomparablement plus importante et les simples effets stériques peuvent, à eux seuls, expliquer que les mobilités ioniques sont inférieures, de plusieurs ordres de grandeurs, aux mobilités électroniques ;
- le transport d'ions résulte en un transport de matière.

### 1.3.2. Conduction électronique

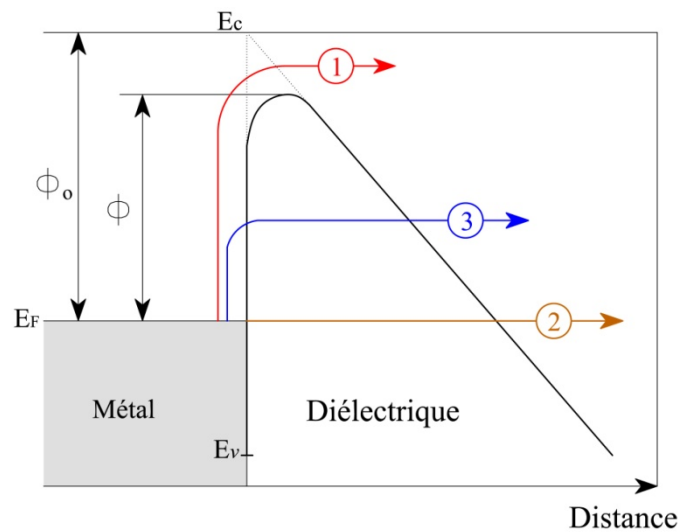
Imaginons les phénomènes de conduction comme un flux de porteurs entrant dans le diélectrique, puis étant transporté au sein de celui-ci pour, enfin, ressortir par l'autre face. Il est clair que le flux maximal pour un champ donné sera contrôlé par celle des trois étapes autorisant le flux le plus faible. Donc ce flux de porteurs sera soit contrôlé par des phénomènes d'interface électrode-diélectrique, soit par des phénomènes de volume au sein du diélectrique.

### 1.3.3. Mécanismes contrôlés par l'interface

Sous l'effet d'un champ électrique élevé, des charges peuvent être injectées dans l'isolant à partir de l'électrode et peuvent bouger vers l'intérieur. Ces mécanismes ne dépendent pas seulement de la tension appliquée, mais aussi d'autres facteurs comme la température, la nature du polymère et de l'électrode. D'après Ieda M. <sup>[IED 84]</sup>, l'interface métal-isolant joue un rôle important dans la conduction et est à l'origine de plusieurs phénomènes :

- injection des porteurs ;
- états de surface ;
- réactions électrochimiques ;
- ionisation ;
- courants ohmiques et limitation de la charge d'espace.

La figure 1.2 représente le schéma de bande à l'interface électrode métallique-diélectrique.  $E_F$  est le niveau de Fermi du métal d'électrode, et ne dépend que de la nature de ce métal.  $E_v$  et  $E_c$  sont respectivement les énergies correspondant au niveau supérieur de la bande de valence du diélectrique et au niveau inférieur de la bande de conduction.



**Figure 1.2.** Diagramme de bande à l'interface électrode métallique-diélectrique

Dans le métal, on trouve des électrons disponibles jusqu'au niveau de Fermi et pratiquement aucun au-dessus. Un électron situé au niveau  $E_F$  à la cathode (métal de gauche sur la figure 1.2) a trois possibilités pour pénétrer dans le diélectrique où il doit arriver jusque dans la bande de conduction pour pouvoir participer au transport :

- voie 1 : passage par dessus la barrière ; elle est appelée effet thermoélectronique (ou plus communément effet Schottky) ;
- voie 2 : passage au travers de la barrière à énergie constante ;
- voie 3 : passage au travers de la barrière après un gain d'énergie (énergie thermique  $kT$  par exemple).

Les voies 2 et 3 sont appelées effet Fowler-Nordheim et sont traitées comme l'effet tunnel à travers une barrière d'énergie triangulaire.

### 1.3.3.1. Effet Schottky

Si l'on considère que la hauteur de la barrière de potentiel est suffisamment basse, des électrons avec une énergie suffisante peuvent la franchir <sup>[DIS 92], [SEG 00]</sup>. La hauteur de barrière  $\phi$  que doit franchir un porteur issu de l'électrode métallique est déterminée par trois facteurs :

- la hauteur de barrière, en l'absence de champ appliqué :  $\phi_0 = E_c - E_F$   
où  $E_c$  est le niveau de la bande de conduction de l'isolant et  $E_F$  le niveau de Fermi du métal ;

- le champ électrique extérieur, appliqué au système ; il est supposé uniforme dans l'isolant et donc égal à  $V/L$  où  $V$  est la différence de potentiel appliqué entre les deux électrodes et  $L$  l'épaisseur de l'isolant ;

- l'énergie liée à la force image ; cette force est due au champ électrostatique créé par l'électron qui s'éloigne du métal et par la charge de signe opposé induite par l'électron à la surface de ce métal <sup>[PUR 98]</sup>.

Le calcul détaillé <sup>[LAM 67]</sup> montre que la hauteur de barrière est donnée par :

$$\phi = \phi_0 - \beta_S E^{1/2}$$

La constante de Schottky  $\beta_S$  est donnée par :  $\beta_S = (q^3/4\epsilon_r\epsilon_0)^{1/2}$

où  $\epsilon_r$  étant la permittivité relative du diélectrique,  $\epsilon_0$  la permittivité du vide et  $q$  charge élémentaire ( $q = 1,602.10^{-19} C$ ).

La densité de courant quant à lui s'exprime :

$$J = AT^2 \exp\left[-\frac{\phi}{kT}\right] = AT^2 \exp\left[-\frac{(\phi_0 - \beta_S E^{1/2})}{kT}\right] \quad [1.1]$$

où  $A$  est constante de Richardson-Schottky,  $k$  constante de Boltzmann,  $T$  température thermodynamique.

### 1.3.3.2. Effet Fowler-Nordheim

L'injection par effet de champ, aussi appelée Fowler-Nordheim <sup>[FOW 28], [SIM 71]</sup> est liée à la théorie quantique. Un électron de la couche électronique du métal a une probabilité non nulle de se trouver à un instant donné de l'autre côté de la barrière de potentiel. Cette probabilité non nulle permet à certains électrons de passer à travers la barrière de potentiel sans avoir l'énergie nécessaire pour la franchir (tunnel). Le phénomène est intimement lié à la fonction d'onde des particules, qui décroît rapidement avec l'augmentation de la distance. L'injection de type Fowler-Nordheim ne devient significative que pour des champs élevés ( $10^9 V.m^{-1}$ ), dans ce cas l'épaisseur de la barrière de potentiel est très fine.

La densité de courant a pour expression :

$$J = AE^2 \exp\left[-\frac{B}{E}\right] \quad [1.2]$$

avec :

$$A = \frac{q^3}{8\pi h \phi_0} \text{ et } B = \frac{8\pi\sqrt{2m}\phi_0^{3/2}}{3hq}$$

où  $h$  est la constante de Planck,  $m$  masse de l'électron.

L'équation [1.2] est indépendante de la température, et dépend principalement du champ électrique. Cependant, des études ont montré <sup>[GOO 56]</sup> que l'effet tunnel était aussi fonction de la température. Ainsi, lors de l'augmentation de température, des électrons se trouvant dans un état excité dans le métal ont une probabilité plus grande de passer dans la bande de conduction du diélectrique par effet tunnel. La densité de courant d'injection par effet tunnel sera donc plus grande pour des températures plus élevées.

O'Dwyer <sup>[O'DW 73]</sup> a donné des développements plus complexes sur l'effet tunnel tenant compte notamment du renforcement de l'émission par les phonons optiques ou de l'influence des pièges dans l'isolant.

### **1.3.4. Mécanismes contrôlés par le volume du polymère**

#### *1.3.4.1. Courants limités par charge d'espace*

La conduction résulte du mouvement de porteurs de charges sous l'effet d'un champ appliqué. Elle est souvent fonction de l'épaisseur du diélectrique. Considérons le cas idéal d'un diélectrique sans piège, sans porteurs intrinsèques, où le transport est unipolaire. Les électrons sont injectés à la cathode par un bon contact ohmique, et la diffusion est négligée <sup>[LAM 70], [CAS 69]</sup>. Dans un premier temps, la charge d'espace  $\rho$ , injectée à la cathode, est faible à l'intérieur du diélectrique. Ces charges, de mobilité  $\mu$ , soumises à un champ électrique  $E$ , auront une vitesse  $v = \mu.E$ . La densité de courant résultant du mouvement de ces charges libres,  $\rho$ , à la vitesse  $v$ , est régie par la loi d'Ohm :  $J_{\text{Ohm}} = v.\rho = \rho.\mu.E$

Cette relation ne reste valide que si les charges injectées ne modifient pas le champ interne. Lorsque le courant d'injection augmente sous tension appliquée croissante, un changement de comportement s'opère, dans lequel le champ local est contrôlé par la charge d'espace. En résolvant le système d'équations constitué de l'équation de Poisson, l'équation de continuité et la relation liant le champ à la tension, on arrive à une densité de courant limitée par charge d'espace (SCL) de la forme :

$$J_{SCL} = \frac{9 \epsilon \mu V^2}{8 L^3} \quad [1.3]$$

Ainsi, pour un diélectrique sans piège qui contient la densité de porteurs intrinsèques  $n_0$ , la densité de courant est fonction de la densité de charges à l'intérieur du matériau, et elle peut se résumer sous cette forme :

$$J_{cond} = q n_0 \mu \frac{V}{L} + \frac{9 \epsilon \mu V^2}{8 L^3} \quad [1.4]$$

Si la densité de charges injectées est plus grande que celle déjà présente dans le diélectrique, alors  $n_0$  est négligeable et on obtient un courant exclusivement limité par la charge d'espace. Il est possible de calculer d'après l'équation [1.4] la tension limite pour laquelle le courant limité par charge d'espace est dominant par rapport au courant ohmique :

$$V_{trS} = \frac{8 q n_0 L^2}{9 \epsilon} \quad [1.5]$$

Considérons maintenant un diélectrique imparfait, dans lequel on peut trouver un niveau de pièges. La présence de pièges implique la création d'une nouvelle espèce de charges, les charges piégées  $n_t$ . Il faut donc introduire un coefficient signifiant la proportion de charges libres par rapport aux charges piégées :  $\theta = n_c/n_t$ . L'équation [1.3] devient alors :

$$J_{SCL} = \theta \frac{9 \epsilon \mu V^2}{8 L^3} \quad [1.6]$$

et

$$V_{trP} = \frac{1}{\theta} \frac{8 q n_0 L^2}{9 \epsilon} \quad [1.7]$$

Ce coefficient  $\theta$  peut être très faible, c'est à dire qu'il existe un grand nombre de pièges, et que le nombre de charges disponibles pour le transport est très faible. Alors la



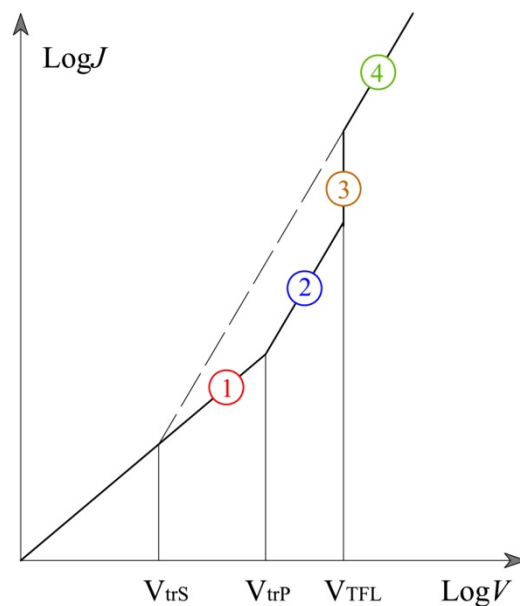
tension de transition entre le comportement ohmique et le comportement limité par charge d'espace sera infiniment grande.

Cependant, la densité de pièges n'étant pas infinie, un changement de régime s'opère pour une tension  $V_{TFL}$  correspondant à la limite de remplissage des pièges (Trap Filled Limit). La conduction augmente brusquement et les charges libres peuvent se mouvoir, comme si le diélectrique était exempt de pièges. La valeur de  $V_{TFL}$  peut être déterminée par :

$$V_{TFL} = qN_t \frac{L^2}{\epsilon} \quad [1.8]$$

où  $N_t$  est la densité de pièges.

La figure 1.3 résume les 4 différents comportements de la densité de courant en fonction de la tension pour un diélectrique contenant un seul niveau de piégeage.



**Figure 1.3.** Caractéristique de la densité de courant limitée par charge d'espace en fonction de la tension, dans le cas d'un niveau de piège unique

Cependant, il y a des différents types de pièges présents dans les polymères isolants. Ceux-ci ne peuvent donc pas être considérés comme des diélectriques ayant un seul niveau de pièges. Il est donc nécessaire de revoir l'analyse du courant limité par charge d'espace pour une distribution de pièges plus réaliste (exponentielle par exemple), et de prendre en compte un transport bipolaire (électrons et trous). Les calculs sont plus complexes, mais la

caractéristique courant-tension se rapproche plus des mesures expérimentales de courant <sup>[TAR 03]</sup>. Les limites entre deux régions sont moins marquées, et les pentes de chaque région diffèrent de celles précédemment exposées.

#### 1.3.4.2. Conduction par « hopping »

Dans ce modèle, les défauts de structure entraînent l'existence de sites énergétiques pouvant être occupés par les porteurs. D'autre part, le niveau de Fermi  $E_F$  est une valeur d'énergie qui, en première approximation, sépare les niveaux occupés des niveaux vides. La situation autour du niveau de Fermi à l'intérieur du matériau peut être représentée comme sur la figure 1.4.

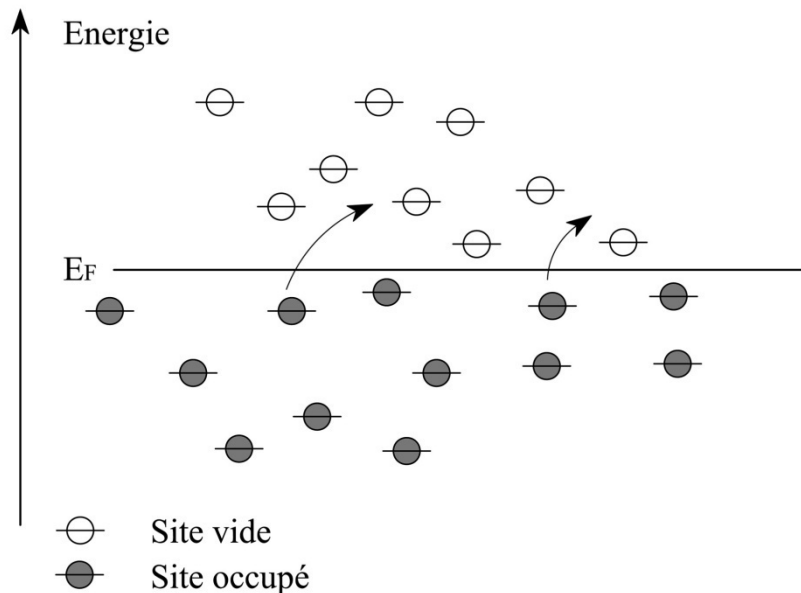


Figure 1.4. Sauts de site à site dans un mécanisme de Hopping

À chaque site est associée une fonction d'onde, qui d'après la mécanique quantique est liée à la probabilité de présence. Lorsque les sites sont spatialement et/ou énergétiquement proches, il y a un recouvrement non négligeable des fonctions d'onde et donc une probabilité de passage d'un site à l'autre. Plus on se rapproche du niveau de Fermi, plus la probabilité d'occupation se rapproche de 1/2 et plus on a de chance de trouver des sites donneurs (occupés) ou accepteurs (vides) proches les uns des autres. On peut donc avoir un processus de migration de porteurs d'origine purement quantique qui se manifeste autour du niveau de Fermi <sup>[SEG 00]</sup>. Pour être mis en évidence, il ne faut pas que ce processus soit masqué par un

transport plus classique qui se produit par émission vers la bande de conduction. C'est pourquoi il a été le plus souvent mis en évidence à basse température.

En optimisant les compromis entre distance énergétique et distance spatiale N. Mott <sup>[MOT 79]</sup> a montré que la conductivité pouvait s'écrire :

$$\sigma = \sigma_0 \exp\left(-\frac{A}{T^{1/4}}\right) \quad [1.9]$$

où A est une constante dépendant de la densité et de la nature des pièges. Cette loi a été vérifiée à la température de l'azote liquide ou inférieure.

### 1.3.4.3. Mécanisme de Poole-Frenkel

Le mécanisme de Poole-Frenkel dans le volume est l'analogie de l'injection de Schottky à l'interface métal-isolant. Ce mécanisme tient compte du possible piégeage et dépiégeage des porteurs de charges par activation thermique. Contrairement au phénomène de Schottky, où la barrière d'injection est diminuée par la charge présente dans le diélectrique, le mécanisme de Poole-Frenkel est basé sur la diminution de la hauteur de la barrière de potentiel à franchir grâce à l'application d'un champ électrique. L'expression de la densité de courant résultant de ce phénomène peut être écrite selon <sup>[O'DW 73]</sup>:

$$J_{PF} = J_0 \exp\left[-\frac{\Delta\phi}{2kT}\right] \cdot \exp\left[\frac{q}{kT} \sqrt{\frac{qE}{4\pi\epsilon}}\right] \quad [1.10]$$

où  $\Delta\phi$  est la hauteur de la barrière,  $J_0$  la densité de courant à  $T = 0 \text{ K}$ .

## 1.4. Polarisation

Les propriétés électriques des diélectriques peuvent s'interpréter à l'échelle macroscopique par l'apparition dans tout volume (initialement neutre) soumis à un champ électrique d'un moment dipolaire électrique. C'est le phénomène de polarisation. Il correspond à des modifications dans la répartition des charges liées qui constituent les groupements stables de la matière (atomes, molécules, ions), modifications dues aux

déformations ou réorientations de ces groupements : de fait, sous l'effet d'un champ électrique le barycentre des charges positives et celui des charges négatives, initialement confondus, se séparent, formant ainsi un dipôle électrique.

On caractérise alors l'état électrique du milieu par son moment dipolaire par unité volume :

$$\vec{P} = (\varepsilon - \varepsilon_0)\vec{E} \quad [1.11]$$

où  $E$  est le champ électrique macroscopique appliqué et  $\varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_r$ , avec  $\varepsilon_0$  la permittivité du vide et  $\varepsilon_r$  la permittivité relative du diélectrique.

Au niveau microscopique, la polarisation est liée au champ électrique local dans le matériau par la relation :

$$\vec{P} = N\alpha\vec{E}_{local} \quad [1.12]$$

où  $N$  étant la concentration de dipôle par unité de volume,  $\alpha$  la polarisabilité globale du matériau et  $E_{local}$  le champ électrique local.

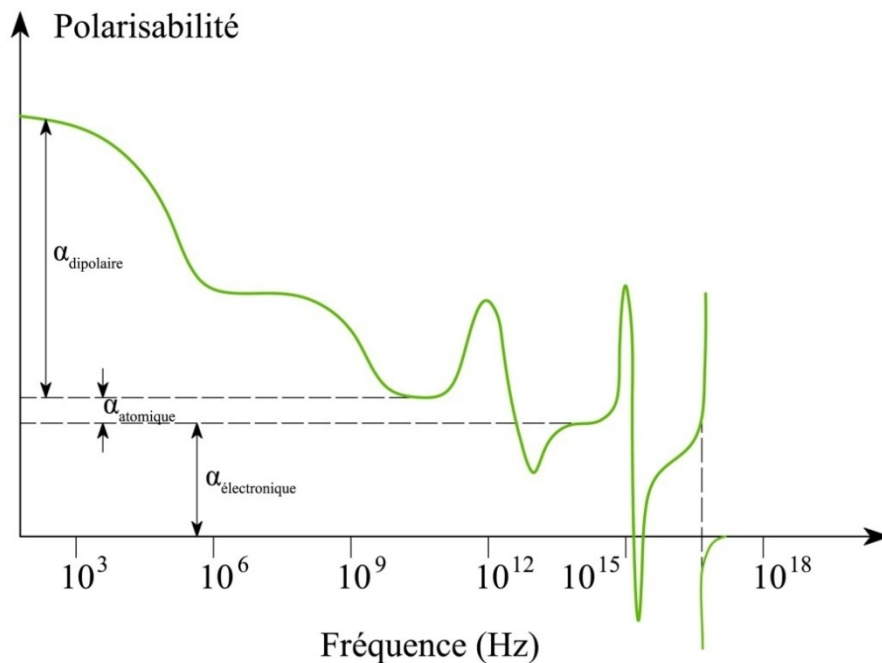


Figure 1.5. Evolution de la polarisabilité en fonction de la fréquence

La polarisabilité globale d'un matériau diélectrique en fonction de la fréquence est représentée schématiquement sur la figure 1.5. Cette figure montre que la polarisabilité résulte de plusieurs processus : des processus lents (résultant du déplacement thermiquement activé d'ions ou réorientation de dipôles) et des processus rapides (les plus rapides impliquant seulement les nuages électronique).

En fonction de la polarité des molécules, les diélectriques peuvent être classés en 2 catégories :

- les diélectriques non polaires, constitués de molécules possédant un centre de symétrie, les barycentres des charges positives et négatives sont confondus en l'absence de champ extérieur ;
- les diélectriques polaires, constitué de molécules possédant un moment dipolaire permanent.

Les mécanismes de polarisation sont de différentes origines : ils sont dus à la modification des répartitions spatiales des particules élémentaires électroniques et ioniques et à la réorientation des entités dipolaires. Ces mécanismes étant multi-échelles, les cinétiques d'établissement de la polarisation sont dans des gammes de temps/fréquence très différentes.

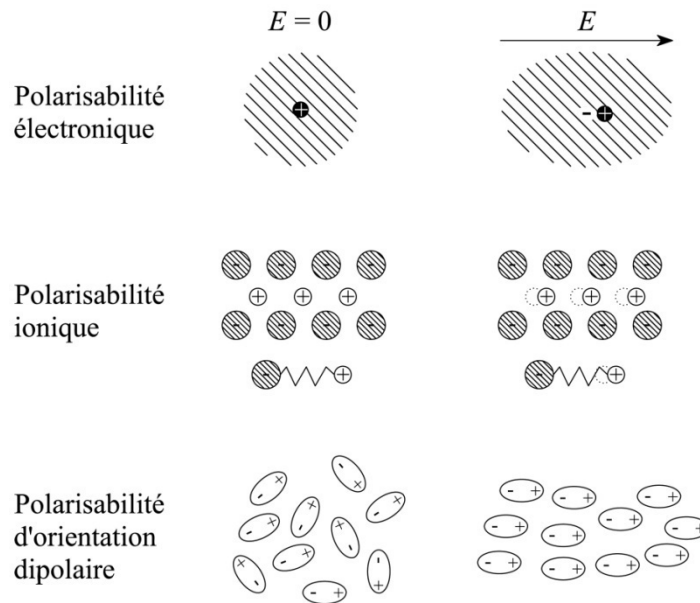
#### ***1.4.1. Polarisation électronique et ionique***

Sous l'effet d'un champ électrique extérieur, les orbites électroniques se déforment avec une cinétique très rapide ( $10^{-15}$  s.) à l'origine de la polarisation électronique. Les déplacements ioniques vont s'effectuer avec une cinétique plus lente ( $10^{-13}$  s.) : ils sont responsables de la polarisation ionique (figure 1.6).

#### ***1.4.2. Polarisation dipolaire***

Dans les diélectriques polaires, en l'absence de champ électrique appliqué, les moments dipolaires permanents ne présentent pas d'orientation particulière, du fait de l'agitation thermique. Lorsque un champ électrique est appliqué au diélectrique, les dipôles ont tendance à s'orienter dans la direction du champ appliqué, donnant naissance à une polarisation appelée polarisation d'orientation (voir figure 1.6).

Cette polarisation a été étudiée en détail par Debye, Clausius, Mossotti, Lorentz, Onsager et Frölich entre autres. Un panorama complet de ces théories est proposé dans les références [FOU 86], [COE 93b].



**Figure 1.6.** Représentation schématique des mécanismes de polarisation. De haut en bas : polarisations électronique, ionique, dipolaire

### 1.4.3. Polarisation inter-faciale (Maxwell-Wagner)

Ce type de polarisation intervient dans les diélectriques hétérogènes (ex : les polymères). Il provient de l'accumulation de charges aux interfaces des différentes phases constituant le matériau (centres d'impuretés ou de dislocation, interfaces entre des zones amorphes ou cristallines). L'application d'un champ électrique fait apparaître aux interfaces une accumulation localisée de charges électriques qui induit une polarisation dite inter-faciale.

### 1.4.4. Polarisation par charge d'espace

Cette notion est liée au concept de « dipôle macroscopie » [MAT 01], [DID 04]. Si l'on considère un isolant d'épaisseur  $d$  pourvu d'électrodes, contenant autant de pièges que de charges libres (en l'absence d'injection), lors de l'application d'un champ électrique extérieur, les porteurs libres vont migrer vers les électrodes de signe opposé, et donner naissance à une polarisation moyenne :

$$P = \frac{1}{d} \int_0^d x \rho(x) dx \quad [1.13]$$

où  $\rho(x)$  désigne la densité volumique de charge à l'équilibre à la profondeur  $x$  dans le matériau.

La répartition de  $\rho(x)$  est fonction de la distribution et de la grandeur des pièges dans le matériau, ce qui traduit au niveau microscopique l'effet macroscopique Maxwell-Wagner. Les interfaces existantes dans isolant (défauts, impuretés, zone de transition cristalline/amorphe <sup>[IED 84],[SER 98]</sup>) représentent des centres de pièges qui stockent les porteurs de charge entraîné par le champ électrique appliqué. Le champ électrique créé par la polarisation  $P$  et sa répartition dans l'isolant va donc dépendre, à tout moment, de la charge présente dans l'isolant, de la fraction de charge piégée, de son signe et de l'endroit où les pièges sont situés.

### **1.5. Méthodes de mesure de charges d'espace dans les isolants solides**

Durant les trois dernières décennies, des nombreuses techniques de mesure de charges d'espace et de polarisation ont été développées et l'on peut les diviser en deux catégories : les méthodes dites « destructives » et les méthodes dites « non destructives ». Les techniques dites « destructives » sont appelées ainsi puisqu'elles « détruisent » soit l'échantillon, soit l'état de charges de l'échantillon ou modifie la dynamique des charges. Ces méthodes ne donnent pas de renseignement sur la localisation des porteurs, mais peuvent permettre d'estimer la quantité totale de charge et les énergies nécessaires pour évacuer les différents types de porteurs. Comme à la fin de la mesure l'échantillon est déchargé, les techniques destructives ne permettent pas d'étudier l'évolution de charges. Les méthodes dites « non destructives » n'évacuent pas les charges accumulées et permettent de déterminer leur distribution spatiale. Ces techniques ont l'avantage de permettre un suivi de l'évolution de la charge dans le temps. Dans les paragraphes suivants, nous allons concentrer sur les techniques non destructives.

Dans la plupart des méthodes non destructives, on provoque généralement un déplacement relatif des charges par rapport aux électrodes de mesure et souvent une variation locale de la permittivité par une variation locale de la température. La charge d'influence est ainsi modifiée et un signal proportionnel à la charge interne apparaît sur les électrodes. Ce signal se traduit par l'apparition d'une variation de tension aux bornes de l'échantillon si la mesure est effectuée en circuit ouvert, ou d'une variation de courant si la mesure est effectuée en circuit fermé.

Le déplacement relatif des charges est provoqué par une perturbation extérieure appliquée à l'échantillon de telle sorte qu'elle modifie de façon non uniforme sa dimension transversale, cette dernière condition étant nécessaire à l'obtention d'une réponse électrique par déformation d'un matériau chargé. On doit de plus connaître la forme et l'évolution temporelle de la perturbation pendant la mesure.

Nous distinguerons les méthodes thermiques et les méthodes acoustiques en fonction de la nature de la perturbation utilisée (thermique ou acoustique) ou du signal détecté (électrique ou acoustique).

### ***1.5.1. Méthodes thermiques***

Dans ce cas, l'échantillon est soumis à une élévation brusque de température sur l'une de ses faces, qui entraîne une dilatation non uniforme du matériau, ainsi qu'une variation locale de sa permittivité. Il est à noter que les facteurs de variation sont très faibles (de l'ordre de  $10^{-4}$  à  $10^{-6}$ ), ce qui n'empêche pas ces techniques d'afficher les meilleures sensibilités ( $1 \text{ mC/m}^3$ ) et résolution ( $< 0,1 \text{ }\mu\text{m}$ ), la raison étant un rendement du transfert thermique bien meilleurs que ceux des transferts d'énergie d'origine mécanique <sup>[TOU 07a]</sup>.

Plusieurs méthodes thermiques ont été développées dans les années 1970, afin d'analyser de façon non destructive les distributions des charges et de la polarisation dans les polymères isolants. Le principe commun de ces méthodes consiste dans l'analyse du courant ou de la tension générés par le matériau diélectrique après une excitation thermique.

Bien que des aperçus initiaux du potentiel de ces techniques aient été obtenus par Phelan et Peterson dans leur recherche sur la réponse en fréquence des détecteurs



pyroélectriques <sup>[PHE 74]</sup>, la première étude sur des profils de charge d'espace par la méthode TPM (Thermal Pulse Method) a été rapportée en 1975 par Collins <sup>[COL 75]</sup>. La méthode LIMM (Laser Impulse Modulation Method) a été présentée par Lang et Das-Gupta en 1981 <sup>[LAN 81]</sup>. La méthode MOT (Méthode de l'Onde Thermique) ou TSM (Thermal Step Method) a été mise au point à Montpellier par Toureille et son équipe en 1987 <sup>[TOU 87]</sup>.

L'avantage majeur de ces techniques réside dans la résolution spatiale qui peut être atteinte avec les différentes implémentations expérimentales bien que la nature diffusivité de la chaleur implique une résolution spatiale non uniforme dans l'échantillon. Ainsi, une grande résolution spatiale peut être obtenue proche de la surface excitée mais elle décroît avec l'épaisseur du matériau <sup>[PLO 92], [BAU 93], [BAU 94], [LAN 91]</sup>. Une autre question largement débattue porte sur la nécessité d'un traitement mathématique complexe des données afin d'en déduire la distribution du champ ou le profil de polarisation dans les matériaux diélectriques <sup>[COL 77]</sup>. Il semblerait que la déconvolution mathématique délicate des signaux soit un argument majeur contre les méthodes thermiques. Pourtant, il a été montré <sup>[PLO 92], [BAU 93]</sup> qu'en utilisant une méthode d'approximation basée sur un changement d'échelle, la distribution du champ ou le profil de polarisation peut être estimée directement à partir des données expérimentales, sans faire appel à des méthodes mathématiques fastidieuses. Cette méthode sera détaillée dans le chapitre suivant. De plus, les méthodes mathématiques, comme par exemple la régularisation, ont atteint une maturité qui permet l'extraction de la charge sans aucune équivoque <sup>[PET 04a]</sup>.

#### *1.5.1.1. Implémentation expérimentale des méthodes thermiques*

La différence entre les méthodes thermiques se fait notamment au niveau du moyen d'obtention de l'échauffement localisé, qui influe directement sur l'amplitude de la perturbation thermique (donc sur l'épaisseur mesurable) et sur l'appareillage à mettre en œuvre.

Une vue très schématique des différentes techniques utilisant le laser comme source d'excitation est représentée sur la figure 1.7. Pour la simplification, seulement l'arrangement avec un échantillon métallisé sur les deux faces est montré. La TPM est une méthode temporelle, alors que la LIMM est une méthode fréquentielle. Le laser provoque un gradient

de température ou ondes thermiques non uniformes à l'intérieur du matériau. L'interaction entre ces ondes et la charge et/ou la polarisation génère, entre les deux électrodes de l'échantillon, un signal porteur information. La TPM fournit une réponse rapide (en quelques  $\mu\text{s}$ ) de la distribution de charge ou polarisation. Cette technique convient donc à l'étude des phénomènes qui évoluent rapidement avec le temps. En LIMM, afin d'assurer une bonne résolution en profondeur, le balayage en fréquence doit s'effectuer sur une plage importante, rendant ainsi cette technique relativement lente. Elle est utilisée pour étudier des phénomènes qui évoluent peu avec le temps.

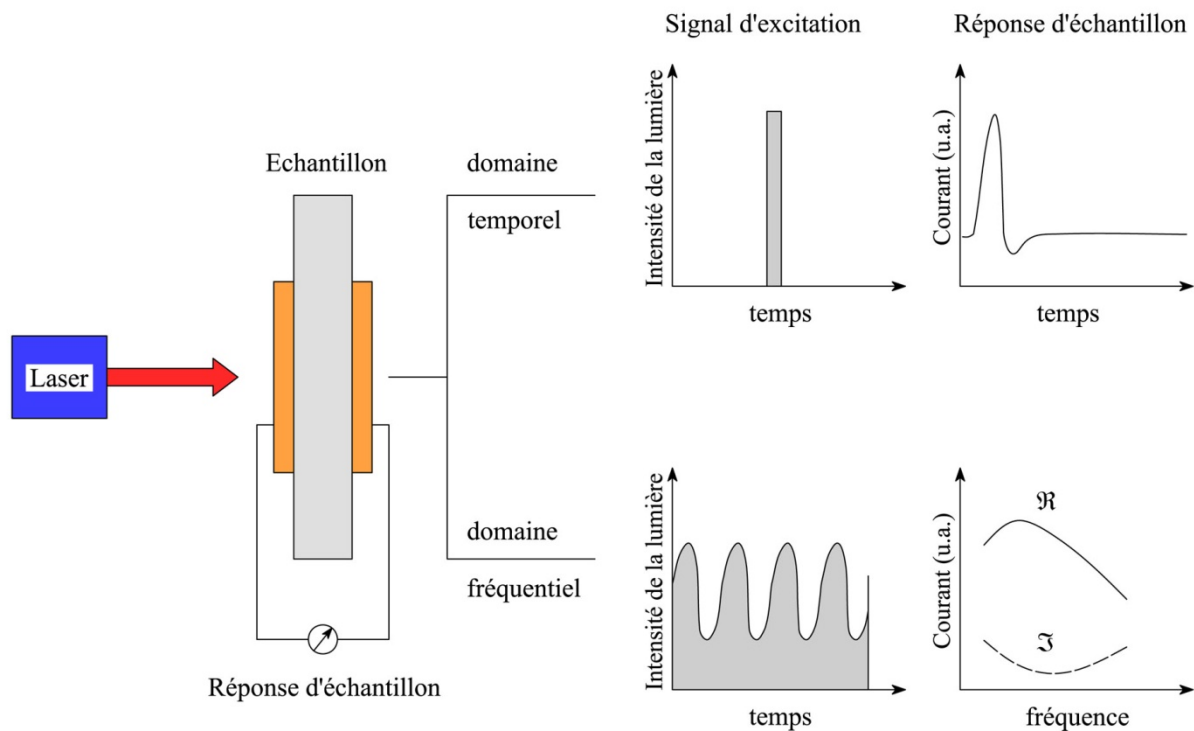


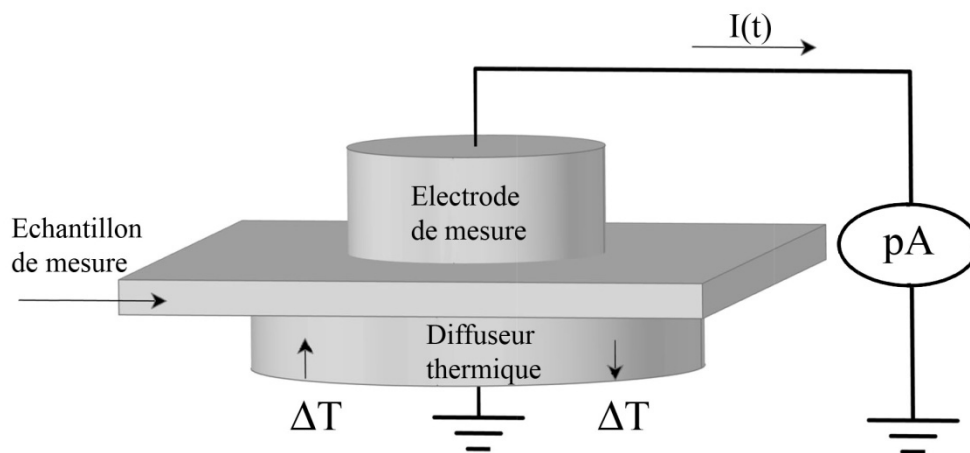
Figure 1.7. Implémentation expérimentale de TPM et LIMM <sup>[BAU 03]</sup>

La méthode de l'onde thermique (MOT) consiste en la mesure du courant de thermodilatation de l'échantillon après application d'un échelon de température sur l'une de ses faces (figure 1.8). L'échelon thermique est créé par une circulation brutale d'un liquide froid (ou chaud) dans un radiateur en contact avec l'échantillon.

Dans les trois techniques, la différence majeure concerne la quantité de chaleur mise en jeu. Elle est très faible dans la TPM et LIMM et ne correspond qu'à une élévation de température de quelques fractions de degré. Le courant pyroélectrique ou la tension générée dans les régions éloignées de quelques dizaines de microns de l'électrode chauffée devient

rapidement indétectable. En conséquence, ces deux méthodes sont limitées à l'étude de films minces. La MOT met en jeu des quantités de chaleur beaucoup plus importante puisqu'on maintient une différence de température de l'ordre de 25 °C entre les électrodes durant toute la durée de la mesure (plusieurs minutes), ce qui lui confère un avantage certain pour l'étude des échantillons épais.

Une attention particulière est demandée dans l'implémentation expérimentale de ces méthodes, notamment en ce qui concerne la source thermique utilisée, les conditions aux limites des équations de chaleur, les performances de l'amplificateur, l'épaisseur et la nature des électrodes, etc. Une excellente discussion des diverses sources d'erreurs systématiques dans la TPM a été fournie par Collins <sup>[COL 80]</sup>. Quelques pièges et difficultés de la LIMM ont été décrits par Wübbenhorst et al. <sup>[WUB 94]</sup>. Cependant, en tenant compte de ces erreurs, des données précises peuvent être obtenues, comme la distribution du champ ou de la polarisation.



**Figure 1.8.** Implémentation expérimentale de MOT <sup>[TOU 07b]</sup>

### 1.5.1.2. Génération du signal

Dans ce paragraphe, les sources pour la génération de signaux dans des techniques thermiques sont discutées. Le signal utile est généré par les contributions du champ électrique et de la polarisation, qui, en général, ne peuvent pas être séparées. Cette séparation est néanmoins possible, dans certains cas, si l'on connaît les caractéristiques du matériau. Ce phénomène est rencontré dans toutes les méthodes, thermiques ou acoustiques.

Considérons un matériau diélectrique métallisé sur les deux faces, les dimensions latérales de l'électrode excitatrice sont beaucoup plus grandes que l'épaisseur de l'échantillon. Ceci permet une modélisation unidimensionnelle de la température  $T(x, t)$ , utilisée actuellement par la majorité des techniques.

Quelque soit la méthode TPM, MOT, LIMM, en conditions de court-circuit, un signal électrique  $I(t)$  est généré entre les deux électrodes et il apporte une information concernant les distributions de la polarisation  $P(x)$  et du champ électrique  $E(x)$  dans l'échantillon [PLO 92].

$$I(t) = \frac{A}{d} \int_0^d \{ \alpha_p P(x) - (\alpha_x - \alpha_\varepsilon) \varepsilon_0 \varepsilon E(x) \} \frac{\partial}{\partial t} T(x, t) dx \quad [1.14]$$

où  $A$  est la surface de l'électrode,  $d$  est l'épaisseur de l'échantillon,  $\varepsilon_0$  est la permittivité du vide et  $\alpha_p = (1/P)dP/dT$ ,  $\alpha_x = (1/x)dx/dT$  et  $\alpha_\varepsilon = (1/\varepsilon)d\varepsilon/dT$  sont respectivement le coefficient de variation de la polarisation, de la dilatation thermique et de la permittivité du matériau avec la température.

La fonction  $r(x) = \alpha_p P(x) - (\alpha_x - \alpha_\varepsilon) \varepsilon_0 \varepsilon E(x)$  est appelée « fonction de charge » et elle est composée des distributions de la polarisation  $\alpha_p P(x)$  et du champ électrique  $(\alpha_x - \alpha_\varepsilon) \varepsilon_0 \varepsilon E(x)$ . En général, les méthodes thermiques fournissent une information globale de  $r(x)$ . Néanmoins, les contributions de  $P(x)$  et  $E(x)$  peuvent être séparées à partir des données expérimentales, seulement dans les deux cas suivants :

- si le matériau est non polaire, seulement  $E(x)$  contribue dans l'équation [1.14]. A titre d'exemple, le Téflon (PTFE) et ses copolymères, le polyéthylène (PE) font partie de cette classe de matériaux.

- si le matériau est polaire, alors la contribution de  $P(x)$  sera prédominante dans l'équation [1.14]. Le PVDF (polyvinylidène fluoride) et ses copolymères sont les matériaux les plus connus de cette classe.

Dans les matériaux où les contributions au signal total de la polarisation et du champ électrique lié à la présence de charge d'espace sont équivalentes, une détermination unique

de  $P(x)$  et  $E(x)$  est généralement impossible. Ici, l'information préalable du protocole de polarisation est exigée afin d'analyser des données des méthodes thermiques.

### 1.5.1.3. Distribution de la température

La connaissance de la distribution de la température à l'intérieur de l'isolant est très importante pour déterminer le profil de charge ou polarisation. La propagation de l'onde thermique dans l'échantillon est décrite par l'équation de chaleur en géométrie plane :

$$D_t \frac{\partial^2 T(z, t)}{\partial z^2} = \frac{\partial T(z, t)}{\partial t} \quad [1.15]$$

où  $T(z, t)$  est la température et  $D_t$  est la diffusivité thermique du matériau. On considère que le diamètre de l'électrode excitatrice est beaucoup plus grand devant l'épaisseur du matériau, ce qui permet une analyse unidimensionnelle du gradient thermique, comme montré par Emmerich et al. [EMM 92] et Lang [LAN 86]. A partir des conditions aux limites, l'équation [1.15] peut être résolue [PLO 91],[BLO 94].

Dans la méthode MOT, l'onde thermique traverse des interfaces radiateur/électrode et électrode/isolant et entraîne un étalement de température qu'on ne peut négliger lors du traitement du courant. Le calcul de la température s'effectue des conditions aux limites compatibles avec le dispositif expérimental. Ainsi, plusieurs modèles ont été proposés, tels que le modèle à deux sources de température [TOU 94], [CHE 92], le modèle à une source de température [MAT 01] et le modèle général [DID 04].

Afin de réaliser des cartographies tridimensionnelles de charges d'espace, il est indispensable de connaître les variations de température en en trois dimensions. En TPT, une modélisation tridimensionnelle de la température dans le domaine temporel  $T(x, y, z, t)$  a été réalisée par élément finis [MEL 05a]. Ainsi, la diffusion thermique rapide dans l'électrode en métal peut devenir un facteur de limitation de la résolution spatiale. Dans notre équipe, un modèle thermique multicouche tridimensionnelle a été développé et utilisé par la méthode FLIMM. Une description détaillée de ce modèle sera effectuée dans le chapitre 3.

#### 1.5.1.4. Déconvolution mathématique

La détermination de la distribution de charges ou la polarisation nécessite un traitement mathématique du signal pyroélectrique. Chaque méthode thermique possède ses propres méthodes de déconvolution, liées au calcul de la distribution de la température dans l'échantillon. Ainsi, plusieurs processus ont été implantés et utilisés pour chaque technique.

Concernant la méthode TPM, étant donné qu'elle fût la première développée, nous permet de voir l'évolution de ces procédés de déconvolution. Le traitement mathématique, proposé par Collins <sup>[COL 77]</sup>, consiste à choisir une discrétisation de la distribution de charges et à calculer la tension que cette distribution génère. Plusieurs itérations sont ensuite utilisées pour la distribution de charges et la tension est calculée jusqu'à ce que les données expérimentales soient en accord avec la discrétisation proposée. Ce procédé est laborieux et peu précis, seule l'expérience permettra une reproduction des résultats. Plus tard, DeReggi et al. <sup>[DER 78]</sup> ont montré que le signal électrique pouvait être analysé en utilisant la transformée de Fourier. Cette méthode a été implantée par Mopsik et DeReggi <sup>[MOP 82]</sup> rendant ainsi possible l'obtention des 10 premiers coefficients de Fourier de la distribution de charges. La résolution, non uniforme sur l'épaisseur de l'échantillon est de l'ordre de 2,5  $\mu\text{m}$  pour un film de 25  $\mu\text{m}$ .

En L IMM, au départ, les auteurs ont proposé également une analyse basée sur la transformée de Fourier. Par la suite, Lang <sup>[LAN 91], [LAN 98]</sup> a introduit les méthodes de régularisation. Une autre méthode de déconvolution a été développée par Ploss et al. <sup>[PLO 92]</sup> : la méthode d'approximation, basée sur un changement d'échelle. Mellinger a proposé une approche itérative <sup>[MEL 04]</sup>. La technique Polynomial Regularization L-Curve Method (PRLCM) <sup>[LAN 04], [LAN 06]</sup> a été récemment présentée par Lang. Elle permet d'analyser les données de L IMM avec exactitude et une bonne stabilité. La méthode de Monte Carlo proposée par Tuncer et Lang <sup>[TUN 05], [LAN 09]</sup> est une des plus nouvelles techniques.

En ce qui concerne la méthode MOT, trois techniques numériques sont généralement utilisées. La méthode par analyse de Fourier est utilisée quand on considère une modélisation avec deux sources de température. Ce traitement est lourd à mettre en œuvre numériquement <sup>[CHE 92], [NOT 01]</sup>. Dans le cas d'une seule source de température, on utilise un traitement basé

sur des dérivations successives. Cette approche est beaucoup plus simple que l'analyse inverse de Fourier <sup>[NOT 01]</sup>. La troisième technique consiste à prendre en compte la température réelle sur chaque face de l'échantillon en fonction du temps de mesure. On écrit équation [1.14] sous forme matricielle et le courant se traite en inversant la matrice des températures <sup>[ABO 97], [NOT 98], [MAT 01]</sup>.

#### 1.5.1.5. Méthode TPT

Ce paragraphe vise à présenter en détails la méthode TPT (Thermal-Pulse Tomography) <sup>[MEL 05b]</sup>, puisque cette méthode a été utilisée dans le cadre de la collaboration avec l'équipe du professeur Gerhard-Multhaup de l'Institut pour la Physique de Potsdam.

En s'inspirant des travaux réalisés sur la méthode FLIMM, le groupe de Potsdam a ajouté un système optique à leur équipement TPM afin de focaliser le faisceau laser et obtenir des distributions en trois dimensions de profil de la polarisation ou du champ électrique interne <sup>[MEL 05c], [MEL 08]</sup>. Le principe de cette méthode consiste à générer un courant de court-circuit par impact d'un faisceau laser pulsé sur l'échantillon. En utilisant un laser pulsé de l'ordre de la nanoseconde, des résolutions de l'ordre du micromètre sont facilement obtenues <sup>[COL 76]</sup>. L'implémentation expérimentale est similaire à celle appliquant dans le domaine de fréquence et est représenté dans la figure 1.9. L'impulsion thermique est produite par un laser Nd:YAG (Polaris III, New Wave Research) fonctionnant dans une gamme de fréquence de 2 à 6 Hz (imposés par la vitesse du système par acquisition de données). Les échantillons (généralement des films de polymère de 10 à 250  $\mu\text{m}$ ) ont été métallisés sur deux côtés avec une couche de 50 nm d'aluminium ou de cuivre et collées à un substrat d'acier inoxydable afin d'éviter les résonances thermoélastiques. En variant la longueur de l'axe optique, la taille de spot du faisceau laser peut être ajustée de 30 à 400  $\mu\text{m}$ .

Le courant de court-circuit a été amplifié par un préamplificateur de courant FEMTO LCA-200K-20M et enregistré par un oscilloscope numérique (Agilent 54833A). Pour améliorer le rapport signal/bruit, le signal est obtenu à partir d'un moyennage sur 30 à 50 impulsions pour chaque point de mesure.

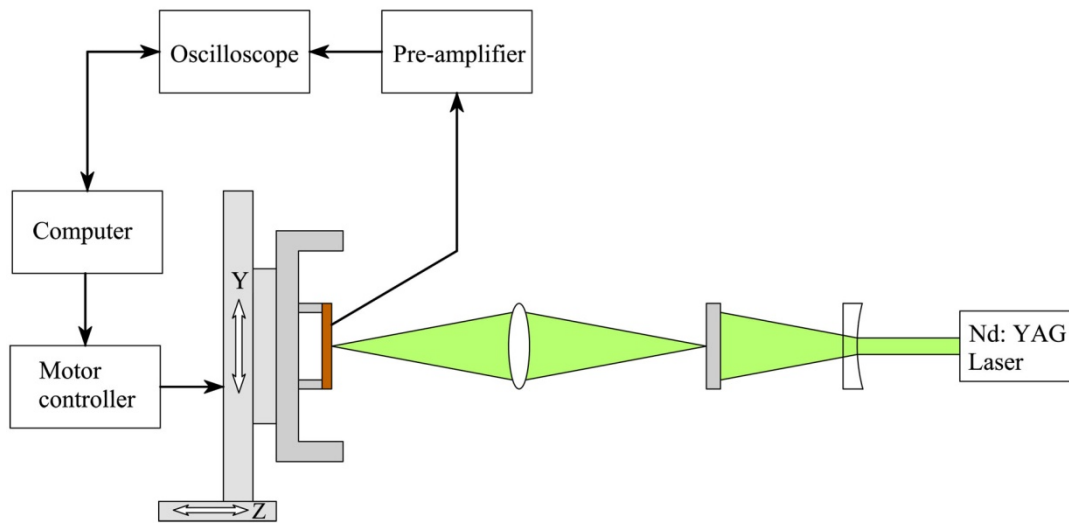


Figure 1.9. Implémentation expérimentale de TPT

L'analyse des données a été décrite dans un article de Suarez en 2006 <sup>[SUA 06]</sup>. Le courant transitoire thermique pulsé  $I(t_k)$  a été transformé dans le domaine fréquentiel par la transformation de Fourier et divisé par le spectre complexe de gain  $\tilde{\alpha}(f_n)$  du FEMTO.

$$\tilde{J}_{exp}(f_n) = \frac{\Delta t}{\tilde{\alpha}(f_n)} \sum_{k=0}^{N-1} I(t_k) e^{-2\pi i k n / N} \quad [1.16]$$

avec  $f_n = \frac{n}{N\Delta t}$ ;  $n = 1 \dots N/2$

où  $\Delta t$  est l'intervalle d'échantillonnage. Le courant pyroélectrique complexe dans le domaine fréquentiel est alors analysé par la méthode d'approximation <sup>[PLO 92]</sup> ou de régularisation <sup>[HAN 93]</sup>.

### 1.5.2. Méthodes acoustiques

Un autre groupe de techniques de détection des charges d'espace est celui des méthodes acoustiques. Certaines techniques utilisent une impulsion de pression ou un échelon de pression, générés par un transducteur piézoélectrique (Pressure Wave Propagation, PWP) <sup>[LAU 77], [ALQ 85]</sup> ou par l'intermédiaire de l'absorption d'une impulsion ultra courte de laser (Laser Induced Pressure Pulse, LIPP) <sup>[SES 82], [ALQ 82]</sup> afin de récupérer un signal électrique directement proportionnel à la variation du champ électrique et donc relié à la distribution des charges d'espace.



D'autre part, la méthode PEA (Pulsed Electro-Acoustic, PEA) <sup>[TAK 87], [MAE 88]</sup> utilise une impulsion de tension appliquée à l'échantillon pour générer des ondes acoustiques qui sont converties par un capteur piézoélectrique en un signal de tension électrique représentatif de la densité de charges. Un avantage potentiel de la méthode PEA est le fait que les électrodes et le circuit de détection sont électriquement séparés, de sorte que des investigations sous les champs électriques élevés puissent être effectuées sans risque d'endommager l'amplificateur et les composants associés <sup>[TAK 99]</sup>. Récemment, Imai et al. <sup>[IMA 04]</sup> ont proposé un système sans contact pour la méthode PEA permettant de mesurer le phénomène de la surface chargée aussi bien que la distribution de charges internes.

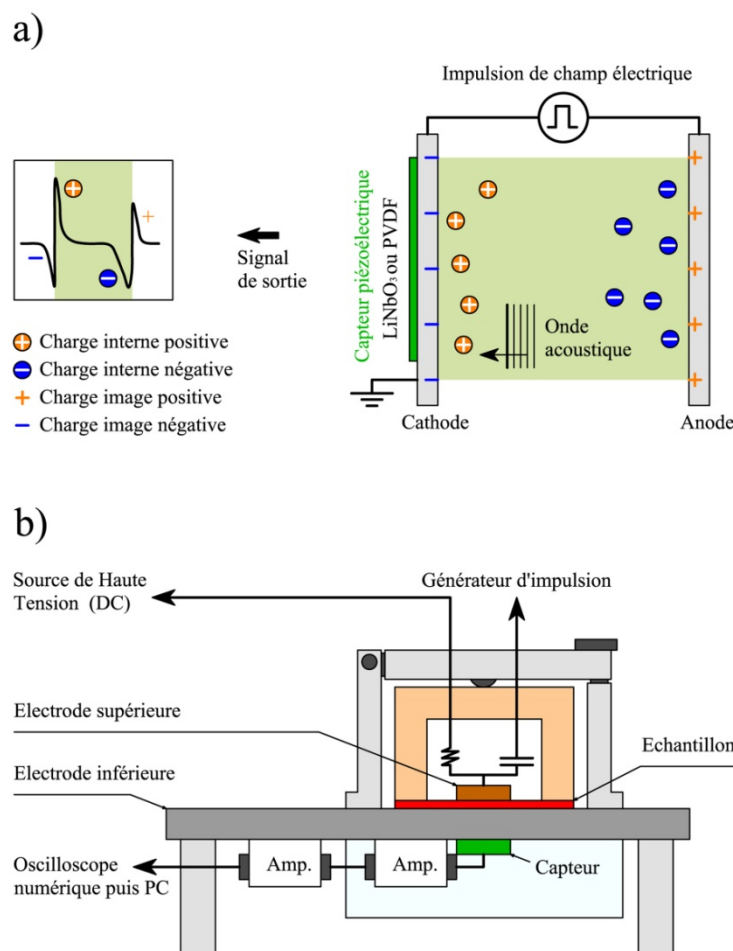
Plusieurs groupes de recherche ont combiné les méthodes acoustiques avec un balayage dans le plan de l'échantillon afin d'obtenir les cartographies en deux ou trois dimensions de polarisation ou de charges d'espace. Alquié et al. ont employé la LIPP pour déterminer la distribution de charges électriques à la surface du Téflon FEP <sup>[ALQ 82]</sup> avec une résolution latérale de 0,2 mm. Imaizumi a rapporté des images tridimensionnelles de la distribution de charges d'espace sur le PMMA avec une résolution de 1 mm par la méthode PEA en déplaçant l'électrode par laquelle la haute tension appliquée <sup>[IMA 95]</sup>. Ce procédé étant très lent, Maeno <sup>[MAE 01]</sup> a mis au point un nouveau système de mesure 3D PEA en ajoutant une lentille acoustique au détecteur d'un système classique 1D PEA. Les résolutions de ce système sont de 12  $\mu\text{m}$  en profondeur et 0.5 mm dans la direction latérale. Pour une conception plus simple, un capteur matriciel <sup>[FUK 04]</sup> basé sur la méthode PEA normale avec plusieurs capteurs acoustiques a été mise au point. La résolution latérale est déterminée par la distance entre les capteurs et cette distance est environ 3 mm. Un développement de méthode PWP <sup>[XIA 99]</sup> a donné une résolution de l'ordre du millimètre sur le plan  $x - y$  et 60  $\mu\text{m}$  dans la direction  $z$  respectivement.

Dans les paragraphes suivants, on va présenter en détail les méthodes PEA classique et sans contact, méthodes utilisées lors de ce travail.

#### *1.5.2.1. Méthode PEA classique*

La méthode PEA a initialement été mise au point au Japon dans les années 1980 <sup>[MAE 85], [MAE 88]</sup>. Le principe de cette méthode est de mesurer les ondes acoustiques créées par des

charges d'espace lorsque celles-ci sont soumises à une impulsion de champ électrique (figure 1.10.a). En effet, lorsqu'une impulsion électrique est appliquée sur une charge, celle-ci se voit astreinte à une force de type Coulombien qui induit un déplacement élémentaire transitoire de cette charge autour de sa position d'équilibre. Une onde de pression, d'amplitude proportionnelle à la quantité de charges, est alors générée. Cette onde est ensuite convertie par un capteur piézoélectrique. Le signal de tension délivré par le capteur donne une information qualitative sur les charges et un traitement numérique adéquat est appliqué sur pour établir une distribution quantitative de la charge d'espace en fonction de la profondeur de l'échantillon.



**Figure 1.10.** (a) Principe de la méthode PEA, (b) Dispositif PEA <sup>[FUK 04]</sup>

Dans le dispositif classique (voir figure 1.10.b), l'échantillon est placé entre deux électrodes. A partir de l'électrode supérieure, il est possible de polariser l'échantillon et d'appliquer les impulsions de tension qui jouent le rôle de sonde pour effectuer les mesures.

Une des premières conditions pour obtenir un profil de charge est d'utiliser une largeur d'impulsion beaucoup plus étroite que le temps de transit des ondes acoustiques à travers l'échantillon. L'amplitude d'impulsion doit être adaptée à l'épaisseur de l'échantillon. Il est conseillé d'utiliser une tension qui produit un champ électrique maximum de 1 kV/mm car le champ est supposé ne pas modifier l'état de charge du matériau. L'impulsion est appliquée de manière répétitive (fréquence de répétition de l'ordre 400 Hz) car le signal détecté est faible en amplitude et il doit donc être moyenné pour améliorer le rapport signal/bruit. Chaque impulsion de tension est appliquée sur l'échantillon via un circuit électrique d'adaptation composé de résistances et de capacités et d'un semi-conducteur permettant une bonne transmission acoustique. Le semi-conducteur est utilisé pour assurer un meilleur contact mécanique avec l'échantillon et pour limiter ainsi la réflexion du signal acoustique à l'interface. Le générateur d'impulsion est aussi relié à l'oscilloscope pour synchroniser le déclenchement de l'acquisition sur une impulsion de tension. Un générateur de haute tension peut être connecté à l'électrode supérieure pour polariser l'échantillon étudié à travers une résistance de 5 M $\Omega$  et une capacité de découplage de 250 pF (de manière à protéger le générateur d'impulsion).

L'électrode inférieure dite électrode de détection, utilisé comme récepteur, est composée d'une plaque d'aluminium d'épaisseur supérieure à 1 cm pour retarder le signal acoustique et donc éviter la superposition du signal incident et du signal réfléchi. Cela permet de faciliter son extraction du bruit lors du traitement. Sous cette plaque se trouve le film piézoélectrique. Dans le système utilisé, le transducteur piézoélectrique est un film de PVDF fortement polaire de 9  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Il est couplé à un absorbeur de réflexion d'onde acoustique. La tension générée par le transducteur est amplifiée par un amplificateur large bande faible bruit et enregistrée par un oscilloscope numérique relié à un ordinateur.

Afin d'obtenir un profil de charges, cela nécessite deux mesures. La première mesure (qui correspond au signal de référence) nous donne  $v_{s1}(t)$  qui sera converti grâce à la transformée de Fourier en  $V_{s1}(f)$  à partir de laquelle nous pouvons déterminer la fonction de transfert du système. La deuxième mesure nous permet d'obtenir les signaux de sortie  $v_s(t)$  qui sera converti en  $V_s(f)$ . Il est alors possible de remonter à la densité de charge en utilisant la fonction de transfert du système.

On utilise le logiciel de traitement de données PEANUTS (Pulsed Electro-Acoustic NondestrUctive Test System) pour effectuer le traitement numérique du signal électrique en sortie du PEA. Il permet, à partir du signal enregistré à la sortie du détecteur piézoélectrique, de recalculer et de visualiser instantanément la distribution spatiale du champ électrique  $E(x)$  et du potentiel  $V(x)$ .

La résolution spatiale dans le volume des échantillons repose en premier lieu sur la manière dont l'onde acoustique se génère, se propage ou est détectée. Cette résolution peut être améliorée en réduisant la largeur du signal acoustique en augmentant la bande passante globale de la PEA qui dépend par exemple de la forme du pulse appliqué à l'échantillon, de la bande de passante de l'oscilloscope, de l'épaisseur du capteur ou de l'épaisseur de l'échantillon. L'onde acoustique est détectée par un capteur piézoélectrique dont son épaisseur détermine la résolution en volume de la charge. Au cours du temps, la résolution spatiale initialement de 100  $\mu\text{m}$  est passée à 5  $\mu\text{m}$  <sup>[MAE 96]</sup> puis à 2  $\mu\text{m}$  <sup>[MAE 98]</sup> en utilisant respectivement un capteur piézoélectrique de 100  $\mu\text{m}$  puis un capteur évaporé.

En jouant sur ces deux facteurs, il est possible d'améliorer la résolution en volume. Les systèmes classiques offrent généralement une résolution de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$  <sup>[GRI 07]</sup>.

#### 1.5.2.2. Méthode PEA sans contact

Suite aux demandes toujours plus exigeantes, en particulier pour les mesures sous irradiation, un système sans contact a vu le jour. Des travaux montrant la faisabilité de ce système ont été réalisés récemment <sup>[IMA 04]</sup>. L'électrode supérieure est placée à une distance de l'ordre du mm au dessus de la surface de l'échantillon à étudier. Cette surface est donc flottante et il est possible d'y détecter des charges déposées sans perturbation. L'inconvénient d'un tel système est la diminution de l'amplitude du signal avec l'éloignement de l'électrode supérieure qui s'avère nécessaire lorsque l'état de charge du système étudié augmente et que le risque de décharge électrostatique croît. Il faut également modifier le protocole expérimental pour l'enregistrement du signal de référence, puisque l'échantillon ne peut plus être polarisé de la manière classique. Ainsi, l'enregistrement du signal de référence peut s'effectuer de deux manières différentes : soit par application aux

bornes de l'échantillon d'une tension continue ; soit par irradiation de l'échantillon avec des électrons de faible énergie <sup>[GRI 07]</sup>.

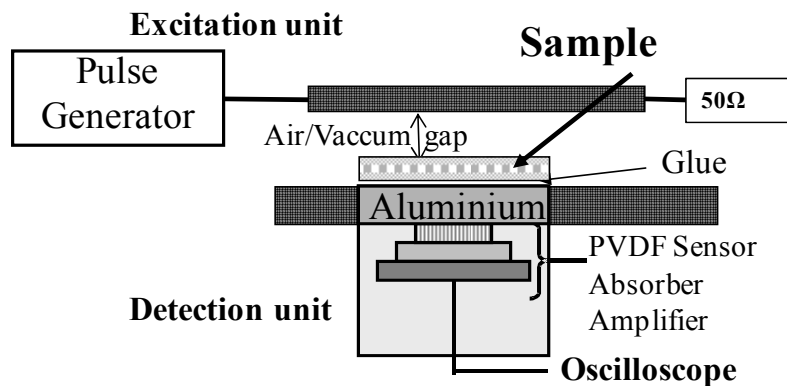


Figure 1.11. Dispositif PEA sans contact <sup>[PER 08]</sup>

## 1.6. Comparaison entre les méthodes thermiques et acoustiques

Les principales caractéristiques des méthodes thermiques et acoustiques sont présentées dans le tableau 1.1.

Les méthodes thermiques et acoustiques sont des méthodes complémentaires : les techniques acoustiques sont utilisées pour l'étude des films épais avec une bonne résolution spatiale en volume, par contre les méthodes thermiques sont excellentes pour déterminer les distributions des charges ou de la polarisation dans les films minces, avec une très bonne résolution spatiale proche de la surface excitée. Cette conclusion résulte de plusieurs comparaisons effectuées entre les techniques acoustiques et thermiques qui ont été rapportées par beaucoup d'équipes de recherche au cours des années <sup>[DER 92], [ALQ 92], [BLO 96], [DAS 96], [BOU 97], [BLO 00], [PHA 09b]</sup>.

Les techniques TPT et PEA donnent des résultats plus rapidement tandis que la FLIMM possède une très bonne résolution latérale. Ainsi, ces trois méthodes apparaissent comme des techniques complémentaires pour l'étude de charges d'espace ou de la polarisation des matériaux diélectriques.

	Méthodes thermiques			Méthodes acoustiques		
Nom de la méthode	Impulsion thermique TPM, TPT	Modulation thermique LIMM, FLIMM	Échelon thermique TSM	Impulsion de pression LIPP	Échelon de pression PIPWP	Électro-acoustique PEA
Année d'émergence	1975	1981	1987	1977	1982	1985
Nature de la perturbation et mode de génération	- Dilatation - Impulsion laser de courte durée devant le temps de relaxation thermique	- Dilatation - Faisceau laser modulé en amplitude à différentes fréquences	- Dilatation - Brusque modification de la température entre les électrodes de mesure	- Compression - Impulsion laser de courte durée devant temps de transit acoustique	- Compression - Échelon de compression généré par effet piézo-électrique sur un cristal	- Champ électrique - Impulsion de tension appliquée à l'échantillon
Quantité mesurée	Réponse électrique par effet pyroélectrique			Réponse électrique par effet piézoélectrique		Réponse acoustique
Rapport signal/bruit	Faible	- Faible - Intégration de la réponse pyroélectrique	- Important - Lecture sur mesure unique	- Faible - Intégration de la réponse possible car perturbation reproductible		
Traitement mathématique	Première analyse possible sans déconvolution	Déconvolution toujours nécessaire		Déconvolution non nécessaire dans la majorité des cas		
Résolution spatiale	< 0,5 $\mu\text{m}$ près de la surface	< 1 $\mu\text{m}$ près de la surface, moins bonne dans le volume	< 10 nm	2 $\mu\text{m}$ Limitée aux électrodes, bonne dans le volume		> 2 $\mu\text{m}$ Limitée aux électrodes, bonne dans le volume
Résolution latérale	38 $\mu\text{m}$	10 $\mu\text{m}$	-	1 $\text{mm}^2$ sur le plan x-y		0,5 mm
Temps nécessaire à la mesure	Courte 1 - 10 $\mu\text{s}$	Longue 1 - 100 min	Moyen 5 - 20 s	Courte 0,5 - 10 $\mu\text{s}$		
Type d'échantillon	< 100 $\mu\text{m}$		10 $\mu\text{m}$ -1 cm MOS < 10 nm	50 $\mu\text{m}$ -20mm	100 $\mu\text{m}$ -1mm	100 $\mu\text{m}$ -20mm
Domaine d'application spécifique	Composants en microélectronique, films minces			Câbles, condensateurs, films et plaques		

 Tableau 1.1. Caractéristiques principales des méthodes de mesure de charges d'espace <sup>[LAU 99]</sup>

## 1.7. Tendances et perspectives

Il nous paraît indéniable que ces méthodes vont jouer, dans l'avenir, un rôle important aussi bien dans les aspects scientifiques, qu'industriels. La MOT « haute tension » et la PEA, qui sont installées industriellement, contribuent au choix des matériaux pour câbles isolés [NOT 01], [FUK 08]. Etant donné l'intérêt récent pour les nanomatériaux diélectriques [LEW 05], [NEL 05] il semble probable que les mesures de charges d'espace joueront une part importante dans ce domaine, en particulier leurs interfaces avec les électrodes [LEW 04]. Dagher et al. [DAG 06] ont proposé une approche applicable aux méthodes de mesure de charges d'espace pour améliorer la résolution dans la gamme du nanomètre en utilisant un laser femtoseconde pulsé. Pour des méthodes TP et PWP, une résolution environ de 60 nanomètre dans SiO<sub>2</sub> a été démontrée. Par ailleurs, la MOT a montré très récemment de nouvelles possibilités de caractérisation pour la micro ou la nanoélectronique [FRU 07]. Concernant la méthode PEA, un système innovant de mesure de charge d'espace sans contact a été mis au point pour l'étude de la distribution des charges dans les matériaux sous l'effet d'un bombardement électronique [PER 08]. Ce système permet donc d'effectuer des mesures de profils de charge entre deux périodes d'irradiation et de suivre la relaxation des charges sous vide.

Dans notre équipe, une évolution de la LImm a été mise au point, donnant naissance à la méthode FLImm [FRA 97], [FRA 00]. Grâce à la focalisation du faisceau laser, des platines micrométriques permettent un balayage suivant les axes X et Y, des cartographies multidimensionnelles de charges d'espace ou de la polarisation peuvent être réalisées [PET 06], [PET 09], [PHA 09a], avec une résolution spatiale en volume d'environ 1 μm, et latérale d'environ 10 μm.

Durant les trois dernières décennies, des nombreuses techniques non-destructives de mesure de charges d'espace et de polarisation ont donc été développées. Elles donnent toute une information sur la charge d'espace et ont toute un domaine d'utilisation particulier : toutes ces méthodes sont « complémentaires » et donc utiles quant à l'étude des isolants. Néanmoins, essentiellement en raison des différences de leur principe même, chaque technique a ses spécificités et ses domaines d'application. De plus, l'adéquation des techniques dépend de la nature des matériaux considérés (polymères, céramiques, verres) et de la géométrie (épaisseur) des échantillons. Selon les phénomènes que l'on veut observer, il

est peut être nécessaire d'avoir une bonne résolution spatiale, latérale, des valeurs quantitatives précises. Dans le cadre de cette étude, nous avons utilisé trois méthodes : FLIMM, TPT, PEA.



## Chapitre 2. Evolution et perspectives de développement de la méthode FLIMM

### 2.1. Introduction

La présence de charge d'espace dans les matériaux est un phénomène qui est étudié depuis de nombreuses années [IED 84], [SES 97]. Cependant la compréhension des modes de génération, de transport, et de piégeage de ces charges n'est pas achevée. Dans les années 80, une nouvelle technique de détection de profils de charges ou de polarisation a été développée par Lang et Das-Gupta [LAN 81]. Cette méthode, appelée LIMM (Laser Intensity Modulation Method), consiste à irradier la surface de l'échantillon étudié par un faisceau laser modulé en intensité à une fréquence variable. On mesure ensuite le courant pyroélectrique qui résulte de l'interaction de l'onde thermique produite par le laser avec les charges d'espace ou la polarisation. Durant les vingt dernières années, beaucoup de progrès ont été faits en ce qui concerne la détection de la distribution des charges ou de la polarisation dans les matériaux diélectriques par cette technique [LAN 04]. Afin de répondre à des champs d'applications plus vastes, la méthode LIMM a évolué vers des nouvelles variantes, comme la SLIMM (Surface LIMM) [LAN 94], [LAN 96].

La méthode FLIMM (Focused LIMM) a été mise en œuvre dans notre équipe [FRA 97], [FRA 00], et a fait objet des travaux de trois thèses de doctorat [HAA 97], [BIE 01], [PET 04b]. La particularité de cette méthode réside dans la focalisation du faisceau laser qui permet une détection ponctuelle des charges d'espace et la réalisation de cartographie 3D de charges d'espace ou de polarisation avec une résolution latérale de quelques microns et une

résolution spatiale dans le volume inférieure à  $1 \mu\text{m}$ . Dans ce chapitre, après un bref rappel du principe de cette méthode, le problème électrostatique sera rappelé. La description du banc de mesure expérimental ainsi que des performances escomptées fera l'objet du paragraphe suivant. Les limitations seront ensuite illustrées. Enfin, les récentes évolutions de cette technique seront présentées.

## 2.2. Principe de la méthode

La méthode FLIMM, basée sur la technique LIMM, consiste à irradier la surface de l'échantillon à l'aide d'un faisceau laser modulé en intensité et focalisé à la surface de l'échantillon afin de créer un gradient thermique non uniforme à l'intérieur de l'échantillon (voir figure 2.1). L'interaction entre cette onde thermique avec la charge et/ou la polarisation spatiale produit un courant pyroélectrique.

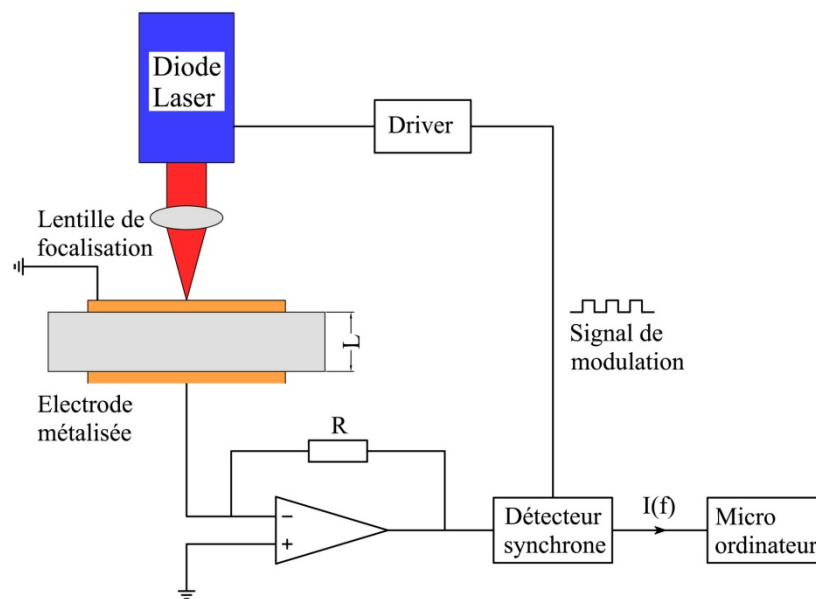


Figure 2.1. Schéma de principe de la méthode FLIMM

Ce courant pyroélectrique est converti en tension par un préamplificateur de transconductance faible bruit. La tension issue de ce préamplificateur est extraite du bruit par un détecteur synchrone qui fournit la partie réelle et la partie imaginaire du courant pyroélectrique. Une déconvolution mathématique permet alors de déterminer les profils de charges d'espace ou de polarisation. Un micro-ordinateur gère la fréquence de modulation du

faisceau laser, l'acquisition du signal utile et la position de faisceau laser à la surface de l'échantillon. En associant à chaque point de mesure, le profil de charge d'espace ou de polarisation, il est possible de réaliser des cartographies 3D de la charge d'espace ou de polarisation.

### 2.3. Description du banc de mesure

Le schéma du banc de mesure est représenté sur la figure 2.2. La diode laser est modulée en intensité par l'intermédiaire d'un générateur BF à une fréquence variable. Son optique et son driver déterminent les caractéristiques du faisceau incident, c'est-à-dire sa puissance, son intensité et son type de modulation. L'amplitude du signal pyroélectrique, ainsi que la résolution spatiale et latérale sont directement dépendants de la forme du faisceau laser qui irradie l'échantillon. La diode actuellement utilisée (PMT45) peut être modulée par un signal TTL jusqu'à la fréquence de 20 MHz.

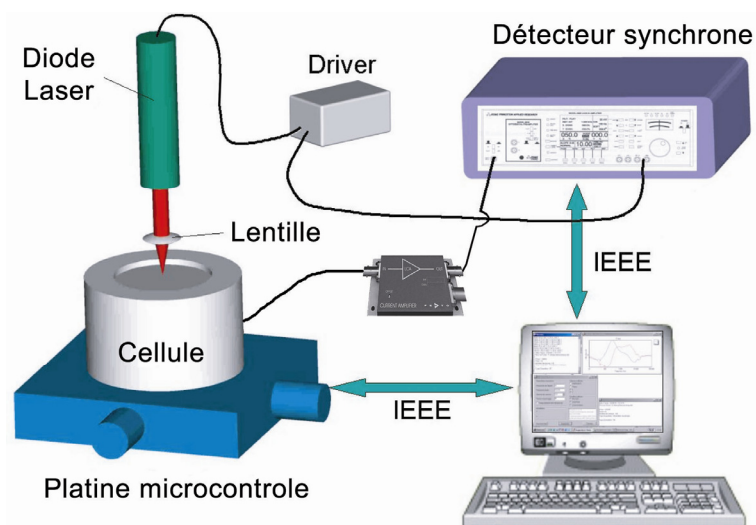


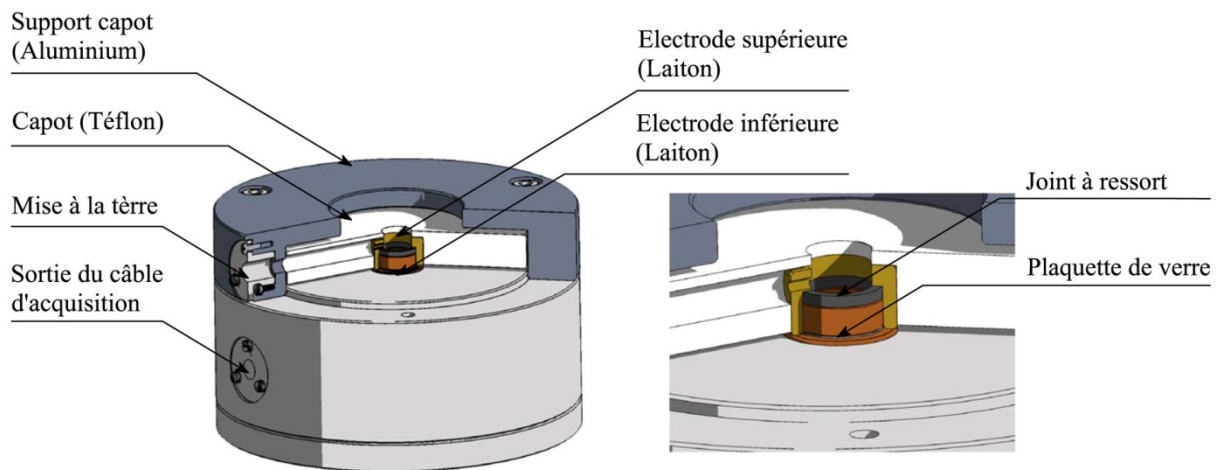
Figure 2.2. Schéma du banc de mesure

Le faisceau laser issu de cette diode est focalisé à la surface de l'échantillon par un système optique performant (objectif Nachet 20X). La résolution latérale dépend du diamètre du spot de focalisation.

Au niveau de l'échantillon, une partie de la lumière est absorbée par l'objet, l'autre partie est réfléchiée et détectée par une webcam qui permet le réglage de la focalisation et

l'estimation de la taille de spot. La webcam utilisée est une Philips ToUcam avec une résolution de la caméra de 640/480 pixels.

Les cartographies multidimensionnelles de charges ou de polarisation sont effectuées grâce à des platines microcontrôle qui permettent des déplacements suivant les axes X et Y de l'échantillon étudié sous le faisceau laser avec une précision submicronique. L'échantillon est métallisé sur les deux faces avec une couche fine d'or (20 à 50 nm). Il est placé dans la cellule de mesure (voir figure 2.3) servant à la fois de support et de protection contre les perturbations électromagnétiques. Sur le capot de la cellule de mesure, une ouverture de diamètre de 20 mm a été prévue afin de permettre un balayage en X et Y de la surface de l'échantillon. L'intégration d'une plaquette de verre permet d'une part de maintenir l'échantillon en contact électrique avec l'électrode porteuse du signal et de visualiser le positionnement du faisceau laser sur la zone à étudier, d'autre part.



**Figure 2.3.** Détails de la cellule de mesure

A la sortie de la cellule, le préamplificateur de transconductance faible bruit (FEMTO LCA-200k-20M) est chargé d'effectuer à la fois l'adaptation d'impédance à l'entrée en tension du détecteur synchrone et l'amplification du signal pour l'amener à un niveau convenable pour être traité. Il est également utilisé pour remplir la condition de court-circuit virtuel en régime alternatif entre les électrodes qui est nécessaire pour réaliser nos mesures. Le signal amplifié est ensuite extrait du bruit par l'intermédiaire d'un détecteur synchrone. Ce signal pouvant atteindre des niveaux très faibles ( $0,1 \text{ pA}_{eff}$ ), un détecteur synchrone (EG&G 5210) travaillant jusqu'à 100 kHz avec 130 dB de réserve dynamique, est utilisé

pour extraire le signal du bruit. L'ensemble du dispositif est piloté par un ordinateur, qui permet l'incrémentation de la fréquence avec un certain pas et l'enregistrement de l'amplitude et de la phase du signal ou les parties réelle et imaginaire.

## 2.4. Problème électrostatique

Le signal électrique que nous recueillons est lié à la variation de la charge induite au niveau des électrodes de l'échantillon par une perturbation thermique. Il faut donc résoudre le problème électrostatique lié à l'apparition et à l'évolution de ces charges pour pouvoir clairement établir l'équation fondamentale décrivant l'évolution de notre information utile, en l'occurrence le courant pyroélectrique de court-circuit.

Le gradient thermique qui interagit avec les charges d'espace ou la polarisation, génère, entre les deux électrodes, un courant pyroélectrique  $I(f)$ . Comme montré dans la figure 2.4, l'électrode supérieure côté impact laser est à la masse. On considère une charge surfacique  $Q_i$  située à l'intérieur du matériau, dans une couche plane infiniment mince, parallèle aux électrodes et située à la distance  $z$  et  $(L - z)$  de celles-ci.

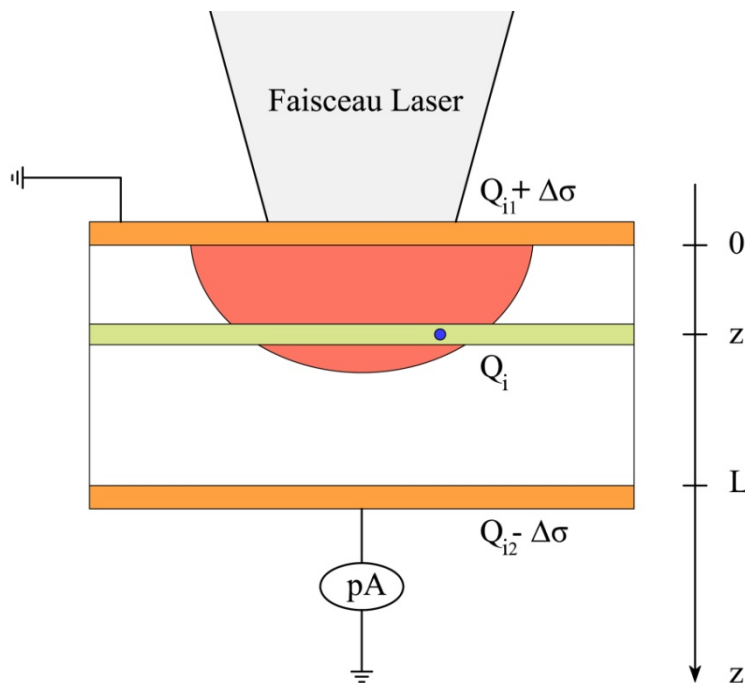


Figure 2.4. Création des charges images

Comme le système électrode/échantillon/électrode est en équilibre électrostatique, la charge interne  $Q_i$  induit sur les électrodes, des charges images  $Q_{i1}$  et  $Q_{i2}$ , qui dépendent des distances  $z$  et  $(L - z)$  (figure 2.4). La pénétration d'une onde de chaleur à partir de l'une des électrodes entraîne une dilatation du matériau et une variation de la permittivité qui font varier les valeurs relatives de ces distances et modifient l'équilibre des charges images. La condition d'influence totale impose la neutralité électrique des charges ce qui traduit par :

$$Q_{i1} + Q_{i2} + Q_i = 0 \quad [2.1]$$

L'induction électrique  $D = \varepsilon \cdot E$  vaut :

$$\text{Sur } [0, z] : \varepsilon \cdot E = Q_{i1}$$

$$\text{Sur } [z, L] : \varepsilon \cdot E = -Q_{i2} = Q_{i1} + Q_i$$

où  $\varepsilon$  représente la permittivité du matériau ( $\text{Fm}^{-1}$ ) et  $E$  le champ électrique interne ( $\text{Vm}^{-1}$ ).

L'exposition au laser provoque sur l'électrode supérieure une variation de la charge  $\Delta\sigma$ . On en déduit :

$$Q'_{i1} = Q_{i1} + \Delta\sigma$$

$$Q'_{i2} = Q_{i2} - \Delta\sigma$$

Les deux électrodes étant en condition de court-circuit, le théorème de Gauss permet d'écrire :

$$\oint \vec{E} \cdot d\vec{l} = 0 \quad [2.2]$$

$$\text{D'où} \quad \int_0^z \frac{Q_{i1} + \Delta\sigma}{\varepsilon'} du' + \int_z^L \frac{Q_{i1} + Q_i + \Delta\sigma}{\varepsilon'} du' = 0 \quad [2.3]$$

$$\text{Soit} \quad \Delta\sigma \int_0^L \frac{du'}{\varepsilon'} + Q_{i1} \int_0^L \frac{du'}{\varepsilon'} + Q_i \int_z^L \frac{du'}{\varepsilon'} = 0 \quad [2.4]$$

Le changement de température provoque une dilatation du matériau et une variation locale de la permittivité, qui s'écrivent :

$$du' = (1 + \alpha_x T) du ; \varepsilon' = \varepsilon_{T_0} (1 + \alpha_\varepsilon T) \quad [2.5]$$

avec  $\alpha_x, \alpha_\varepsilon$  respectivement le coefficient de dilatation thermique du matériau et le coefficient de dépendance à la température de la permittivité du matériau et  $T_0$  la température d'équilibre.

$$\alpha_x = \frac{1}{u} \frac{du}{dT} ; \alpha_\varepsilon = \frac{1}{\varepsilon} \frac{d\varepsilon}{dT} \quad [2.6]$$

De sorte que :

$$\frac{du'}{\varepsilon'} = \left[ \frac{1 + \alpha_x T}{1 + \alpha_\varepsilon T} \right] \frac{du}{\varepsilon_{T_0}} \quad [2.7]$$

Un développement limité au premier ordre implique :

$$\frac{1 + \alpha_x T}{1 + \alpha_\varepsilon T} \approx 1 - \alpha_\varepsilon T + \alpha_x T = 1 + \alpha T ; \quad (\alpha = \alpha_x - \alpha_\varepsilon)$$

L'équation [2.4] devient alors :

$$\Delta\sigma \int_0^L (1 + \alpha T) \frac{du}{\varepsilon} + Q_{i1} \int_0^L (1 + \alpha T) \frac{du}{\varepsilon} + Q_i \int_z^L (1 + \alpha T) \frac{du}{\varepsilon} = 0$$

Soit 
$$\Delta\sigma L + (Q_{i1} + \Delta\sigma)\alpha \int_0^L T du + Q_{i1}L + Q_i(L - z) + Q_i\alpha \int_z^L T du = 0$$

D'où 
$$\Delta\sigma = -(Q_{i1} + \Delta\sigma) \frac{\alpha}{L} \int_0^L T du - Q_{i1} - Q_i \frac{(L - z)}{L} - Q_i \frac{\alpha}{L} \int_z^L T du \quad [2.8]$$

Sachant que  $Q_i$  est donnée par :

$$Q_i(z) = \rho(z) \cdot dz \quad [2.9]$$

où  $\rho(z)$  est la densité de charge dans la direction de l'épaisseur de l'échantillon. En intégrant sur l'épaisseur de l'échantillon, l'équation [2.8] devient alors :

$$\Delta\sigma = -(Q_{i1} + \Delta\sigma) \frac{\alpha}{L} \int_0^L T du - Q_{i1} - Q_i \frac{(L - z)}{L} - \frac{\alpha}{L} \int_0^L \rho(z) \int_z^L T du \cdot dz \quad [2.10]$$

Calcul de  $\int_0^L \rho(z) \int_z^L T du . dz$

Posons :  $g(z) = \int_z^L T(u) du = \int_0^L T(u) du - \int_0^z T(u) du$

$\Rightarrow \frac{\partial g(z)}{\partial z} = -T(z)$

$$\int_0^L \rho(z) \int_z^L T du . dz = \int_0^L \rho(z) g(z) . dz = \left[ g(z) \int_0^z \rho(u) du \right]_0^L - \int_0^L \int_0^z \rho(u) du . \frac{\partial}{\partial z} g(z) . dz$$

$$= \left( \int_L^L T(u) du . \int_0^L \rho(u) du \right) - \left( \int_0^L T(u) du . \int_0^0 \rho(u) du \right) - \int_0^L \int_0^z \rho(u) du . \frac{\partial}{\partial z} g(z) . dz$$

$$= - \int_0^L \int_0^z \rho(u) du . \frac{\partial}{\partial z} g(z) . dz$$

$$\Rightarrow \int_0^L \rho(z) \int_z^L T du . dz = - \int_0^L \int_0^z \rho(u) du . \frac{\partial}{\partial z} g(z) . dz \quad [2.11]$$

D'un autre côté, si on désigne par  $E(z)$  champ électrique interne, on a :

$$\rho(z) = \varepsilon \frac{\partial E}{\partial z} \Rightarrow \int_0^z \rho(u) du = \varepsilon(E(z) - E(0))$$

On remplace dans l'équation [2.11] pour trouver :

$$\int_0^L \rho(z) \int_z^L T du . dz = \int_0^L \varepsilon(E(z) - E(0)) T(z) dz \quad [2.12]$$

En remplaçant [2.12] dans [2.10], on obtient :

$$\Delta\sigma = -(Q_{i1} + \Delta\sigma) \frac{\alpha}{L} \int_0^L T du - Q_{i1} - Q_i \frac{(L-z)}{L} - \frac{\alpha}{L} \int_0^L (\varepsilon E(z) - \varepsilon E(0)) T . dz$$



$$= (\varepsilon E(0) - Q_{i1} - \Delta\sigma) \frac{\alpha}{L} \int_0^L T du - Q_{i1} - Q_i \frac{(L-z)}{L} - \frac{\alpha\varepsilon}{L} \int_0^L E(z)T(z) dz$$

D'autre part, on a :  $\varepsilon E(0) = Q'_{i1} = Q_{i1} + \Delta\sigma$

Alors, on obtient :

$$\Delta\sigma = -Q_{i1} - Q_i \frac{(L-z)}{L} - \frac{\alpha\varepsilon}{L} \int_0^L E(z)T(z) dz \quad [2.13]$$

La variation des charges d'influence se traduit par l'apparition d'un courant de court-circuit dans le circuit extérieur. La densité de ce courant est donné par :

$$J_{cc}(t) = -\frac{dQ'_{i2}}{dt} = \frac{d\Delta\sigma}{dt}$$

Soit 
$$J_{cc}(t) = \frac{d}{dt} \left\{ -Q_{i1} - Q_i \frac{(L-z)}{L} - \frac{\alpha\varepsilon}{L} \int_0^L E(z)T(z) dz \right\} \quad [2.14]$$

Les deux premiers termes de cette expression sont indépendants de la variation de la température. Car ce sont les parties constantes de la charge d'influence. L'équation [2.14] devient :

$$J_{cc}(t) = -\frac{\alpha\varepsilon}{L} \int_0^L E(z) \left( \frac{\partial}{\partial t} T(z, t) \right) dz \quad [2.15]$$

On rappelle que  $T(z, t) = T(z, f)e^{j\omega t}$  pour une modulation sinusoïdale. On en déduit :

$$J_{cc}(f) = -j\omega \frac{\alpha\varepsilon}{L} \int_0^L E(z)T(z, f) dz \quad [2.16]$$

L'expression du courant de court-circuit s'écrit :

$$I_{cc}(f) = \int_S J_{cc}(f) = -j\omega \frac{\alpha\varepsilon S}{L} \int_0^L E(z).T(z, f) dz \quad [2.17]$$

où  $E(z)$  est le champ électrique interne dans l'échantillon  $T(z, f)$  la température qui se propage à l'intérieur du matériau et  $S$  la surface du faisceau laser.

D'une façon plus générale, et dans le cas où l'échantillon possède une distribution de polarisation, l'équation [2.17] se généralise :

$$I_{cc}(f) = j\omega \frac{S}{L} \int_0^L r(z).T(z, f)dz \quad [2.18]$$

avec  $r(z) = \alpha_p p(z) - \alpha \varepsilon E(z)$  appelée « fonction de charge »

où  $\alpha_p$  est le coefficient de variation de la polarisation,  $p(z)$  le coefficient pyroélectrique dans la direction de l'épaisseur de l'échantillon  $z$ .

En trois dimensions <sup>[MEL 05a]</sup>, l'équation [2.18] devient :

$$I_{cc}(f) = j \frac{2\pi f}{L} \int_0^L \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} r(x, y, z).T(x, y, z, f) dx dy dz \quad [2.19]$$

Avec  $r(x, y, z) = \alpha_p p(x, y, z) - \alpha \varepsilon E(x, y, z)$

L'extraction de la fonction de charge  $r(z)$  par des méthodes mathématiques de déconvolution, à partir de l'équation [2.18] nécessite la connaissance du courant  $I(f)$  et de la température  $T(z, f)$ . Les mesures du courant pyroélectrique  $I(f)$  sont très délicates. Afin de palier ce problème, plusieurs solutions ont été envisagées <sup>[PET 04b], [LAN 91], [LAN 06], [TUN 05]</sup>.

On note également l'importance fondamentale de la température. Les différents modèles proposés seront présentés dans le chapitre 3 consacré à la modélisation thermique. Il reste cependant à résoudre le problème mathématique d'inversion consistant à retrouver  $r(z)$ . C'est là le cœur du problème. Les méthodes d'inversion « classiques » ne donnent pas de solution fiable car la matrice des résultats expérimentaux est très mal conditionnée. Plusieurs méthodes mathématiques ont été implémentées, testées et comparées, afin de trouver celle qui convient le mieux à nos expérimentations <sup>[PET 04a]</sup>.

## 2.5. Déconvolution mathématique

### 2.5.1. Problématique

Si l'on connaît les variations du courant pyroélectrique, et en supposant un gradient de température donné, on peut estimer la forme du profil de la charge d'espace ou de polarisation en utilisant un traitement mathématique de l'équation [2.18]. Cette équation est une intégrale de Fredholm de première espèce où la fonction de charge  $r(z)$  est la fonction inconnue à déterminer.  $T(z, f)$  constitue la répartition de la température et  $I(f)$  l'ensemble des mesures expérimentales. Les problèmes basés sur de telles intégrales sont très mal conditionnés, très sensibles aux perturbations du système. Plusieurs méthodes sont utilisées pour résoudre le plus finement ce type de problème. Pour la procédure FLIMM, on peut citer :

- la méthode d'approximation <sup>[PLO 92]</sup>.
- les méthodes de régularisation <sup>[LAN 91], [LAN 98], [PET 04a]</sup>.

### 2.5.2. Méthode d'approximation

La méthode d'approximation a été mise au point par Ploss <sup>[PLO 92]</sup>. Cette méthode ne nécessite pas l'inversion de matrice. Elle est basée sur l'approximation de la température pour les fréquences les plus élevées utilisées par une fonction dite « fonction fenêtre normalisée » :

$$f_a(z, z_r) = \frac{2}{z_r} \sin\left(\frac{z}{z_r}\right) e^{\frac{z}{z_r}} \quad [2.20]$$

avec  $z_r = \sqrt{\frac{D_t}{\pi f}}$  étant la profondeur de pénétration thermique,  $D_t$  la diffusivité thermique et  $f$  la fréquence de modulation du faisceau.

Elle permet alors une simplification de l'équation du courant pyroélectrique [2.18], mais également l'extraction d'une approximation de la fonction de charge  $r_a(z_r)$  dans le matériau à une profondeur  $z_r$  :

$$r_a(z_r) = \frac{\chi L}{D_t \eta \phi_0 S} (\Re - \Im)_{\omega=2D_t/z_r^2} = \int_0^{\infty} r(z) f_a(z, z_r) dz \quad [2.21]$$

où  $\Re$  et  $\Im$  sont les parties réelles et imaginaires du courant pyroélectrique,  $\chi$  la conductivité thermique,  $\eta$  le coefficient d'absorption optique des électrodes,  $\phi_0$  la densité de puissance du faisceau laser.

Il a été démontré que la résolution spatiale décroît avec la profondeur de pénétration. Une bonne approximation est donc obtenue avec une résolution maximale près de la surface. Il est donc nécessaire d'effectuer une deuxième mesure sur la face opposée afin de reconstruire le profil complet de la charge. Le principal avantage de cette méthode est d'éviter les traitements mathématiques complexes. Sa mise en œuvre est facile et immédiate.

### 2.5.3. Méthode de régularisation

Une méthode plus complexe mais plus efficace a été également mise en œuvre. Il s'agit de la méthode de régularisation. Elle consiste à imposer une contrainte supplémentaire sur le système d'équations pour rendre la solution unique.

L'équation fondamentale de type Fredholm tenant compte d'un environnement bruité est donnée par :

$$\int_0^1 A(s, t)x(t)dt = b_0(s) + e(s) \quad [2.22]$$

où  $b_0(s) + e(s)$  constitue le signal mesuré,  $e(s)$  le bruit,  $A(s, t)$  la fonction noyau et  $x(t)$  la solution recherchée.

Le signal mesuré étant constitué d'un ensemble fini de valeurs de  $s$ , nous pouvons remplacer le modèle continu [2.22] par une équation linéaire discrète :

$$Ax = b_0 + e = b \quad [2.23]$$

Il est très difficile de résoudre ces équations linéaires discrètes en raison d'un grand nombre de petites valeurs singulières qui tendent à augmenter l'influence des erreurs. Une

solution significative de ces équations peut être calculée en utilisant les méthodes de régularisation. Leur but consiste à introduire une information additionnelle par rapport à la solution recherchée afin de stabiliser le problème inverse, puis à extraire une solution proche de la réalité. Plusieurs contraintes additionnelles peuvent être ajoutées, mais on impose généralement une minimisation de la norme d'ordre 2 de la solution.

Plusieurs méthodes de régularisation ont été décrites dans la littérature notamment par Hansen <sup>[HAN 96], [HAN 94]</sup> : les méthodes de Tikhonov <sup>[TIK 77], [HAN 93], [HON 90]</sup>, Singular Value Decomposition (SVD), Truncated SVD <sup>[HAN 00]</sup> et Piecewise Polynomial TSVD (PP-TSVD) <sup>[HAN 96]</sup>. La différence entre ces techniques réside dans la manière dont on impose les contraintes additionnelles sur la solution afin de réduire l'effet des erreurs.

La forme de régularisation que nous utilisons est celle développée par Tikhonov et elle est appliquée à des domaines très variés, comme par exemple le traitement des images <sup>[AND 77]</sup> ou la technologie biomédicale <sup>[SKI 02]</sup>. Le principe de cette méthode consiste dans le choix d'une solution  $x_\lambda$  qui satisfasse le problème :

$$\min_x \{ \|Ax - b\|_2^2 + \lambda \|Px\|_2^2 \} \quad [2.24]$$

$P$  est l'opérateur différentiel de premier ordre et  $\lambda$  le paramètre de régularisation qui contrôle le poids de la minimisation de la contrainte latérale  $\|Px\|_2$  par rapport à la minimisation de la norme résiduelle  $\|Ax - b\|_2$ .

Plusieurs méthodes permettant la détermination du paramètre de régularisation  $\lambda$  existent, les plus récentes et les plus fiables sont L-Curve (LC) <sup>[HAN 93]</sup> et Self-Consistency (SC) <sup>[HON 90]</sup>.

## 2.6. Performances et limitations

Les critères de performance reposent sur la résolution spatiale et la sensibilité. La résolution en épaisseur dépend en premier lieu de la manière dont se propage l'onde thermique. La taille de la zone thermique est conditionnée par les caractéristiques thermiques du matériau mais aussi par la fréquence de modulation. Plus la fréquence est basse et plus la

zone thermique est grande. On définit la longueur de diffusion thermique  $\alpha_t$  <sup>[MAR 92]</sup> par la distance à laquelle une source de chaleur est atténuée de  $e^{-1}$ . Elle peut s'écrire :

$$\alpha_t = \sqrt{\frac{D_t}{\pi f}} \quad [2.25]$$

où  $D_t$  (m<sup>2</sup>/s) est la diffusivité thermique et  $f$  la fréquence de modulation du faisceau.

Ainsi, la résolution proche de la surface peut être améliorée en augmentant la fréquence de modulation. Pour des matériaux avec une grande diffusivité thermique, la résolution est moindre par rapport aux matériaux polymères. Cependant d'autres facteurs doivent être pris en compte comme par exemple la bande passante du préamplificateur, l'épaisseur de l'échantillon. Le système FLIMM offre généralement une résolution en profondeur inférieure à 1  $\mu$ m.

La focalisation du faisceau laser avec une taille de spot de 5  $\mu$ m permet d'effectuer des mesures localisées. Grâce à des platines motorisées permettant un balayage suivant les axes X et Y de la surface de l'échantillon, des cartographies multidimensionnelles de charges d'espace ou de la polarisation peuvent être réalisées <sup>[PHA 09a], [PET 09]</sup>, avec une résolution latérale d'environ 10  $\mu$ m comme nous le verrons au chapitre 4. Afin d'obtenir la meilleure résolution latérale, il faut une taille de spot la plus petite possible, et une fréquence de modulation la plus grande possible.

L'intensité du signal utile étant liée à l'absorption du faisceau laser, pour augmenter le rapport signal/bruit, on a cherché à améliorer l'absorption optique du faisceau laser par les électrodes. Expérimentalement, une mise au point minutieuse a été menée pour éliminer toute source parasite, et la chaîne de conditionnement de signal a été tout particulièrement soignée pour réduire le niveau de bruit.

Les limites de cette méthode, comme la plupart des méthodes thermiques, sont relatives au type de source utilisée. Le but étant de localiser la charge en profondeur, il faudra exciter le matériau sur une large bande de fréquences. La modélisation thermique donne alors des indications sur le choix de cette bande mais montre également les limites : à basse fréquence, la zone thermique est grande et le signal capté est donc issu de l'état de

charge général dans cette zone. Il devient donc difficile d'obtenir une bonne résolution sur toute la profondeur de l'échantillon. Une solution consiste à retourner l'échantillon, et à renouveler l'opération. L'association des réponses obtenues successivement sur les deux faces permet de reconstituer le profil intégral à l'intérieur de l'échantillon. En outre, afin d'assurer une bonne résolution spatiale, le balayage en fréquence doit s'effectuer sur une plage importante, rendant ainsi cette technique relativement lente.

## 2.7. Mesures FLIMM sous contrainte électrique continue

Les études de mesures de charges d'espace par la méthode FLIMM menées jusqu'à présent ont concerné la caractérisation des échantillons en condition de court-circuit. Avec le développement par exemple des câbles HVDC, les efforts se sont recentrés sur la possibilité de donner une information «temps réel» et *in-situ* sur l'apparition, le développement et l'évolution de la charge d'espace dans l'isolant du système étudié. Ainsi, la FLIMM a donc évolué vers des mesures sous champ DC.

La FLIMM en conditions de court-circuit nous informe sur l'état statique résiduel des charges dans le matériau avant et après l'application de la contrainte. Cependant, pour rester proche des conditions de service des systèmes isolés et pour une meilleure compréhension des phénomènes apparaissant lorsqu'un champ électrique extérieur est appliqué, la FLIMM a été adaptée pour réaliser des mesures sous champ électrique appliqué <sup>[PHA 07]</sup>. De plus, les mesures sous tension peuvent apporter des informations utiles pour la calibration des mesures de charge d'espace de la technique.

### 2.7.1. Principe

Compte tenu des similitudes entre les méthodes MOT et FLIMM, une adaptation de la technique du « double condensateur » <sup>[AGN 00], [NOT 01]</sup> a été étudiée pour la méthode FLIMM. Cette technique consiste à associer un échantillon de mesure à un échantillon de compensation aux dimensions identiques. Ces deux échantillons sont disposés dans deux cellules strictement identiques reliées à la source de tension et au préamplificateur. L'utilisation de deux échantillons identiques apporte l'avantage de compenser les courants

transitoires de polarisation et de conduction pouvant apparaître sous forts champs ; le courant mesuré est ainsi dû uniquement au champ électrique interne de l'échantillon mesuré [TOU 07b].

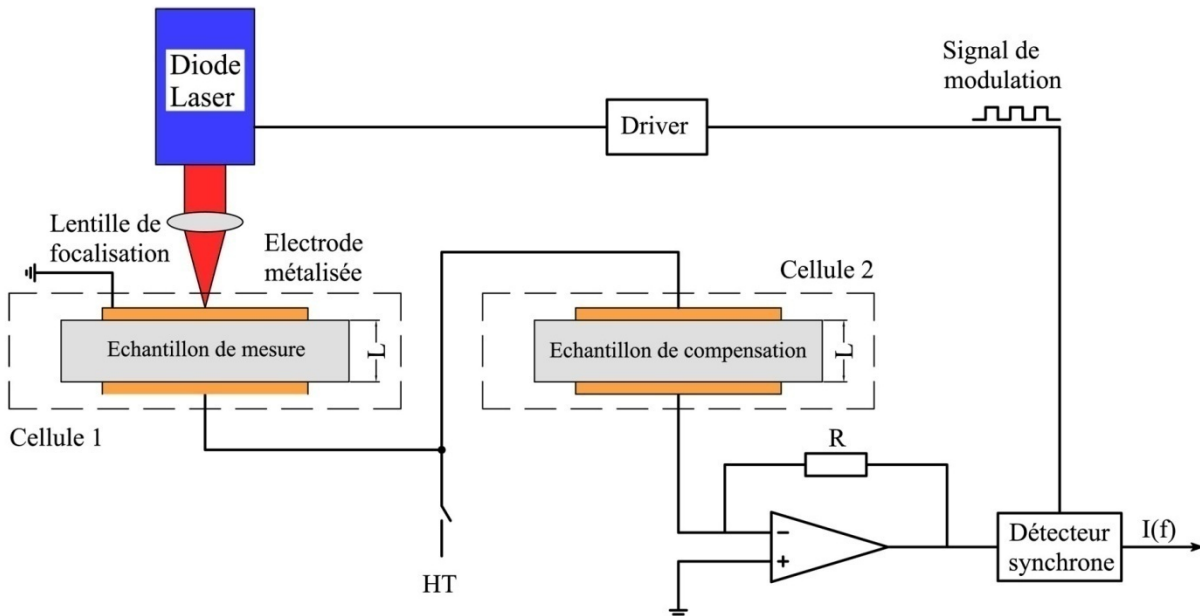


Figure 2.5. Schéma de principe du banc de mesure FLIMM sous champ

Le schéma de principe de banc de mesure FLIMM sous champ est représenté sur la figure 2.5. L'électrode supérieure de la cellule de mesure, soumise au faisceau laser, est mise à la masse, tandis que l'électrode inférieure est connectée à l'électrode supérieure de la cellule de compensation. Celles-ci, qu'on appellera « électrodes de charge », sont reliées à source de haute tension continue ( $V_{HT}$ ) via un interrupteur.

La mesure « sous champ » est ainsi réalisée en deux étapes. Dans un premier temps, l'électrode inférieure de la cellule de compensation est reliée à la masse et on applique entre les deux cellules une tension de quelques centaines de volts. Afin d'éviter le transport de charges d'influence aux électrodes à travers la source HT, celle-ci doit être déconnectée pendant la mesure et le préamplificateur est rebranché à la cellule de compensation.

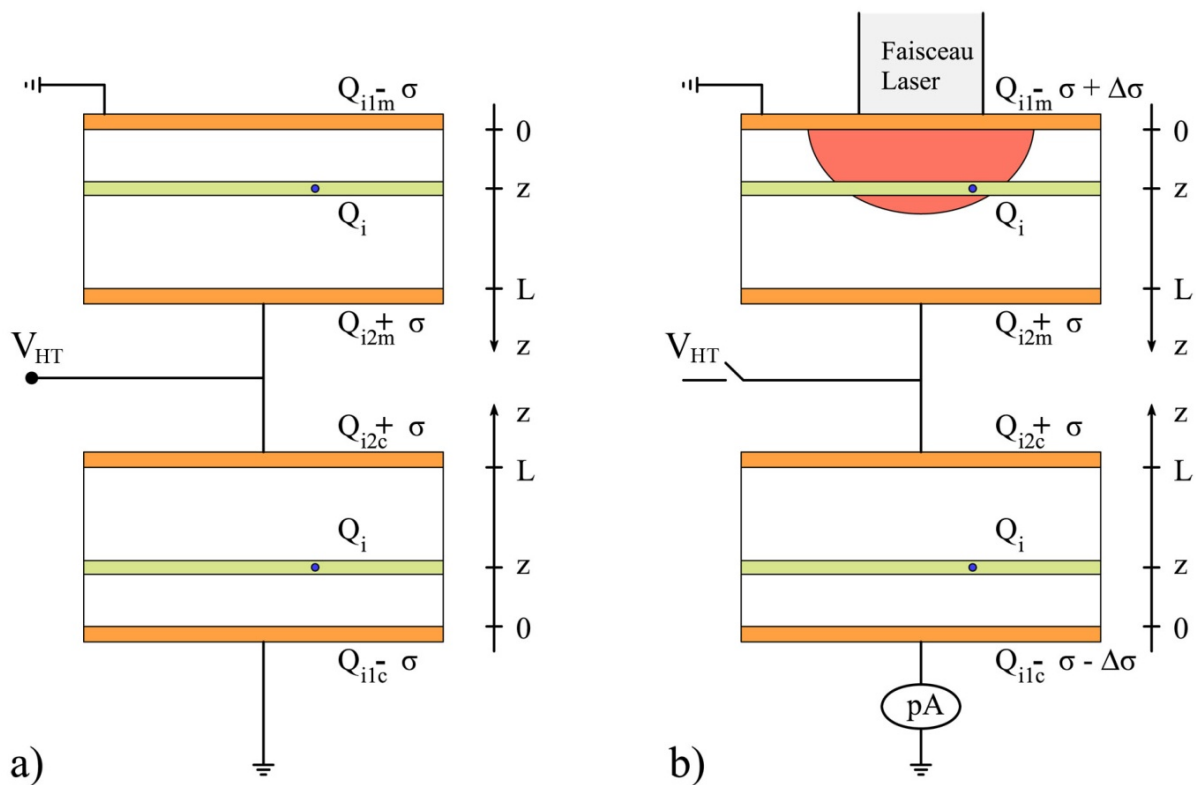
Lorsque l'on souhaite évoluer vers une analyse sous champ, des problèmes spécifiques se posent. L'application d'un champ continu entre les électrodes de l'échantillon (par le biais d'une HT) peut induire une destruction de la chaîne de traitement du signal. De plus, ce signal FLIMM doit rester spécifique de la charge interne, et ne pas être bruité par des courants liés à l'instrumentation (de conduction, de polarisation par exemple). Une mesure



directe sous tension n'est donc pas envisageable. Ainsi, il faut pouvoir déconnecter la HT pendant la mesure, ce qui supposera une absence de déclin de potentiel sur les électrodes. La durée d'enregistrement d'un spectre FLIMM  $I(f)$  n'étant pas instantanée, c'est un paramètre dont il va falloir évaluer l'influence.

### 2.7.2. Problème électrostatique

Comme mentionné précédemment, il est essentiel de supposer que les deux échantillons ont la même distribution des charges. Ainsi, les échantillons étant identiques, si une charge  $Q_i$  se trouve à une distance  $z$  de l'électrode mise à la masse dans un des échantillons, il doit en être de même pour le deuxième.



**Figure 2.6.** Étapes de mesure et création des charges images pour la FLIMM sous champ  
 a) Application de la haute tension ; b) Mesure du signal

On considère une charge  $Q_i$  située à la distance  $z$  et  $(L - z)$  des électrodes et se trouvant dans une couche plane infiniment mince parallèle à celles-ci pour chaque échantillon. Par influence totale, cette charge interne  $Q_i$  induit sur les électrodes, des charges images  $Q_{i1j}$  et  $Q_{i2j}$ , qui dépendent des distances  $z$  et  $(L - z)$  avec  $j = m, c$ . On notera avec

l'indice  $m$  les quantités relatives à l'échantillon de mesure et avec l'indice  $c$  les quantités relatives à l'échantillon de compensation. La condition d'influence totale impose la neutralité électrique des charges ce qui traduit par :

$$Q_{i1j} + Q_{i2j} + Q_i = 0, \quad j = m, c \quad [2.26]$$

Au terme de l'étape de charge, on a :  $Q_{i1m} = Q_{i1c} = Q_1$

En présence de  $V_{HT}$ , il apparaît sur les électrodes des charges surfaciques  $\sigma = \varepsilon V_{HT}/L$ . L'induction électrique  $D = \varepsilon \cdot E$  vaut :

$$\text{Sur } [0, z] : \varepsilon \cdot E = Q_{i1j} - \sigma \quad j = m, c$$

$$\text{Sur } [z, L] : \varepsilon \cdot E = -Q_{i2j} - \sigma = Q_{i1j} + Q_i - \sigma$$

où  $\varepsilon$  représente la permittivité du matériau ( $\text{Fm}^{-1}$ ) et  $E$  le champ électrique interne ( $\text{Vm}^{-1}$ ).

Le théorème de Gauss permet d'écrire  $\oint \vec{E} \cdot \vec{dl} = -V_{HT}$  :

$$\begin{cases} (Q_{i1m} - \sigma) \int_0^z \frac{du}{\varepsilon} + (Q_{i1m} + Q_i - \sigma) \int_z^L \frac{du}{\varepsilon} = -V_{HT} \\ (Q_{i1c} - \sigma) \int_0^z \frac{du}{\varepsilon} + (Q_{i1c} + Q_i - \sigma) \int_z^L \frac{du}{\varepsilon} = -V_{HT} \end{cases} \quad [2.27]$$

Quand on ouvre l'interrupteur relié à  $V_{HT}$ , la somme des charges présentes sur les deux électrodes de charges reste constante durant toute l'étape de mesure ( $Q_{i2m} + Q_{i2c} = cte$ ). En s'appuyant sur [2.26], on déduit que :

$$Q_{i1m} + Q_{i1c} = cte = 2Q_1 \quad [2.28]$$

L'exposition au laser provoque sur l'électrode supérieure de la cellule de mesure une variation de la charge  $\Delta\sigma$  :

$$Q'_{i1m} = Q_1 + \Delta\sigma \quad [2.29]$$

A partir des équations [2.28] et [2.29], on trouve :

$$Q'_{i1c} = Q_1 - \Delta\sigma \quad [2.30]$$

De plus, le laser engendre une variation locale de  $du$  et  $\varepsilon$  dans l'échantillon de mesure. Alors, si on considère que le potentiel des électrodes de charge devient  $V_0$  et en utilisant les équations [2.29] et [2.30], l'équation [2.27] devient :

$$\begin{cases} (Q_1 + \Delta\sigma - \sigma) \int_0^z \frac{du'}{\varepsilon'} + (Q_1 + \Delta\sigma + Q_i - \sigma) \int_z^L \frac{du'}{\varepsilon'} = -V_0 \\ (Q_1 - \Delta\sigma - \sigma) \int_0^z \frac{du}{\varepsilon} + (Q_1 - \Delta\sigma + Q_i - \sigma) \int_z^L \frac{du}{\varepsilon} = -V_0 \end{cases} \quad [2.31]$$

D'où :

$$\begin{cases} (Q_1 + \Delta\sigma - \sigma) \int_0^L \frac{du'}{\varepsilon'} + Q_i \int_z^L \frac{du'}{\varepsilon'} = -V_0 \\ (Q_1 - \Delta\sigma - \sigma) \int_0^L \frac{du}{\varepsilon} + Q_i \int_z^L \frac{du}{\varepsilon} = -V_0 \end{cases}$$

En soustrayant les deux équations précédentes, on trouve :

$$\Delta\sigma \left[ \int_0^L \frac{du'}{\varepsilon'} + \int_0^L \frac{du}{\varepsilon} \right] + (Q_1 - \sigma) \left[ \int_0^L \frac{du'}{\varepsilon'} - \int_0^L \frac{du}{\varepsilon} \right] + Q_i \left[ \int_z^L \frac{du'}{\varepsilon'} - \int_z^L \frac{du}{\varepsilon} \right] = 0 \quad [2.32]$$

Le changement de température provoque une dilatation du matériau et une variation locale de la permittivité, qui s'écrivent :

$$du' = (1 + \alpha_x T) du ; \varepsilon' = \varepsilon_{T_0} (1 + \alpha_\varepsilon T)$$

De sorte que :

$$\frac{du'}{\varepsilon'} = \left[ \frac{1 + \alpha_x T}{1 + \alpha_\varepsilon T} \right] \frac{du}{\varepsilon_{T_0}} \approx (1 + \alpha T) \frac{du}{\varepsilon} \quad \text{avec : } \alpha = \alpha_x - \alpha_\varepsilon$$

On remplace cette expression dans l'équation [2.32] pour trouver :

$$\Delta\sigma \left( \frac{2L}{\varepsilon} + \frac{\alpha}{\varepsilon} \int_0^L T du \right) + (Q_1 - \sigma) \frac{\alpha}{\varepsilon} \int_0^L T du + Q_i \frac{\alpha}{\varepsilon} \int_z^L T du = 0$$

$$\Delta\sigma = -(Q_1 - \sigma + \Delta\sigma) \frac{\alpha}{2L} \int_0^L T du - Q_i \frac{\alpha}{2L} \int_z^L T du \quad [2.33]$$

De la même manière la FLIMM classique (voir paragraphe 2.4), on trouve :

$$\Delta\sigma = \sigma \frac{\alpha}{2L} \int_0^L T(z) dz - \frac{\alpha\varepsilon}{2L} \int_0^L E_r(z) T(z) dz \quad [2.34]$$

où  $E_r(z)$  est le champ résiduel induit par les charges. Posons  $E_a$  le champ électrique appliqué :

$$\sigma = \frac{\varepsilon V_{HT}}{L} = -\varepsilon E_a$$

En remplaçant dans l'équation [2.34], on obtient :

$$\Delta\sigma = -\frac{\alpha\varepsilon}{2L} E_a \int_0^L T(z) dz - \frac{\alpha\varepsilon}{2L} \int_0^L E_r(z) T(z) dz$$

La densité de courant dans le circuit extérieur est donné par :

$$J(t) = -\frac{dQ'_{i1c}}{dt} = \frac{d\Delta\sigma}{dt}$$

Donc

$$J(t) = \frac{\partial}{\partial t} \left( -\frac{\alpha\varepsilon}{2L} E_a \int_0^L T(z, t) dz - \frac{\alpha\varepsilon}{2L} \int_0^L E_r(z) T(z, t) dz \right)$$

Soit

$$J(t) = -\frac{\alpha\varepsilon}{2L} E_a \int_0^L \left( \frac{\partial}{\partial t} T(z, t) \right) dz - \frac{\alpha\varepsilon}{2L} \int_0^L E_r(z) \left( \frac{\partial}{\partial t} T(z, t) \right) dz$$

On rappelle que  $T(z, t) = T(z, f) e^{j\omega t}$  pour une modulation sinusoïdale. On en déduit :

$$J(f) = -j\omega \frac{\alpha\varepsilon}{2L} \int_0^L (E_r(z) + E_a) T(z, f) dz \quad [2.35]$$

L'expression du courant s'écrit :

$$I(f) = \int_S J(f) = -j\omega \frac{\alpha\varepsilon}{2L} \int_S \int_0^L (E_r(z) + E_a) T(z, f) dz dS \quad [2.36]$$

où  $S$  la surface du faisceau laser.

Sous faible champ appliqué, la technique permet de séparer les contributions du champ externe et du champ interne. Ceci est très utile pour effectuer une calibration des mesures de charges d'espace comme cela est montré dans le chapitre 3. Nous envisageons également d'utiliser cette technique pour d'étudier la dynamique de la charge d'espace sous champs.

## 2.8. Nouvelle stratégie de mesure

### 2.8.1. Principe

Les cartographies en 3 dimensions de charges d'espace nécessitent un balayage de la surface et une analyse fréquentielle du signal FLIMM. Ce balayage de la surface nécessite un nombre de points de mesure d'autant plus important que la surface analysée est grande et que la résolution souhaitée est grande. Chaque point de mesure nécessite au minimum 65 fréquences pour reconstituer le profil de charge en profondeur au point de mesure. Cela entraîne un temps d'acquisition excessivement long. Afin d'améliorer le temps d'acquisition, la précision et la fiabilité de nos mesures expérimentales, nous avons développé une nouvelle stratégie suivant 3 étapes :

1. La première étape consiste à effectuer un balayage de la surface de l'échantillon à une fréquence fixe avec une résolution latérale de 150  $\mu\text{m}$ . La différence entre les parties réelle et imaginaire du courant mesuré représente le champ électrique interne ou la polarisation. De cette façon, on peut obtenir très rapidement une cartographie du champ électrique interne ou du profil de polarisation dans la zone thermique qui permet la localisation des zones d'étude.
2. En seconde étape, un balayage de la zone d'étude sélectionnée est effectué à différentes fréquences et avec une bonne résolution latérale. La mesure à de diverses fréquences fixes permet la connaissance du champ électrique interne ou la polarisation à différentes profondeurs (tomographie tridimensionnelle). En utilisant

la méthode d'approximation <sup>[PLO 92]</sup>, la profondeur d'investigation est donnée par la profondeur de pénétration thermique est donnée par  $z_r = \sqrt{\frac{D_t}{\pi f}}$  où  $D_t$  ( $m^2/s$ ) est la diffusivité thermique. Ce nouveau protocole nous permet de réduire fortement le temps d'acquisition, par exemple 10 fois moins de temps pour 5 plans de mesure. À partir de ces mesures, une ligne d'étude peut être choisie afin d'obtenir une résolution spatiale dans le volume et latérale plus élevée.

3. Enfin, nous réalisons un balayage fréquentiel entre 105 Hz et 10 kHz pour chaque point de la ligne d'étude choisie. La déconvolution mathématique des signaux enregistrés permet la reconstruction de la distribution spatiale des charges à l'intérieur de l'échantillon. Les profils de charge obtenus pour chaque point de mesure donnent l'état de charge dans un plan perpendiculaire à la surface de l'échantillon.

Cette nouvelle stratégie de mesure permet de choisir la zone d'étude et de mesurer l'état de charge dans l'échantillon avec une haute résolution de l'ordre du micromètre dans un temps réduit.

### **2.8.2. Programme d'acquisition**

En se basant sur la nouvelle stratégie de mesure, nous avons développé un nouveau programme d'acquisition sous Delphi. L'interface entre le dispositif de mesure et l'ordinateur est assuré par ce programme permettant d'une part une souplesse dans le choix des paramètres de mesures et l'enregistrement des courants dans des fichiers ASCII (\*.dat) ou des fichiers compatibles avec Matlab (\*.m) et le mode de balayage de la surface de l'échantillon à une fréquence fixe ou à différentes fréquences. Les cartographies de charges sont effectuées automatiquement grâce à deux platines motorisées qui sont commandés par le programme d'acquisition.

Dans le mode de balayage à fréquence fixe, ce logiciel permet d'afficher très rapidement une cartographie du champ électrique interne ou du profil de polarisation. Il est facile de modifier la valeur de la fréquence et la zone d'étude si les résultats obtenus ne sont pas satisfaisants.

En ce qui concerne le balayage FLIMM, le choix de la gamme de fréquences se fait en sélectionnant les fréquences minimales et maximales et le nombre des points entre ces deux valeurs. L'espace des fréquences peut se faire de façon linéaire ou logarithmique. Pour chaque point de mesure, ce logiciel permet l'affichage instantané de l'évolution des spectres de courants (les parties imaginaire et réelles). Afin de faciliter le traitement des données ultérieurement, on peut intégrer dans le fichier de mesure les paramètres d'acquisition et les caractéristiques de l'échantillon. Ainsi, avant de lancer le programme d'acquisition, on renseigne le fichier avec le type du matériau étudié, sa permittivité et son épaisseur. Ces constantes seront nécessaires lors du traitement mathématique des données.

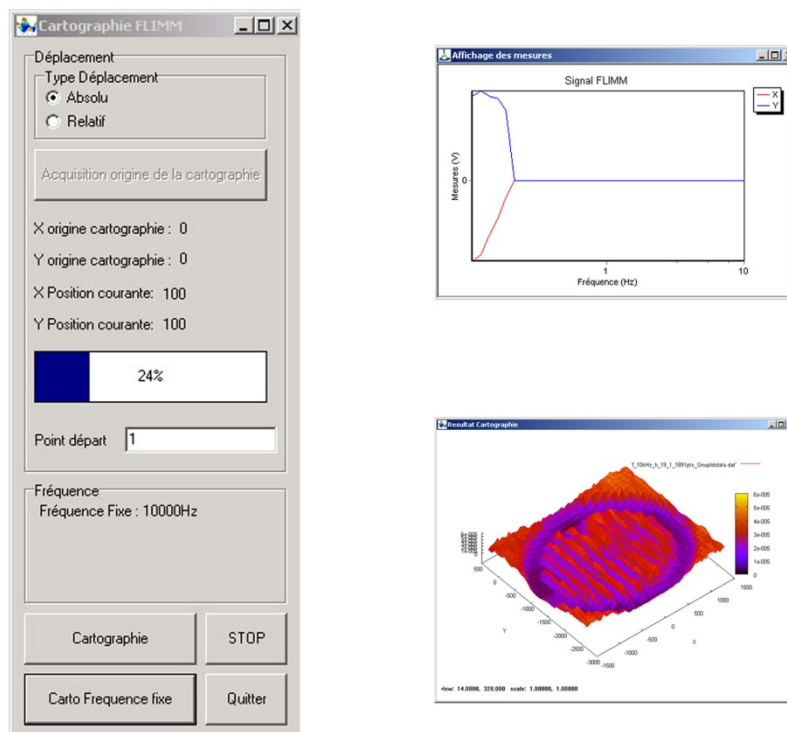


Figure 2.7. Interface du programme d'acquisition

## 2.9. Perspectives de développement et conclusions

Depuis son implantation dans notre équipe, la méthode FLIMM n'a cessé d'évoluer et les différentes études et recherches menées ces dernières années ont permis d'en faire une des meilleures méthodes de mesure de charge d'espace ou de polarisation compte tenu de sa très bonne résolution latérale et en profondeur. Afin de la rendre plus puissante et fiable, de

nombreuses avancées, par exemple les mesures sous tension continu et la nouvelle stratégie de mesure, ont été apportées.

Le développement de la méthode FLIMM sous champ électrique continu est d'une grande importance pour nos futures études, car il permet à la fois d'effectuer des mesures des charges d'espace dans des conditions proches des conditions industrielles et de calibrer le gradient thermique qui se diffuse dans le matériau.

La nouvelle stratégie de mesure permet de choisir la zone d'étude et de mesurer l'état de charge dans l'échantillon avec une haute résolution de l'ordre du micromètre dans un temps réduit. Un nouveau logiciel d'acquisition, avec son interface interactive, rend l'acquisition des données facile et fiable.

La méthode FLIMM offre l'avantage d'être relativement simple à mettre en œuvre avec l'équipement conventionnel du laboratoire. Elle permet une détection ponctuelle des charges d'espace et la réalisation de cartographie 3D de charges d'espace ou de polarisation avec une résolution latérale de quelques microns et une résolution spatiale dans le volume inférieure à 1  $\mu\text{m}$ .



## Chapitre 3. Modélisation de la température

### 3.1. Introduction

La détermination des distributions de charges d'espace ou de polarisation à partir des données expérimentales de la méthode FLIMM nécessite la modélisation du gradient thermique à l'intérieur du matériau. Plus la modélisation est proche des phénomènes physiques, plus les résultats obtenus se rapprochent d'une solution réelle.

C'est selon cette trame que va s'articuler ce chapitre. Dans un premier temps nous exposerons la modélisation de la température. La calibration du niveau de charge sera abordée dans une deuxième partie ainsi que la caractérisation de la diode laser (taille de spot du faisceau laser et sa puissance à la surface de l'échantillon). Le dernier paragraphe portera sur l'ablation des électrodes.

### 3.2. Modélisation de la température

En instrumentation FLIMM, il est impossible d'évaluer expérimentalement la variation de la température à l'intérieur du matériau. Ainsi, la nécessité de mettre au point un modèle mathématique cohérent pour estimer la température locale dans un échantillon s'est imposée.

Plusieurs modèles de température ont été développés dans notre équipe. Historiquement, le premier modèle mis au point était un modèle unidimensionnel considérant un apport de chaleur surfacique. Ce modèle nous donnait une estimation de la charge à l'intérieur de l'échantillon. Mais l'originalité de la méthode FLIMM, c'est la focalisation du

faisceau laser qui permet de détecter point par point une distribution de charges et de réaliser ainsi une cartographie 3D. Le développement d'un nouveau modèle tenant compte d'une propagation multidimensionnelle du gradient thermique s'est donc avéré nécessaire. Il s'agit d'un modèle tridimensionnel analytique de la température avec apport de chaleur qui a été le sujet d'une thèse de doctorat dans notre équipe <sup>[MOU 00]</sup>.

En outre, les échantillons mesurés étant généralement thermiquement et optiquement mince, il est donc indispensable de tenir compte de l'environnement thermique de l'échantillon dans la cellule de mesure ainsi que de l'absorption du faisceau par les différents milieux. Ceci nous conduira à une modélisation à quatre couches en une dimension qui sera utilisée pour la détermination du profil de la charge d'espace en profondeur, mais afin d'étudier des systèmes plus complexes ou des échantillons multicouches dans de futures études, un modèle 1D multicouches sera adopté. Pour les cartographies, nous avons développé un modèle en trois dimensions multicouches par éléments finis prenant en compte son environnement thermique au sein de la cellule.

### 3.2.1. Equation générale de la chaleur

Pour un milieu homogène, isotrope dont les coefficients ne dépendent pas de la chaleur, l'expression de la température en tout point localisé par son vecteur position  $\vec{r}$  est donné par l'équation de diffusion de la chaleur :

$$\Delta T(\vec{r}, t) - \frac{1}{D_t} \frac{\partial T(\vec{r}, t)}{\partial t} = - \frac{Q(\vec{r}, t)}{\chi} \quad [3.1]$$

$Q(\vec{r}, t)$  modélise l'apport de chaleur volumique.

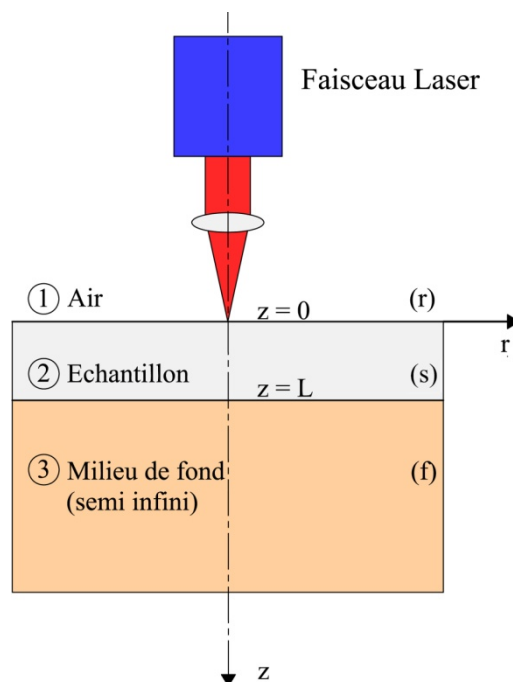
$\chi$  est la conductivité thermique (W/m/K),  $C_p$  la chaleur spécifique (J/kg°C),  $\rho$  la masse volumique (kg/cm<sup>3</sup>) et  $D_t$  la diffusivité thermique (m<sup>2</sup>/s) définie par  $D_t = \frac{\chi}{\rho C_p}$ .

En fonction des hypothèses faites sur l'apport de chaleur, de la géométrie de l'échantillon et des conditions aux limites, différentes expressions de la température peuvent être obtenues.

### 3.2.2. Modèle 3D trois couches de la température

#### 3.2.2.1. Géométrie du problème

On considère un échantillon à faces parallèles distantes d'une longueur  $L$  et aux dimensions latérales infinies. La face dite avant de cet échantillon reçoit l'impact d'un faisceau laser dont la répartition d'énergie est supposée gaussienne. Pour tenir compte des flux de chaleur sur les deux faces avant et arrière de l'échantillon, deux milieux de diffusion sont ajoutés de part et d'autre de l'échantillon.



**Figure 3.1.** *Modèle tridimensionnel avec apport volumique*

#### 3.2.2.2. Equation de chaleur

La distribution de la température dans le volume est définie par l'équation de conduction de chaleur. Dans le modèle à trois couches air (1) / échantillon (2) / milieu de fond (3) (figure 3.1) et en régime harmonique, elle prend trois formes différentes [MOU 97], [MOU 00].

$$\begin{cases} \nabla^2 T(x, y, z) - j \frac{\omega}{D_{ta}} T(x, y, z) = 0 & \text{air (a)} \\ \nabla^2 T(x, y, z) - j \frac{\omega}{D_{ts}} T(x, y, z) = -\frac{1}{\chi_s} Q(x, y, z) & \text{échantillon (s)} \\ \nabla^2 T(x, y, z) - j \frac{\omega}{D_{tf}} T(x, y, z) = 0 & \text{fond (f)} \end{cases} \quad [3.2]$$

avec  $D_{ti}$  diffusivité thermique du milieu  $i$ ,  $\chi_i$  conductivité thermique du milieu  $i$  et  $x, y, z$  les coordonnées du point où la température est calculée.

Les conditions de continuité de la température et du flux de chaleur aux interfaces imposent les conditions aux limites suivantes :

$$\begin{cases} T_a(z=0) = T_s(z=0) \\ T_s(z=L) = T_f(z=L) \\ -\chi_a \frac{dT_a}{dz} \Big|_{z=0} = -\chi_s \frac{dT_s}{dz} \Big|_{z=0} \\ -\chi_s \frac{dT_s}{dz} \Big|_{z=L} = -\chi_f \frac{dT_f}{dz} \Big|_{z=L} \end{cases} \quad [3.3]$$

### 3.2.2.3. Modélisation de la source de chaleur

Soit  $\Phi_0$  le flux surfacique du faisceau laser incident à l'interface air / échantillon. Il représente la puissance par unité de surface du faisceau laser incident et a pour expression [AUS 89], [JAC 80] :

$$\Phi_0 = \frac{P}{2\pi r_0^2} e^{-\left(\frac{r}{r_0}\right)^2} e^{j\omega t} \quad [3.4]$$

où  $P$  (W) est la puissance de la diode laser et  $r_0$  (m) est le rayon du faisceau laser à  $1/e^2$ .

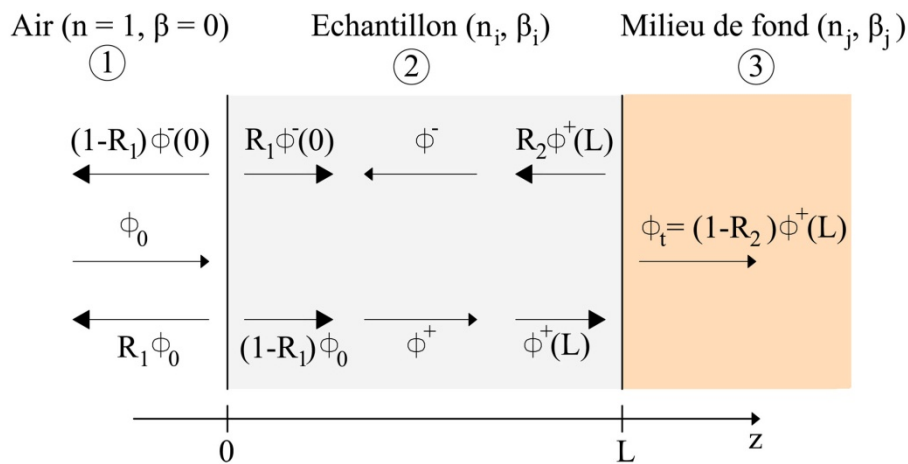


Figure 3.2. Modélisation de la source de chaleur

Au niveau de l'interface air / échantillon, une partie de l'énergie du faisceau est réfléchi. La partie transmise se propage en subissant une atténuation jusqu'à l'interface entre échantillon / milieu de fond. Une partie de cette énergie est transmise au dernier milieu, la partie réfléchi se propage de nouveau jusqu'à la première interface en subissant une atténuation et ainsi de suite.

Chaque milieu est caractérisé par son indice optique complexe défini par :

$$\tilde{n}_i = n_i - jk_i \quad [3.5]$$

où  $n_i$  est l'indice de réfraction, lié à la vitesse de propagation de l'onde dans le milieu considéré,  $k_i$  l'indice d'extinction décrivant l'atténuation de l'onde lors de cette propagation. .

Au niveau d'une interface, la propagation d'énergie réfléchi est définie par la réflectivité spéculaire  $R_{ij}$  :

$$R_{ij} = \frac{(n_i - n_j)^2 + (k_i - k_j)^2}{(n_i + n_j)^2 + (k_i + k_j)^2} \quad [3.6]$$

L'atténuation au cours de la propagation est définie par  $\beta_\lambda$ , le coefficient spectral d'absorption, donné par :

$$\beta_\lambda = \frac{4\pi k_i}{\lambda} \quad [3.7]$$

avec  $\lambda$  est la longueur d'onde du faisceau.

Au sein de l'échantillon, il existe deux flux de lumière  $\phi^+$  et  $\phi^-$ , qui se propage dans deux directions opposées. Ces deux flux vérifient les équations différentielles suivantes :

$$\begin{cases} \frac{d\phi^+(z)}{dz} + \beta_\lambda \phi^+(z) = 0 \\ -\frac{d\phi^-(z)}{dz} + \beta_\lambda \phi^-(z) = 0 \end{cases} \quad [3.8]$$

Ces équations différentielles ont pour solutions :

$$\begin{cases} \phi^+(z) = Ne^{-\beta_\lambda z} \\ \phi^-(z) = Me^{\beta_\lambda z} \end{cases} \quad [3.9]$$

Un bilan des flux au niveau des interfaces permet d'établir les conditions aux limites, donnant ainsi les constantes d'intégration  $M$  et  $N$ .

$$\begin{cases} \phi^+(0) = (1 - R_1)\phi_0 + R_1\phi^-(0) \\ \phi^-(L) = R_2\phi^+(L) \end{cases} \quad [3.10]$$

d'où :

$$\begin{cases} N = \frac{1 - R_1}{1 - R_1 R_2 e^{-2\beta_\lambda L}} \phi_0 \\ M = \frac{(1 - R_1)R_2}{1 - R_1 R_2 e^{-2\beta_\lambda L}} \phi_0 e^{-2\beta_\lambda L} \end{cases} \quad [3.11]$$

La source de chaleur est générée par le faisceau laser incident dans le milieu s'exprime comme la divergence du flux radiatif créé en chaque point du matériau :

$$Q(z) = \frac{d\phi^-(z)}{dz} - \frac{d\phi^+(z)}{dz} = \beta_\lambda (Ne^{-\beta_\lambda z} + Me^{\beta_\lambda z}) \quad [3.12]$$

Ce qui donne :

$$Q(z) = \frac{\beta_\lambda P e^{-\left(\frac{r}{r_0}\right)^2} e^{j\omega t}}{2\pi r_0^2} \left[ \frac{(1 - R_1)e^{-\beta_\lambda z} + (1 - R_1)R_2 e^{-2\beta_\lambda L} e^{\beta_\lambda z}}{1 - R_1 R_2 e^{-2\beta_\lambda L}} \right] \quad [3.13]$$

### 3.2.2.4. Résolution

La méthode de résolution des équations est basée sur l'utilisation des transformées de Fourier. On effectue une double transformée de Fourier de l'équation de conduction de la chaleur par rapport aux variables spatiales  $x$  et  $y$ . L'importante simplification qui en découle permet de résoudre dans le plan des transformées à l'aide de fonctions de Green. L'hypothèse de milieux thermiquement épais autour de l'échantillon aboutit à une expression de la chaleur simple dans le plan de Fourier. Le retour dans le plan réel est effectué à l'aide d'un logiciel de calcul numérique permettant d'exploiter au mieux les résultats obtenus.

L'expression de la température dans le plan réel s'exprime alors <sup>[MOU 97], [MOU 00]</sup> :

$$T(r, z) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{k=0}^{\infty} \int_{\eta=0}^{2\pi} \tilde{T}(k) e^{jkr \cos \eta} k dk d\eta \quad [3.14]$$

où 
$$\tilde{T}(k) = \frac{\tilde{S}_0(k)}{\delta_S^2 - \beta_\lambda^2} \left[ \frac{\beta_\lambda}{\delta_S} e^{-\delta_S z} - e^{-\beta_\lambda z} \right]$$

avec  $k^2 = m^2 + n^2 = Q$ ,  $\tilde{S}_0(k) = -\frac{2}{\chi \pi^2} P_0 (1 - R) \beta_\lambda e^{-a^2 k^2}$  et  $\delta_S = a + jb$

Où 
$$a = \sqrt{\frac{Q + \sqrt{Q^2 + 4\Omega^2}}{2}}, \quad b = \sqrt{\frac{-Q + \sqrt{Q^2 + 4\Omega^2}}{2}} \quad \text{et} \quad \Omega = \frac{\omega}{2D_t}$$

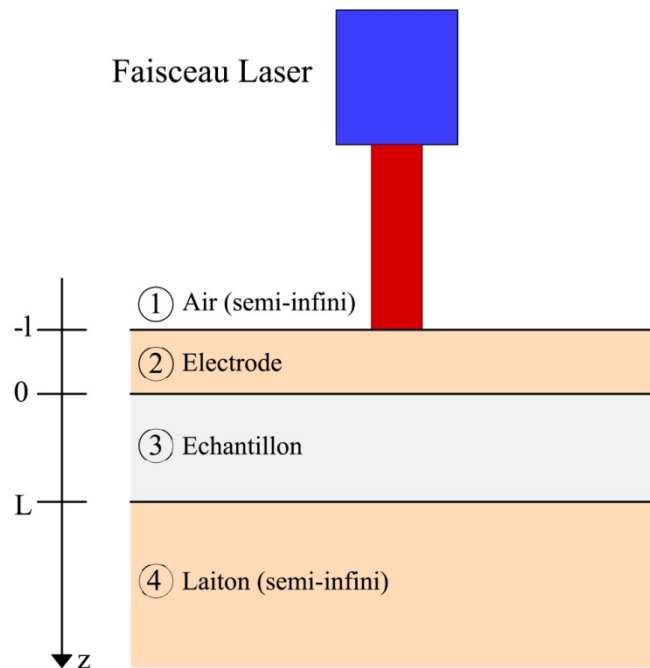
### 3.2.3. Modèle 1D quatre couches

Le modèle 1D quatre couches a été réalisé suite aux améliorations apportées à la cellule de mesure <sup>[PET 04b]</sup>, la superposition d'une plaquette de verre par dessus l'échantillon modifiant les conditions aux limites et entraînant une modification dans la propagation de la température. Ainsi, le modèle 1D quatre couches tient compte de la propagation de la chaleur en fonction des caractéristiques thermiques de chaque milieu composant le système de mesure.

### 3.2.3.1. Géométrie du problème

On considère une association de milieu à faces parallèles aux dimensions latérales infinies. La face dite avant de l'électrode reçoit l'impact d'un faisceau laser dont les dimensions sont grandes vis-à-vis de l'épaisseur de l'échantillon. La propagation se fait suivant l'axe  $z$  du faisceau incident (figure 3.3).

Chaque milieu reçoit un apport de chaleur en fonction des indices optiques complexes.



**Figure 3.3.** *Modèle unidimensionnel quatre couches*

### 3.2.3.2. Equations de la chaleur

La distribution de la température dans le modèle est définie par l'équation de conduction de la chaleur. Dans notre modèle à quatre couches (air, électrode supérieure, échantillon, électrode inférieure) <sup>[MAD 89]</sup>, on obtient dans chaque milieu :



$$\left\{ \begin{array}{ll} \frac{d^2 T_1(z)}{d^2 z} - \delta_1^2 T_1(z) = 0 & \text{air (1)} \\ \frac{d^2 T_2(z)}{d^2 z} - \delta_2^2 T_2(z) = -\frac{1}{\chi_2} Q_2(z) & \text{électrode supérieure (2)} \\ \frac{d^2 T_3(z)}{d^2 z} - \delta_3^2 T_3(z) = -\frac{1}{\chi_3} Q_3(z) & \text{échantillon (3)} \\ \frac{d^2 T_4(z)}{d^2 z} - \delta_4^2 T_4(z) = -\frac{1}{\chi_4} Q_4(z) & \text{électrode inférieure (4)} \end{array} \right. \quad [3.15]$$

avec  $\delta_i = j \frac{\omega}{D_{ti}}$ ,  $i = (1, \dots, 4)$ ,  $j^2 = -1$ .

Les conditions de continuité de la température et du flux de chaleur aux interfaces imposent les conditions aux limites suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} T_1(z = -\infty) = 0 \\ T_1(z = -l) = T_2(z = -l) \\ T_2(z = 0) = T_3(z = 0) \\ T_3(z = L) = T_4(z = L) \\ T_4(z = +\infty) = 0 \\ -\chi_1 \frac{dT_1}{dz} \Big|_{z=-l} = -\chi_2 \frac{dT_2}{dz} \Big|_{z=-l} \\ -\chi_2 \frac{dT_2}{dz} \Big|_{z=0} = -\chi_3 \frac{dT_3}{dz} \Big|_{z=0} \\ -\chi_3 \frac{dT_3}{dz} \Big|_{z=L} = -\chi_4 \frac{dT_4}{dz} \Big|_{z=L} \end{array} \right. \quad [3.16]$$

### 3.2.3.3. Modélisation des sources de chaleur

La source de chaleur dans le modèle quatre couches peut être modélisée à partir du schéma suivant :

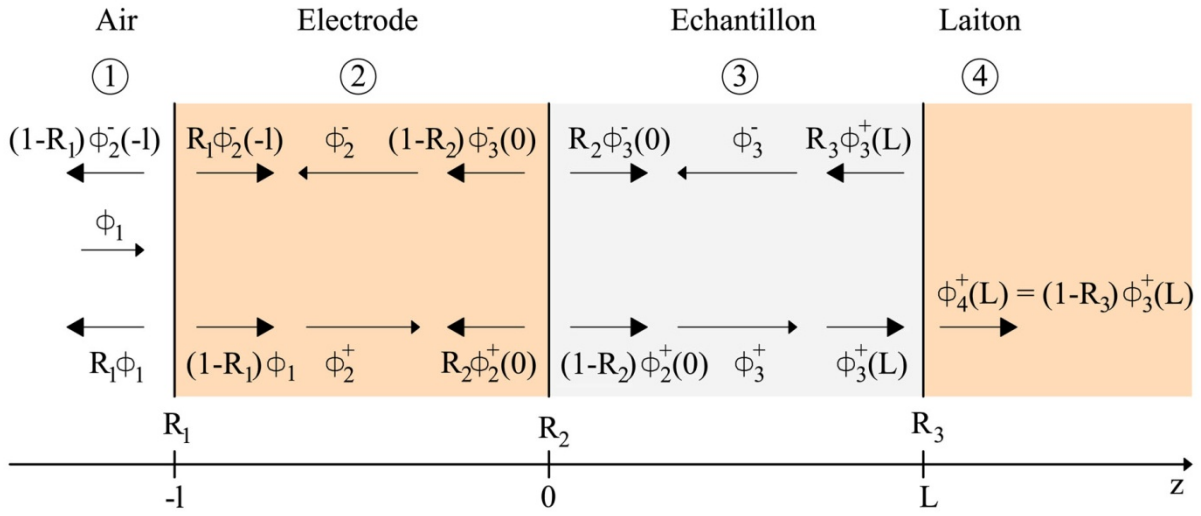


Figure 3.4. Modélisation de la source de chaleur pour quatre couches

Soient  $R_1$ ,  $R_2$  et  $R_3$  les réflectivités spéculaires au niveau de chacune interface,  $\beta_{\lambda 1}$ ,  $\beta_{\lambda 2}$ ,  $\beta_{\lambda 3}$  et  $\beta_{\lambda 4}$  les coefficients spectraux d'absorption.

Les flux de transmis  $\phi_i^+(z)$  et réfléchi  $\phi_i^-(z)$  ( $i=1,4$  est l'indice de la couche), incluant les réflexions multiples aux interfaces, vérifient les équations différentielles suivantes [AUS 89] :

$$\begin{cases} \frac{d\phi_i^+(z)}{dz} + \beta_{\lambda i}\phi_i^+(z) = 0 \\ -\frac{d\phi_i^-(z)}{dz} + \beta_{\lambda i}\phi_i^-(z) = 0 \end{cases} \quad [3.17]$$

avec les conditions aux limites :

$$\begin{cases} \phi_2^+(-l) = (1 - R_1)\phi_1 + R_1\phi_2^- \\ \phi_2^-(0) = R_2\phi_2^+(0) + (1 - R_2)\phi_3^-(0) \\ (1 - R_2)\phi_2^+(0) = \phi_3^+(0) - R_2\phi_3^-(0) \\ \phi_3^-(L) = R_3\phi_3^+(L) \\ (1 - R_3)\phi_3^+(L) = \phi_4^+(L) \end{cases} \quad [3.18]$$

Les équations différentielles dans chaque milieu ont pour solutions :

$$\begin{cases} \phi_i^+(z)|_{i=2,4} = N_i e^{-\beta_{\lambda i} z} \\ \phi_i^-(z)|_{i=2,3} = M_i e^{\beta_{\lambda i} z} \end{cases} \quad [3.19]$$

En tenant compte des conditions aux limites [3.18], nous obtenons les constantes d'intégration :

$$\begin{cases} N_2 = \frac{(1 - R_1)\phi_1}{1 - R_2 e^{-2\beta_{\lambda_2} l} \left[ R_2 + R_3 \frac{(1 - R_3)(1 - R_2)}{1 - R_3^2 e^{-2\beta_{\lambda_3} L}} e^{-2\beta_{\lambda_3} L} \right]} \\ M_2 = \left[ R_2 + R_3 \frac{(1 - R_3)(1 - R_2)}{1 - R_3^2 e^{-2\beta_{\lambda_3} L}} e^{-2\beta_{\lambda_3} L} \right] N_2 e^{-2\beta_{\lambda_2} l} \end{cases} \quad [3.20]$$

$$\begin{cases} N_3 = \frac{(1 - R_2)}{1 - R_3^2 e^{-2\beta_{\lambda_3} L}} N_2 e^{-2\beta_{\lambda_2} l} \\ M_3 = \frac{R_3(1 - R_2) e^{-2\beta_{\lambda_3} L}}{1 - R_3^2 e^{-2\beta_{\lambda_3} L}} N_2 e^{-2\beta_{\lambda_2} l} \end{cases} \quad [3.21]$$

$$N_4 = \frac{(1 - R_2)(1 - R_3) e^{-\beta_{\lambda_3} L}}{1 - R_3^2 e^{-2\beta_{\lambda_3} L}} N_2 e^{-2\beta_{\lambda_2} l} \quad [3.22]$$

La source de chaleur générée par le faisceau laser incident dans le milieu  $i$  s'exprime comme la divergence du flux radiatif qu'il crée en chaque point du matériau :

$$Q_i(z)|_{i=2,4} = -\frac{d\phi_i^+(z)}{dz} + \frac{d\phi_i^-(z)}{dz} \quad [3.23]$$

Nous obtenons ainsi les trois sources de chaleur pour les 3 milieux :

$$Q_2(z) = N_2 \beta_{\lambda_2} \left[ \left\{ R_2 + R_3 \frac{(1 - R_3)(1 - R_2)}{1 - R_3^2 e^{-2\beta_{\lambda_3} L}} e^{-2\beta_{\lambda_3} L} \right\} e^{\beta_{\lambda_2}(z+l)} + e^{\beta_{\lambda_2}(z+l)} \right] \quad [3.24]$$

$$Q_3(z) = N_2 \beta_{\lambda_3} \frac{(1 - R_2) e^{-\beta_{\lambda_2} l}}{1 - R_3^2 e^{-2\beta_{\lambda_3} L}} \left[ R_3 e^{-2\beta_{\lambda_3} L} e^{\beta_{\lambda_3} z} + e^{-\beta_{\lambda_3} z} \right] \quad [3.25]$$

$$Q_4(z) = N_2 \beta_{\lambda_4} \frac{(1 - R_3)(1 - R_2) e^{-\beta_{\lambda_2} l}}{1 - R_3^2 e^{-2\beta_{\lambda_3} L}} e^{-2\beta_{\lambda_3} L} e^{-2\beta_{\lambda_4}(z-L)} \quad [3.26]$$

#### 3.2.3.4. Expression de la température

La résolution de l'équation de la chaleur dans chaque milieu donne les équations suivantes :

$$\begin{cases} T_1(z) = A_1 e^{\delta_1 z} + B_1 e^{-\delta_1 z} \\ T_2(z) = A_2 e^{\delta_2 z} + B_2 e^{-\delta_2 z} + C_2 (e^{-\beta_{\lambda_2}(z+l)} + \alpha_1 e^{-2\beta_{\lambda_2} l} e^{\beta_{\lambda_2}(z+l)}) \\ T_3(z) = A_3 e^{\delta_3 z} + B_3 e^{-\delta_3 z} + C_3 (e^{-\beta_{\lambda_3} z} + \alpha_2 e^{\beta_{\lambda_3}}) \\ T_4(z) = A_4 e^{\delta_4 z} + B_4 e^{-\delta_4 z} + C_4 e^{-\beta_{\lambda_4}(z-L)} \end{cases} \quad [3.27]$$

Les différentes constantes sont déterminées à partir des équations de continuité de température et de flux au niveau des interfaces <sup>[PET 04b]</sup>. Par rapport au modèle tridimensionnel volumique, caractérisé par une difficulté mathématique de résolution de l'équation de chaleur et de temps de calcul prohibitifs, le modèle quatre couches avec un apport volumique présente une résolution mathématique analytique, et par conséquent des simulations plus rapides.

### 3.2.4. *Modèle 1D multicouches*

Afin d'étudier les systèmes plus complexes par exemple des échantillons multicouches dans de futures études, un nouveau modèle 1D multicouches a été développé. Ce modèle rend le calcul plus souple et flexible. Il permet d'une part la prise en compte plus fine de l'environnement thermique de l'échantillon et une meilleure évaluation de la source de chaleur dans les différentes couches d'autre part.

#### 3.2.4.1. *Nouvelle méthode de calcul*

Lorsqu'on passe à un modèle à plus de quatre couches, on s'est rendu compte que les expressions des sources de chaleurs deviennent de plus en plus encombrantes et la résolution des équations de chaleur donne un calcul très lourd et compliqué compte tenu de l'augmentation du nombre des variables.

Pour résoudre ce problème, une nouvelle stratégie de calcul d'apport de chaleur et de température sera adoptée. En se basant sur la théorie des quadripôles <sup>[DOR 96], [RAT 02]</sup>, cette méthode nous permet de rendre la résolution plus flexible. Nous considérons que chaque milieu est caractérisé par une matrice appropriée (de préférence une matrice chaîne permettant de lier les flux de lumière à l'entrée aux mêmes grandeurs définies à la sortie) dont les éléments dépendent des caractéristiques optiques de chaque milieu correspondant. Ces matrices permettent d'exprimer les flux de lumière entre les différentes couches en

fonction du flux incident  $\phi_0$  et de donner une expression des sources de chaleur simple et identique pour tous les milieux.

Après avoir déterminé les sources de chaleur, nous pouvons également appliquer la nouvelle méthode pour calculer les températures et les flux de chaleur dans chaque milieu. Ainsi, la solution théorique de la température passerait par la détermination des paramètres des matrices chaînes.

On va dans un premier temps déterminer la source de chaleur ainsi que la température dans une couche  $i$ .

### 3.2.4.2. Calcul de la source de chaleur dans une couche $i$

Le calcul de la source de chaleur pour ce modèle peut être schématisé comme suit :

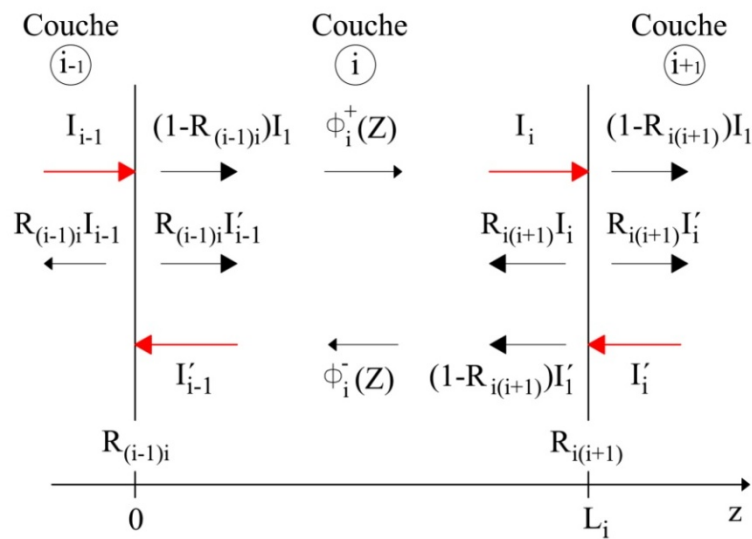


Figure 3.5. Définition des flux de lumière à l'entrée et à la sortie de la couche  $i$

Soit  $R_{i(i+1)}$  coefficient de la réflectivité spéculaire de l'interface couche  $i$  et couche  $i + 1$ ,  $L_i$  épaisseur de la couche  $i$ .

On peut alors montrer que les flux de lumière à l'entrée ( $I_{i-1}$  et  $I'_{i-1}$ ) et à la sortie ( $I_i$  et  $I'_i$ ) de la couche  $i$  sont liés par la relation matricielle suivante :

$$\begin{bmatrix} I_{i-1} \\ I'_{i-1} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} B_{i11} & B_{i12} \\ B_{i21} & B_{i22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} I_i \\ I'_i \end{bmatrix} \quad [3.28]$$

avec  $[B_i]$  la matrice chaîne.

Les flux transmis  $\phi_i^+(z)$  et réfléchi  $\phi_i^-(z)$  ( $i$  est l'indice de la couche) sont donnés par :

$$\begin{cases} \phi_i^+(z) = N_i e^{-\beta\lambda iz} \\ \phi_i^-(z) = M_i e^{\beta\lambda iz} \end{cases} \quad [3.29]$$

Les conditions aux limites sont :

$$\begin{cases} I'_{i-1} = \phi_i^-(0) \\ I_i = \phi_i^+(L_i) \\ \phi_i^+(0) = (1 - R_{(i-1)i})I_{i-1} + R_{(i-1)i}I'_{i-1} \\ \phi_i^-(L_i) = R_{i(i+1)}I_i + (1 - R_{i(i+1)})I'_i \end{cases} \quad [3.30]$$

En remplaçant [3.29] dans [3.30], on obtient les expressions des constantes  $N_i$  et  $M_i$  suivantes :

$$\begin{cases} M_i = \frac{R_{i(i+1)}(R_{(i-1)i} - 1)}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta\lambda Li}} I_{i-1} + \frac{(R_{i(i+1)} - 1)e^{\beta\lambda Li}}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta\lambda Li}} I'_i \\ N_i = \frac{(R_{(i-1)i} - 1)e^{2\beta\lambda Li}}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta\lambda Li}} I_{i-1} + \frac{R_{(i-1)i}(R_{i(i+1)} - 1)e^{\beta\lambda Li}}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta\lambda Li}} I'_i \end{cases} \quad [3.31]$$

$$\text{D'où} \quad \begin{cases} I'_{i-1} = M_i = \frac{R_{i(i+1)}(R_{(i-1)i} - 1)}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta\lambda Li}} I_{i-1} + \frac{(R_{i(i+1)} - 1)e^{\beta\lambda Li}}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta\lambda Li}} I'_i \\ I_i = N_i e^{-\beta\lambda Li} = \frac{(R_{(i-1)i} - 1)e^{\beta\lambda Li}}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta\lambda Li}} I_{i-1} + \frac{R_{(i-1)i}(R_{i(i+1)} - 1)}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta\lambda Li}} I'_i \end{cases} \quad [3.32]$$

$$\text{Soit} \quad \begin{cases} I'_{i-1} = a_i I_{i-1} + b_i I'_i \\ I_i = c_i I_{i-1} + d_i I'_i \end{cases} \quad [3.33]$$

$$\text{Avec} \quad \begin{cases} a_i = \frac{R_{i(i+1)}(R_{(i-1)i} - 1)}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta\lambda Li}}, & b_i = \frac{(R_{i(i+1)} - 1)e^{\beta\lambda Li}}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta\lambda Li}} \\ c_i = \frac{(R_{(i-1)i} - 1)e^{\beta\lambda Li}}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta\lambda Li}}, & d_i = \frac{R_{(i-1)i}(R_{i(i+1)} - 1)}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta\lambda Li}} \end{cases}$$

A partir de [3.28] et [3.33], les coefficients de la matrice  $[B_i]$  s'écrivent :

$$\begin{cases} B_{i11} = \frac{1}{c_i} = \frac{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)}e^{-2\beta\lambda_i L_i} - 1}{(R_{(i-1)i} - 1)e^{-\beta\lambda_i L_i}} \\ B_{i12} = \frac{-d_i}{c_i} = \frac{-R_{(i-1)i}(R_{i(i+1)} - 1)e^{-\beta\lambda_i L_i}}{R_{(i-1)i} - 1} \\ B_{i21} = \frac{a_i}{c_i} = R_{i(i+1)}e^{-\beta\lambda_i L_i} \\ B_{i22} = b_i - \frac{a_i d_i}{c_i} = (1 - R_{i(i+1)})e^{-\beta\lambda_i L_i} \end{cases} \quad [3.34]$$

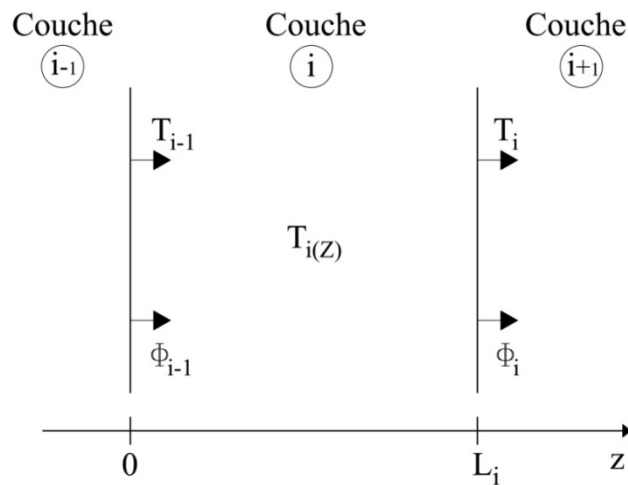
Ainsi, l'expression générale de la source de chaleur dans la couche  $i$  est donnée par :

$$Q_i(z) = \frac{d\phi_i^-(z)}{dz} - \frac{d\phi_i^+(z)}{dz}$$

Soit  $Q_i(z) = \beta\lambda_i(N_i e^{-\beta\lambda_i z} + M_i e^{\beta\lambda_i z})$  [3.35]

### 3.2.4.3. Calcul de la température dans une couche $i$

Après avoir déterminé les sources de chaleur, nous pouvons également appliquer la nouvelle méthode pour calculer les températures et les flux de chaleur dans chaque couche.



**Figure 3.6.** Définition de la température et du flux de chaleur à l'entrée et à la sortie de la couche  $i$

La température et le flux de chaleur à l'entrée ( $T_{i-1}$  et  $\Phi_{i-1}$ ) et à la sortie ( $T_i$  et  $\Phi_i$ ) de la couche  $i$  sont liés par la relation matricielle suivante :

$$\begin{bmatrix} T_{i-1} \\ \Phi_{i-1} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{i11} & A_{i12} \\ A_{i21} & A_{i22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} T_i \\ \Phi_i \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} T_{(i-1)0} \\ \Phi_{(i-1)0} \end{bmatrix} \quad [3.36]$$

avec  $[A_i]$  est la matrice chaîne,  $T_{(i-1)0}$  et  $\Phi_{(i-1)0}$  les constantes.

L'équation de chaleur d'une couche  $i$  est donnée par l'expression suivante :

$$\frac{d^2 T_i(z)}{dz^2} - \delta_i^2 T_i(z) = -\frac{1}{\chi_i} Q_i(z) \quad [3.37]$$

La résolution de cette équation de chaleur donne une expression de la température de forme générale comme suit :

$$T_i(z) = A_i e^{-\delta_i z} + B_i e^{\delta_i z} + C_i e^{-\beta_{\lambda i} z} + D_i e^{\beta_{\lambda i} z} \quad [3.38]$$

En remplaçant [3.35] et [3.38] dans [3.37], on trouve :

$$\begin{cases} C_i = \frac{\beta_{\lambda i} N_i}{\chi_i (\delta_i^2 - \beta_{\lambda i}^2)} \\ D_i = \frac{\beta_{\lambda i} M_i}{\chi_i (\delta_i^2 - \beta_{\lambda i}^2)} \end{cases} \quad [3.39]$$

Si on dispose d'un milieu où le coefficient d'absorption  $\beta_{\lambda i}$  étant nul ( $Q_i(z) = 0$ ), l'expression de la température devient :

$$T_i(z) = A_i e^{-\delta_i z} + B_i e^{\delta_i z} \quad [3.40]$$

Les conditions de continuité de la température et du flux de chaleur aux interfaces imposent les conditions aux limites suivantes :

$$\begin{cases} T_{i-1}(0) = T_i(0) = T_{i-1} \\ T_i(L_i) = T_{i+1}(L_i) = T_i \\ \chi_{i-1} \frac{dT_{i-1}(z)}{dz} \Big|_{z=0} = \chi_i \frac{dT_i(z)}{dz} \Big|_{z=0} = \Phi_{i-1} \\ \chi_i \frac{dT_i(z)}{dz} \Big|_{z=L_i} = \chi_{i+1} \frac{dT_{i+1}(z)}{dz} \Big|_{z=L_i} = \Phi_i \end{cases} \quad [3.41]$$

A partir de [3.38] et [3.41], on a :

$$\begin{aligned} T_i &= T_i(L_i) = A_i e^{-\delta_i L_i} + B_i e^{\delta_i L_i} + C_i e^{-\beta_{\lambda i} L_i} + D_i e^{\beta_{\lambda i} L_i} \\ T_i &= A_i e^{-\delta_i L_i} + B_i e^{\delta_i L_i} + E_i \end{aligned} \quad [3.42]$$

avec  $E_i = C_i e^{-\beta_{\lambda i} L_i} + D_i e^{\beta_{\lambda i} L_i}$



$$\Phi_i = \chi_i \frac{dT_i(z)}{dz} = -\chi_i \delta_i A_i e^{-\delta_i L_i} + \chi_i \delta_i B_i e^{\delta_i L_i} - \chi_i \beta_{\lambda i} C_i e^{-\beta_{\lambda i} L_i} + \chi_i \beta_{\lambda i} D_i e^{\beta_{\lambda i} L_i}$$

$$\Phi_i = -\chi_i \delta_i A_i e^{-\delta_i L_i} + \chi_i \delta_i B_i e^{\delta_i L_i} + F_i \quad [3.43]$$

avec  $F_i = -\chi_i \beta_{\lambda i} C_i e^{-\beta_{\lambda i} L_i} + \chi_i \beta_{\lambda i} D_i e^{\beta_{\lambda i} L_i}$

A partir de [3.42] et [3.43], on trouve :

$$\begin{cases} A_i = \frac{e^{\delta_i L_i}}{2} T_i - \frac{e^{\delta_i L_i}}{2 \delta_i \chi_i} \Phi_i + \frac{e^{\delta_i L_i}}{2 \delta_i \chi_i} F_i - \frac{e^{\delta_i L_i}}{2} E_i \\ B_i = \frac{e^{-\delta_i L_i}}{2} T_i + \frac{e^{-\delta_i L_i}}{2 \delta_i \chi_i} \Phi_i - \frac{e^{-\delta_i L_i}}{2 \delta_i \chi_i} F_i - \frac{e^{-\delta_i L_i}}{2} E_i \end{cases} \quad [3.44]$$

D'autre part, on a :

$$T_{i-1} = T_i(0) = A_i + B_i + C_i + D_i \quad [3.45]$$

En remplaçant [3.44] dans [3.45], on obtient :

$$T_{i-1} = \left( \frac{e^{-\delta_i L_i} + e^{\delta_i L_i}}{2} \right) T_i + \left( \frac{e^{-\delta_i L_i} - e^{\delta_i L_i}}{2 \delta_i \chi_i} \right) \Phi_i + T_{(i-1)0} \quad [3.46]$$

avec  $T_{(i-1)0} = - \left( \frac{e^{-\delta_i L_i} - e^{\delta_i L_i}}{2 \delta_i \chi_i} \right) F_i - \left( \frac{e^{-\delta_i L_i} + e^{\delta_i L_i}}{2} \right) E_i + C_i + D_i$

$$\Phi_{i-1} = \chi_i \frac{dT_i(0)}{dz} = -\chi_i \delta_i A_i + \chi_i \delta_i B_i - \chi_i \beta_{\lambda i} C_i + \chi_i \beta_{\lambda i} D_i$$

soit  $\Phi_{i-1} = \chi_i \delta_i \left( \frac{e^{-\delta_i L_i} - e^{\delta_i L_i}}{2} \right) T_i + \left( \frac{e^{-\delta_i L_i} + e^{\delta_i L_i}}{2} \right) \Phi_i + \Phi_{(i-1)0} \quad [3.47]$

avec  $\Phi_{(i-1)0} = - \left( \frac{e^{-\delta_i L_i} + e^{\delta_i L_i}}{2} \right) F_i - \chi_i \delta_i \left( \frac{e^{-\delta_i L_i} - e^{\delta_i L_i}}{2} \right) E_i - \chi_i \beta_{\lambda i} C_i + \chi_i \beta_{\lambda i} D_i$

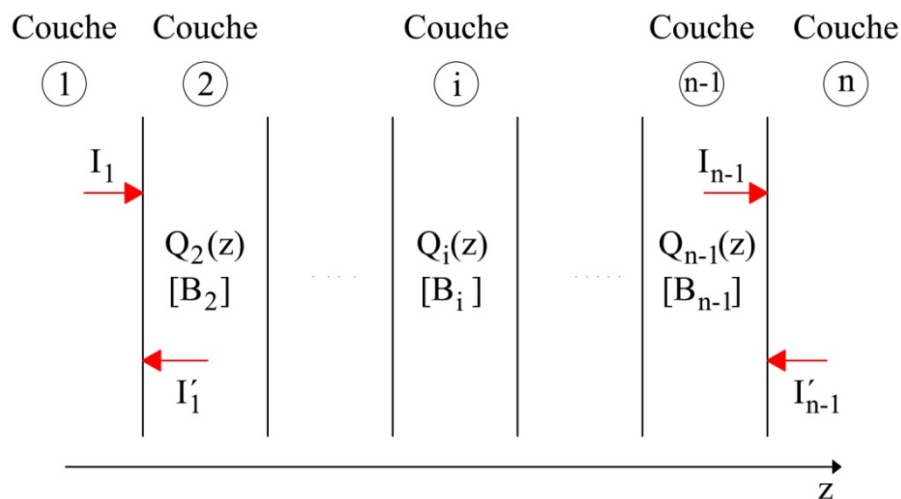
A partir de [3.36], [3.46] et [3.47], les coefficients de la matrices chaîne  $[A_i]$  sont donnés par :

$$\begin{cases} A_{i11} = \frac{e^{-\delta_i L_i} + e^{\delta_i L_i}}{2} \\ A_{i12} = \frac{e^{-\delta_i L_i} - e^{\delta_i L_i}}{2\delta_i \chi_i} \\ A_{i21} = \chi_i \delta_i \left( \frac{e^{-\delta_i L_i} - e^{\delta_i L_i}}{2} \right) \\ A_{i22} = \frac{e^{-\delta_i L_i} + e^{\delta_i L_i}}{2} \end{cases} \quad [3.48]$$

Cette matrice  $[A_i]$  caractérise les propriétés de conduction de la chaleur dans la couche  $i$  et de l'interface qui lui est associé, et facilite notablement le calcul récursif des répartitions de température et de la distribution du flux dans un système comportant  $n$  couches. Par exemple, pour établir un lien entre les grandeurs définies sur les faces supérieure et inférieure d'un bloc, il suffit de calculer la matrice chaîne complète du bloc en procédant par une multiplication adéquate des matrices chaînes élémentaires définie pour chacune des couches.

#### 3.2.4.4. Modèle 1D multicouches

On va traiter maintenant un système comportant  $n$  couches. La modélisation de la source de chaleur pour ce modèle peut être schématisée comme suit :



**Figure 3.7.** Définition des flux de lumière à l'entrée et à la sortie pour le modèle  $n$  couches

Les flux de lumière à l'entrée et à la sortie de chaque couche sont liés par la relation matricielle suivante :

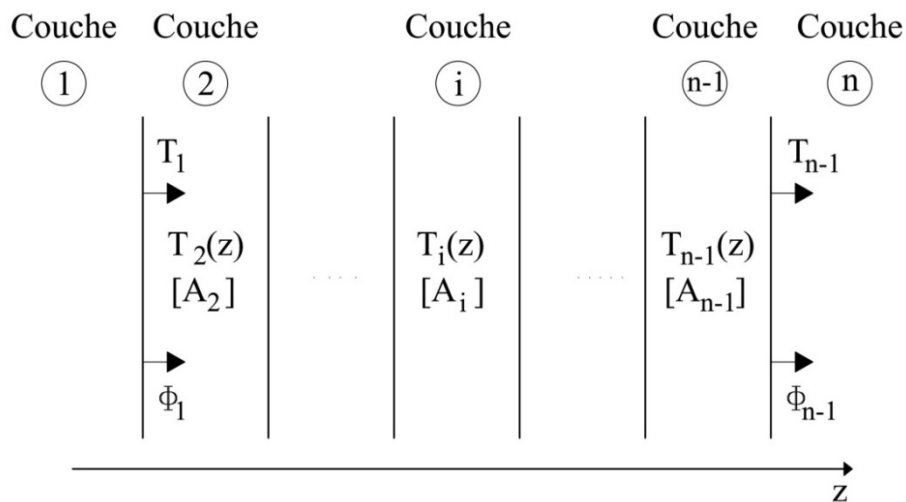
$$\begin{cases} \begin{bmatrix} I_1 \\ I'_1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} B_{211} & B_{212} \\ B_{221} & B_{222} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} I_2 \\ I'_2 \end{bmatrix} \\ \begin{bmatrix} I_{i-1} \\ I'_{i-1} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} B_{i11} & B_{i12} \\ B_{i21} & B_{i22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} I_i \\ I'_i \end{bmatrix} \\ \begin{bmatrix} I_{n-2} \\ I'_{n-2} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} B_{(n-1)11} & B_{(n-1)12} \\ B_{(n-1)21} & B_{(n-1)22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} I_{n-1} \\ I'_{n-1} \end{bmatrix} \end{cases} \quad [3.49]$$

D'où 
$$\begin{bmatrix} I_1 \\ I'_1 \end{bmatrix} = [B] \begin{bmatrix} I_{n-1} \\ I'_{n-1} \end{bmatrix} \quad [3.50]$$

Avec 
$$[B] = \prod_{i=2}^{n-1} [B_i]$$

La détermination de la matrice globale  $[B]$  permet d'exprimer tous les flux de lumière aux interfaces du modèle en fonction du flux incident  $I_1 = \phi_0$  seul en supposant que le flux  $I'_{n-1}$  est égal à zéro. Nous pouvons également calculer les sources de chaleur dans toutes les couches selon [3.35].

La modélisation de la température et du flux de chaleur sont représentés dans la figure 3.8.



**Figure 3.8.** Définition de la température et du flux de chaleur à l'entrée et à la sortie pour le modèle  $n$  couches

La température et le flux de chaleur à l'entrée et à la sortie sont liés par la relation matricielle suivante :

$$\begin{cases} \begin{bmatrix} T_1 \\ \Phi_1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{211} & A_{212} \\ A_{221} & A_{222} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} T_2 \\ \Phi_2 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} T_{10} \\ \Phi_{10} \end{bmatrix} = [A_2] \begin{bmatrix} T_2 \\ \Phi_2 \end{bmatrix} + [A_{10}] \\ \dots \\ \begin{bmatrix} T_{i-1} \\ \Phi_{i-1} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{i11} & A_{i12} \\ A_{i21} & A_{i22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} T_i \\ \Phi_i \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} T_{(i-1)0} \\ \Phi_{(i-1)0} \end{bmatrix} = [A_i] \begin{bmatrix} T_i \\ \Phi_i \end{bmatrix} + [A_{i0}] \\ \dots \\ \begin{bmatrix} T_{n-2} \\ \Phi_{n-2} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{(n-1)11} & A_{(n-1)12} \\ A_{(n-1)21} & A_{(n-1)22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} T_{n-1} \\ \Phi_{n-1} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} T_{(n-2)0} \\ \Phi_{(n-2)0} \end{bmatrix} = [A_{n-1}] \begin{bmatrix} T_{n-1} \\ \Phi_{n-1} \end{bmatrix} + [A_{(n-2)0}] \end{cases} \quad [3.51]$$

$$\text{D'où} \quad \begin{bmatrix} T_1 \\ \Phi_1 \end{bmatrix} = [A] \begin{bmatrix} T_{n-1} \\ \Phi_{n-1} \end{bmatrix} + [A_0] \quad [3.52]$$

$$\text{Avec} \quad \begin{cases} [A] = \prod_{i=2}^{n-1} [A_i] \\ [A_0] = \left( \prod_{i=2}^{n-2} [A_i] \right) [A_{(n-2)0}] + \left( \prod_{i=2}^{n-3} [A_i] \right) [A_{(n-3)0}] + \dots + [A_2][A_{20}] + [A_{10}] \end{cases}$$

D'autre part, on a :

$$\begin{cases} \Phi_1 = \chi_1 \left. \frac{dT_1(z)}{dz} \right|_{z=0} \\ \Phi_{n-1} = \chi_n \left. \frac{dT_n(z)}{dz} \right|_{z=0} \\ T_1(-\infty) = 0 \\ T_n(+\infty) = 0 \end{cases} \quad [3.53]$$

A partir de [3.52] et [3.53], nous pouvons déterminer tous les températures et les flux de chaleur aux interfaces ainsi que les coefficients  $A_i$  et  $B_i$  d'après [3.44]. Alors, l'expression de la température dans chaque couche est définie de la manière suivante :

$$T_i(z) = A_i e^{-\delta_i z} + B_i e^{\delta_i z} + C_i e^{-\beta_{\lambda_i} z} + D_i e^{\beta_{\lambda_i} z}, \quad i = 1, \dots, n \quad [3.54]$$

### 3.2.5. Modèle 1D six couches

Le système de mesure FLIMM classique se compose de six couches superposées. En outre, pour vérifier la fiabilité de la nouvelle méthode de calcul, nous avons mis au point un modèle 1D six couches.

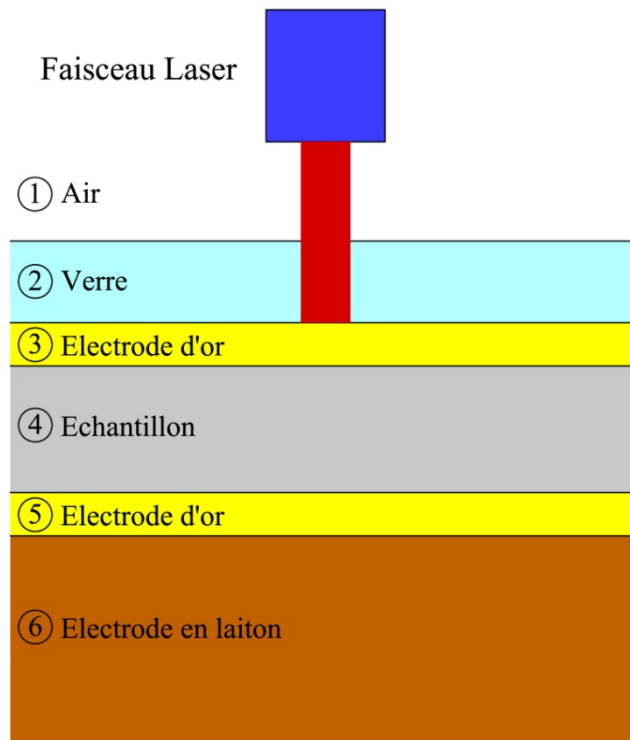


Figure 3.9. Modèle unidimensionnel six couches

La définition des flux de lumière à l'entrée et à la sortie est donnée par la figure 3.10.

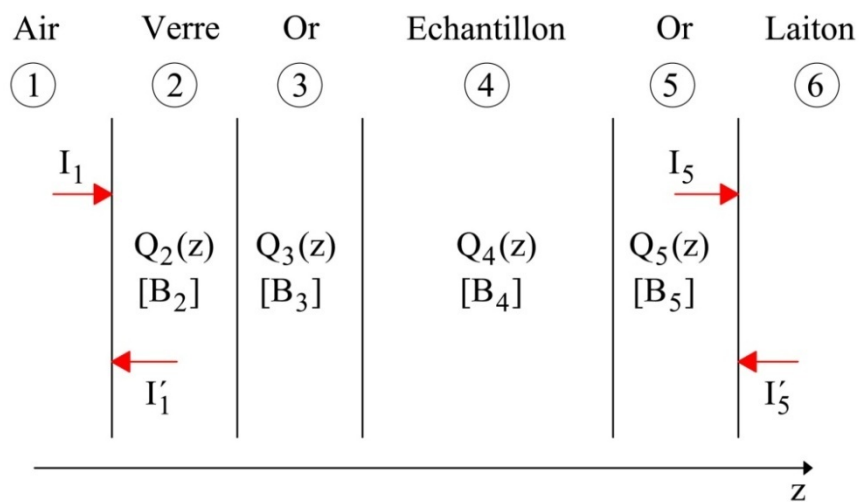


Figure 3.10. Définition des flux de lumière à l'entrée et à la sortie pour le modèle six couches

Les flux de lumière à l'entrée et à la sortie de chaque couche sont liés par la relation matricielle suivante :

$$\begin{bmatrix} I_1 \\ I'_1 \end{bmatrix} = [B] \begin{bmatrix} I_5 \\ I'_5 \end{bmatrix} \quad [3.55]$$

avec

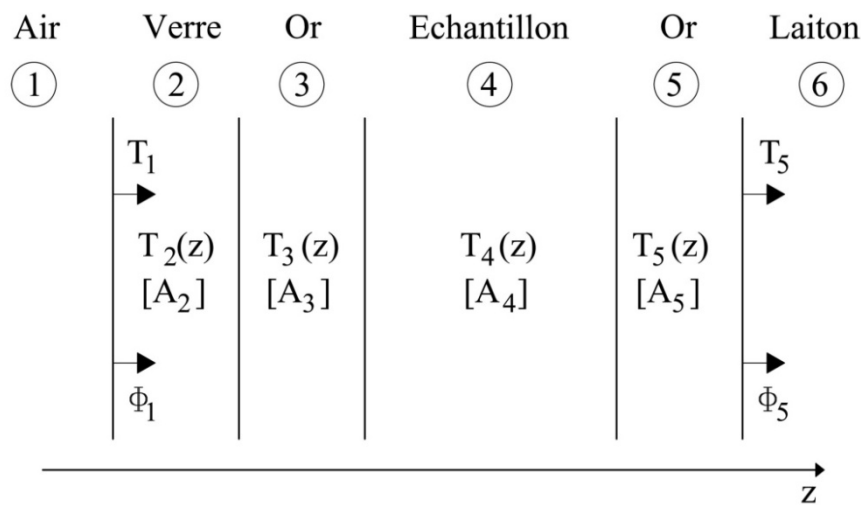
$$[B] = \prod_{i=2}^5 [B_i]$$

En supposant que le flux  $I'_5$  est égal à zéro, on peut déterminer tous les flux de lumière aux interfaces du modèle. L'expression des sources de chaleur dans chaque couche s'expriment :

$$\begin{cases} Q_2(z) = 0 \\ Q_i(z) = \beta_{\lambda i} (N_i e^{-\beta_{\lambda i} z} + M_i e^{\beta_{\lambda i} z}), \quad i = 3, \dots, 6 \end{cases} \quad [3.56]$$

Les matrices  $[B_i]$  et les constantes  $N_i, M_i$  sont reportées dans l'Annexe.

La modélisation de la température et du flux de chaleur sont représentés dans la figure 3.11.



**Figure 3.11.** Définition de la température et du flux de chaleur à l'entrée et à la sortie pour le modèle six couches

La température et le flux de chaleur à l'entrée et à la sortie sont liés par la relation matricielle suivante :

$$\begin{bmatrix} T_1 \\ \Phi_1 \end{bmatrix} = [A] \begin{bmatrix} T_5 \\ \Phi_5 \end{bmatrix} + [A_0] \quad [3.57]$$

$$\text{Avec } \begin{cases} [A] = \prod_{i=2}^5 [A_i] \\ [A_0] = \left( \prod_{i=2}^4 [A_i] \right) [A_{40}] + \left( \prod_{i=2}^3 [A_i] \right) [A_{30}] + [A_2][A_{20}] + [A_{10}] \end{cases}$$

D'autre part, on a :

$$\begin{cases} \Phi_1 = \chi_1 \left. \frac{dT_1(z)}{dz} \right|_{z=0} \\ \Phi_5 = \chi_6 \left. \frac{dT_6(z)}{dz} \right|_{z=0} \\ T_1(-\infty) = 0 \\ T_6(+\infty) = 0 \end{cases} \quad [3.58]$$

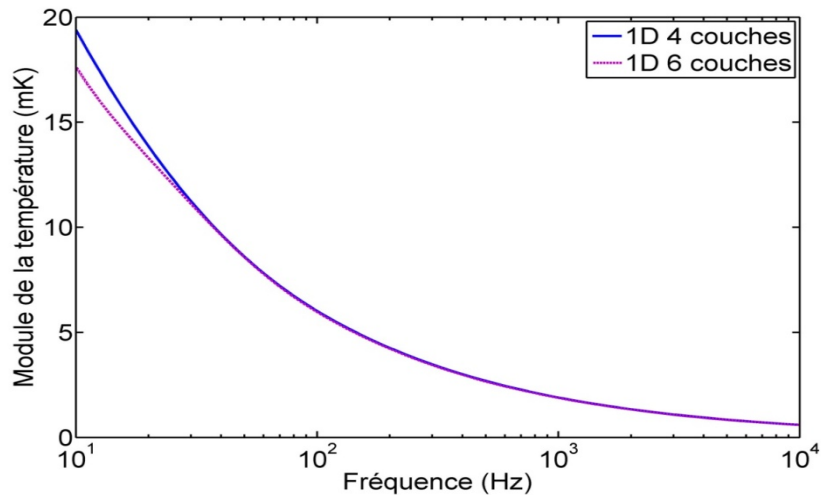
A partir de [3.57] et [3.58], nous pouvons déterminer toutes les températures et les flux de chaleur aux interfaces ainsi que les coefficients  $A_i$  et  $B_i$ . Alors, l'expression de la température dans chaque couche est définie de la manière suivante :

$$\begin{cases} T_1(z) = B_1 e^{\delta_1 z} \\ T_2(z) = A_2 e^{-\delta_2 z} + B_2 e^{\delta_2 z} \\ T_3(z) = A_3 e^{-\delta_3 z} + B_3 e^{\delta_3 z} + C_3 e^{-\beta_{\lambda_3} z} + D_3 e^{\beta_{\lambda_3} z} \\ T_4(z) = A_4 e^{-\delta_4 z} + B_4 e^{\delta_4 z} + C_4 e^{-\beta_{\lambda_4} z} + D_4 e^{\beta_{\lambda_4} z} \\ T_5(z) = A_5 e^{-\delta_5 z} + B_5 e^{\delta_5 z} + C_5 e^{-\beta_{\lambda_5} z} + D_5 e^{\beta_{\lambda_5} z} \\ T_6(z) = A_6 e^{-\delta_6 z} + C_6 e^{-\beta_{\lambda_6} z} \end{cases} \quad [3.59]$$

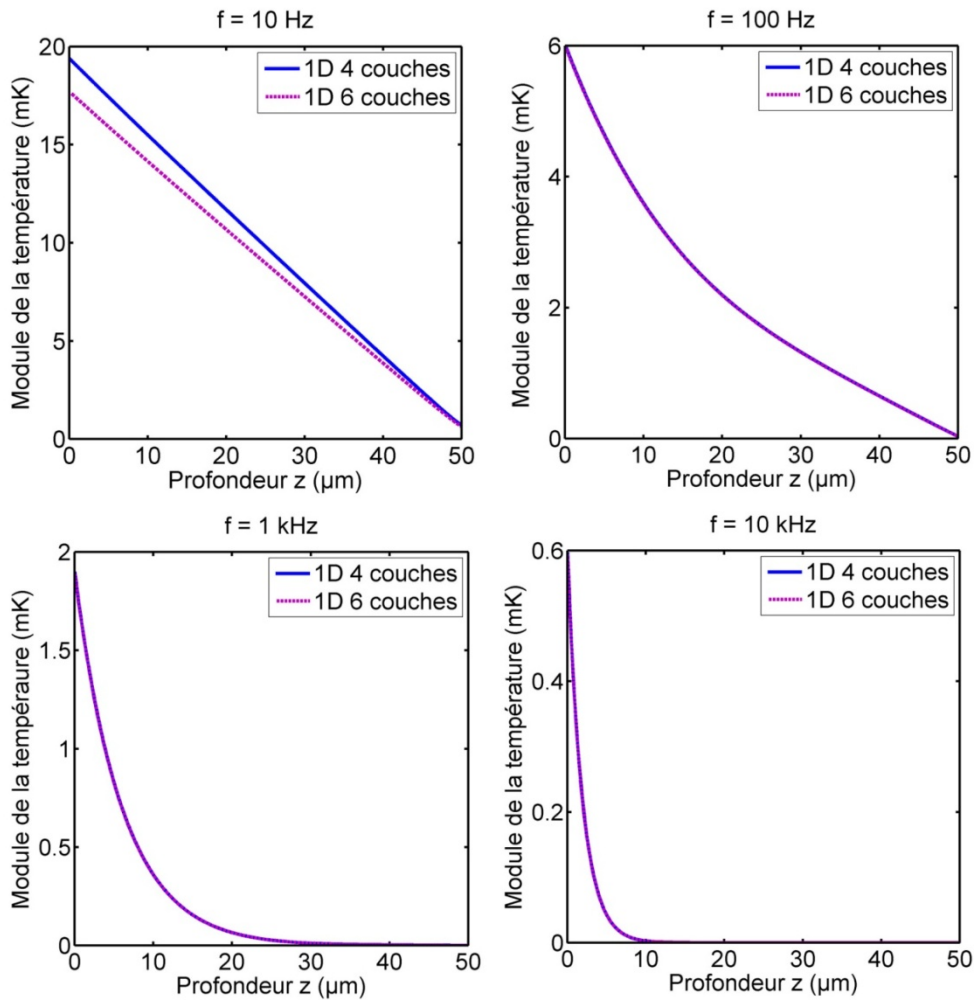
Les constantes  $A_i, B_i, C_i, D_i$  sont données dans l'Annexe. Un programme développé à partir de ce modèle a été mis au point sous l'environnement Matlab, permettant la simulation et l'affichage des profils de température dans les différentes couches constituant le système en fonction de l'épaisseur, de la fréquence ou des deux en même temps.

### 3.2.6. Comparaison des modèles

Le but est ici de comparer les deux modèles en une dimension : 1 D quatre couches, 1D six couches. Les simulations ont été réalisées sur les films minces de PTFE de 50  $\mu\text{m}$ , métallisés sur les deux faces avec une couche d'or de 50 nm.



**Figure 3.12.** Profils de température en fonction de la fréquence,  $z = 0 \mu\text{m}$ , puissance de la diode :  $19,2 \text{ mW}$ , rayon de spot :  $1008 \mu\text{m}$



**Figure 3.13.** Profils de température en profondeur pour différentes fréquences (10 Hz, 100 Hz, 1 kHz, 10 kHz), puissance de la diode :  $19,2 \text{ mW}$ , rayon de spot :  $1008 \mu\text{m}$



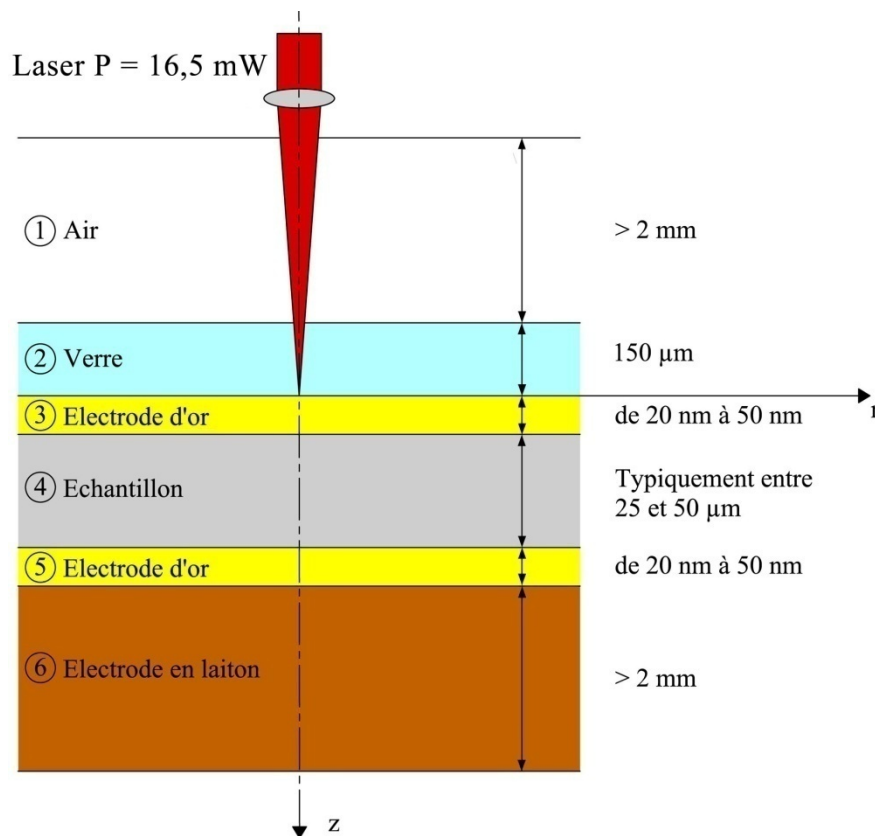
La figure 3.12 représente les profils de la température en fonction de la fréquence au point d'impact laser ( $z = 0$ ). Ces courbes montrent bien l'évolution rapide du module de la température qui décroît très fortement quand la fréquence augmente.

Les profils de la température en profondeur pour une fréquence de 105 Hz ont été également tracés sur la figure 3.13.

A partir des différents résultats de simulation, on peut mettre en avant une bonne corrélation entre les deux modèles pour les différentes simulations. Il y a cependant une différence à 10 Hz entre les deux modèles car à la fréquence de 10 Hz la plaquette de verre n'est plus thermiquement épaisse et il est donc nécessaire de tenir compte de l'air en contact avec la plaquette comme cela est fait dans le modèle à 6 couches. Ces simulations nous permettent de valider cette nouvelle méthode de calcul de la température et le programme de calcul mis en place pour le modèle unidimensionnel à six couches. Ainsi, le modèle 1D quatre couches sera systématiquement utilisées dans la déconvolution mathématique si la fréquence de modulation ne descend pas en dessous de 100 Hz. Par contre, on utilisera le nouveau modèle 1D multicouches pour des matériaux sandwichs ou des épaisseurs d'échantillons au delà de 200  $\mu\text{m}$  nécessitant de commencer une analyse fréquentielle en dessous de 100 Hz.

### ***3.2.7. Modélisation multicouches de la température en 3D par éléments finis***

Lorsque la taille de la zone thermique est beaucoup plus grande que l'épaisseur d'échantillon  $L$ , une solution unidimensionnelle  $T(z, f)$  est habituellement suffisante. Néanmoins, plusieurs tentatives ont été faites ou suggérées [YIL 93], [BAU 96], [PLO 98], où l'excitation thermique a été confinée à une petite zone sur la surface d'échantillon. Pour la méthode FLIMM, le faisceau laser est focalisé avec une taille de spot de l'ordre de 5  $\mu\text{m}$ . En outre, le modèle tridimensionnel analytique mis au point ne peut plus l'être avec les nouvelles cellules car la plaquette de verre servant à plaquer l'échantillon sur l'électrode inférieure modifie les conditions limites, de même que l'absorption sur faisceau par la couche d'or n'est pas modélisé. Il était donc nécessaire de développer un nouveau modèle 3D multicouches avec apport de chaleur dans les différentes couches.



**Figure 3.14.** Environnement thermique de l'échantillon dans les nouvelles cellules

Compte tenu de la complexité mathématique du modèle tridimensionnel initial, nous avons choisi de résoudre numériquement le problème à partir des éléments finis. Parmi les nombreux logiciels existants, nous avons choisi Comsol qui présente pour nous certains avantages :

- Il permet d'effectuer des modélisations multiphysiques. En effet, nous envisageons la modélisation des phénomènes électrostatiques et leur couplage avec le thermique dans des études ultérieures.
- Il est écrit à partir du noyau de Matlab, il s'interface donc très facilement avec Matlab que nous utilisons pour toutes les inversions mathématiques des courants FLIMM.
- Il permet de modéliser des apports de chaleur volumique dans chaque couche, aussi bien l'absorption en profondeur du faisceau laser que le profil gaussien en énergie du faisceau.

- Il permet une résolution paramétrique, c'est-à-dire que la fréquence de modulation peut être passée en paramètre afin de minimiser les manipulations du logiciel lors de la résolution.

Il est bien évident qu'il est impossible de simuler toute la cellule par éléments finis pour des problèmes de taille de mémoire et de temps de calculs d'autant plus que cela ne sert à rien car très rapidement la température décroît fortement dès que l'on s'éloigne de l'axe du faisceau. Nous nous sommes donc limités à modéliser la cellule en utilisant la symétrie de révolution sur un rayon de 3mm et en limitant la couche d'air et de laiton à 2mm.

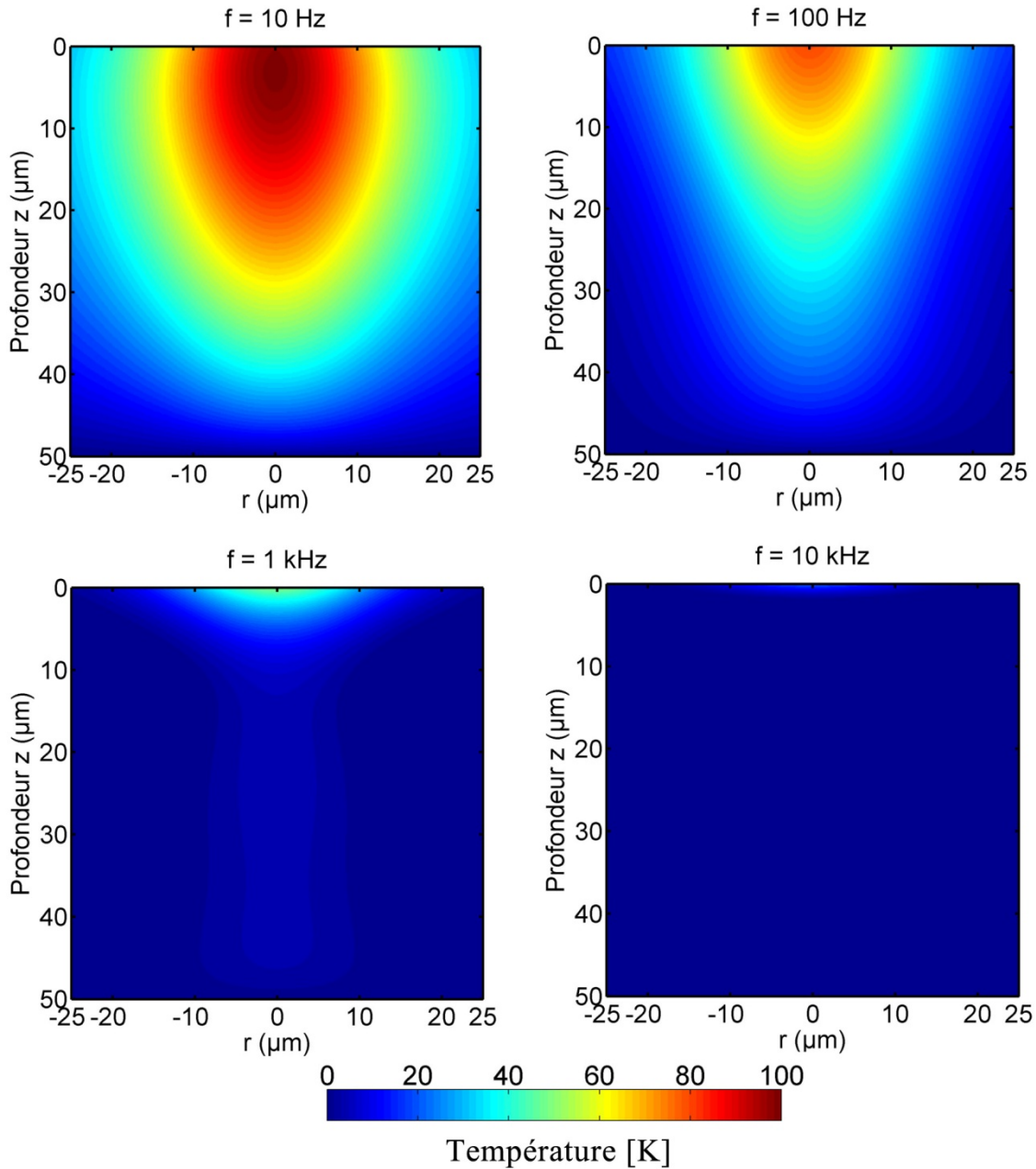
Chaque couche a été maillée par des éléments quadrangles qui sont des éléments à 4 nœuds (forme rectangulaire dans notre cas) et à 8 degrés de liberté. Les dimensions des éléments sont adaptées à la dimension de la couche et à la précision souhaitée en profondeur. Ainsi le tableau suivant donne pour chaque couche les dimensions typiques d'un élément et leur nombre.

Couche	Taille typique d'un élément	Nombre d'éléments
1 : Air	200 $\mu\text{m}$	100
2 : Verre	100 $\mu\text{m}$	3000
3-5 : Electrode d'or	20 à 50 nm	5000
4 : Echantillon	25 à 50 $\mu\text{m}$	18750
6 : Electrode en laiton	50 $\mu\text{m}$	1000

**Tableau 3.1.** Taille et nombre d'éléments par couche

Le maillage et la nature des éléments choisis génère un problème avec plus de 150 000 degrés de liberté qui nécessite 30 secondes de résolution par fréquence soit 30 minutes de calcul pour générer le fichier de température nécessaire à l'inversion mathématique du problème FLIMM.

Les simulations suivantes ont été réalisées sur les films minces de PTFE de  $50\ \mu\text{m}$ , métallisés sur les deux faces avec une couche d'or de  $50\ \text{nm}$ . Les résultats sont présentés dans la figure 3.15.



**Figure 3.15.** Température en fonction de  $r$  et  $z$  pour différentes fréquences de modulation (Taille de spot :  $15\ \mu\text{m}$ , puissance du faisceau :  $16,5\ \text{mW}$ )

Une diminution des dimensions de la zone thermique et de la valeur de température apparaissent très nettement lorsque la fréquence augmente. L'étalement latéral reste important, cela s'explique par le fait que ce nouveau modèle tient compte de la conduction thermique dans la couche d'or.

Afin que ce modèle soit utilisable, il nous faut connaître avec précision la puissance du faisceau, sa dimension, sa répartition en énergie mais surtout la taille du spot en cas de focalisation.

### 3.3. Mesures expérimentales du faisceau laser

#### 3.3.1. Aspect théorique

Un faisceau est dit gaussien si la répartition énergétique transversale est de la forme d'une fonction de Gauss. Le faisceau gaussien est caractérisé par une répartition non uniforme de l'intensité lumineuse (ou densité surfacique de puissance) dans un plan perpendiculaire à la direction de propagation du faisceau. Dans un plan donné, l'intensité est maximale sur l'axe et diminue en fonction de la distance  $r$  du point considéré à l'axe selon la loi :

$$I = I_0 e^{-\frac{2r^2}{w^2}} \quad [3.60]$$

où  $w$  le rayon de spot,  $I_0$  l'intensité maximale du faisceau et  $r$  la distance par rapport au centre du faisceau laser.

Du fait de la diffraction, le faisceau s'élargit lorsque l'on s'éloigne de l'endroit où le faisceau est le plus étroit : le rayon vaut alors  $w_0$ . La variation de  $w$ , en fonction de la distance  $z$  par rapport à la section où le faisceau est minimum, est donnée par :

$$w = w_0 \sqrt{\left(1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2\right)} \quad [3.61]$$

avec 
$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$$

où  $\lambda$  la longueur d'onde,  $z_R$  distance de Rayleigh.

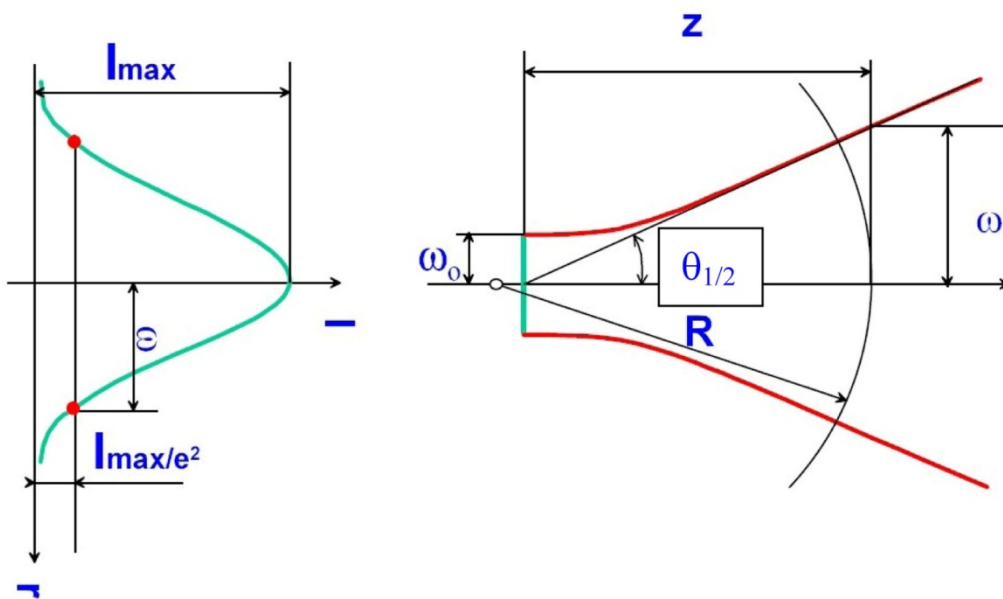
Lorsque  $z$  est très supérieur à  $z_R$ , le faisceau peut être considéré comme conique de demi-angle d'ouverture :

$$\theta_{1/2} = \frac{\lambda}{\pi w_0} \quad [3.62]$$

On caractérise la divergence du faisceau soit par ce demi-angle soit par l'angle total :

$$\theta_t = \frac{2\lambda}{\pi w_0} \quad [3.63]$$

La figure 3.16 présente la répartition gaussienne de l'intensité, définition à  $1/e^2$  et évolution du rayon de mode  $w$  en fonction de l'éloignement  $z$  par rapport au waist.

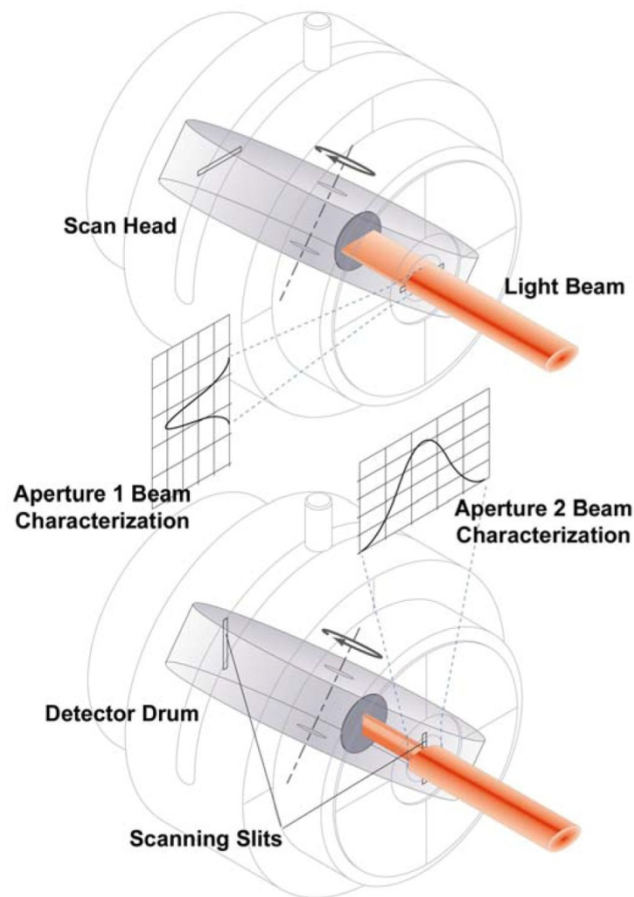


**Figure 3.16.** Répartition gaussienne de l'intensité, définition à  $1/e^2$  et évolution du rayon de mode  $w$  en fonction de l'éloignement  $z$  par rapport au waist

### 3.3.2. Aspect expérimental

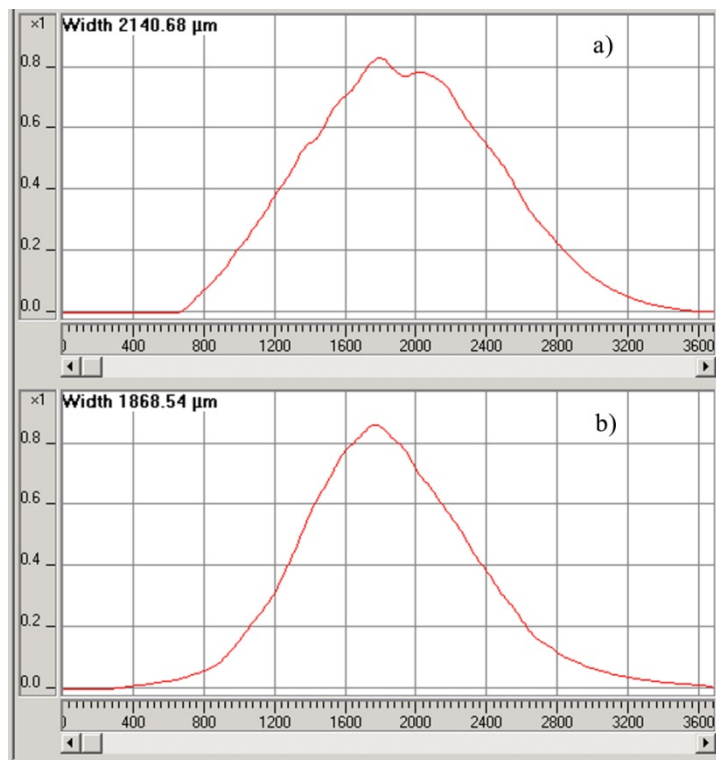
Le système NanoScan de la société BFI-Optilas été utilisé pour caractériser énergétiquement et géométriquement le faisceau laser du système optique de la méthode FLIMM (voir 2.3). Ce système comporte un transducteur composé d'un capteur CCD et d'un tambour présentant 2 fentes à  $45^\circ$  pour mesurer le faisceau laser, d'une carte PCI et d'un logiciel pour la commande de balayage et l'acquisition de données. Le principe de mesure du système NanoScan est représenté dans la figure 3.17. Le tambour est orienté à  $45^\circ$  par rapport aux axes principaux du faisceau incident qui est en général elliptique, et par conséquent les mouvements apparents des fentes sont dans les directions principales du

faisceau. L'analyse longitudinale permet de suivre l'évolution du rayon  $w$ , de déterminer la position où la dimension  $2w_0$  du faisceau est minimale ainsi que la divergence du faisceau ou son ouverture numérique. En outre, l'analyse transversale (dans un plan perpendiculaire à la direction de propagation du faisceau) caractérise l'évolution de l'intensité (densité de puissance) en fonction de l'éloignement du point par rapport à l'axe. Cette analyse permet de vérifier la nature gaussienne du faisceau et de mesurer le rayon de mode  $w$  défini à  $1/e^2$ .

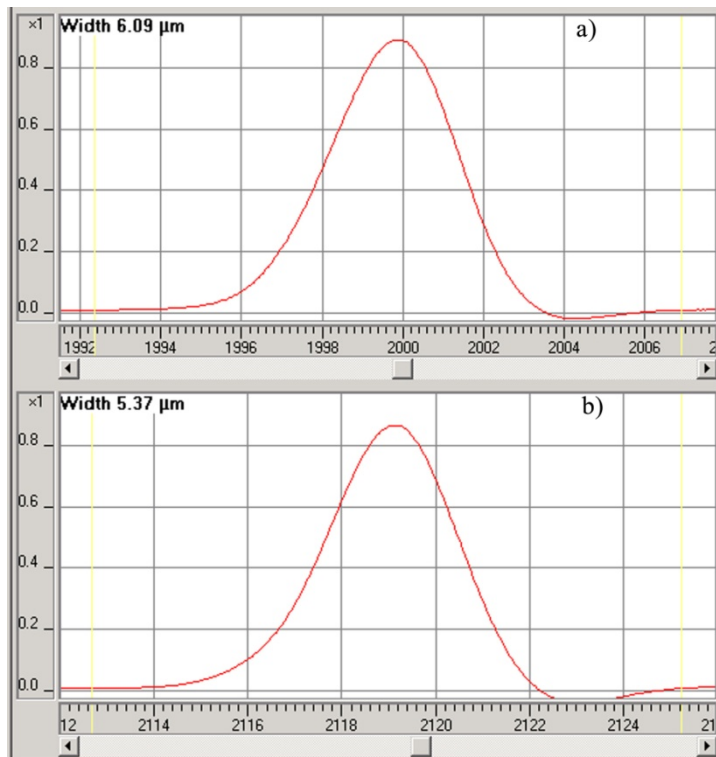


**Figure 3.17.** Principe de mesure du système NanoScan

Nous avons effectué des mesures sur le faisceau laser non focalisé et focalisé. Les résultats obtenus par le système NanoScan sont représentés sur les figures 3.18 et figure 3.19. La taille de spot est de  $1868,5 \mu\text{m}$  et  $5,4 \mu\text{m}$  pour le faisceau non focalisé et le faisceau focalisé, respectivement.



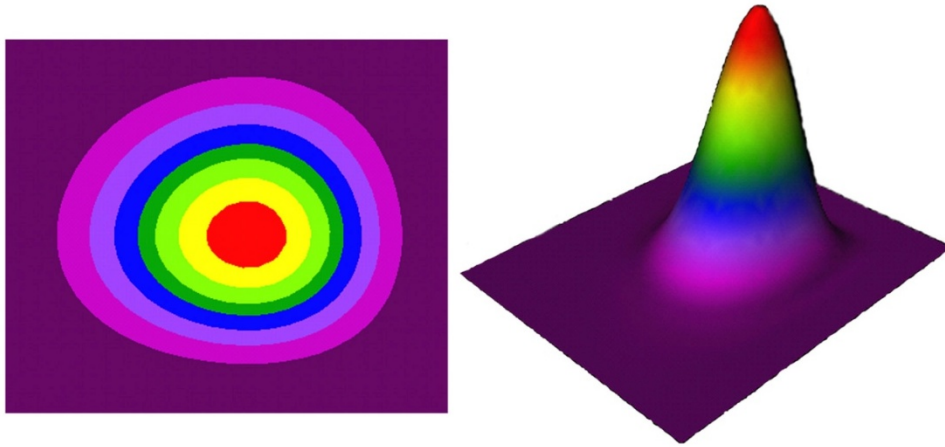
**Figure 3.18.** Analyse verticale (a) et horizontale (b) de l'intensité du faisceau laser non focalisé obtenu par le système NanoScan. Puissance sortie du système optique : 19,2 mW, taille de spot : 1868,5 μm



**Figure 3.19.** Analyse verticale (a) et horizontale (b) de l'intensité du faisceau laser focalisé obtenu par le système NanoScan. Puissance sortie du système optique : 16,5 mW, taille de spot : 5,4 μm

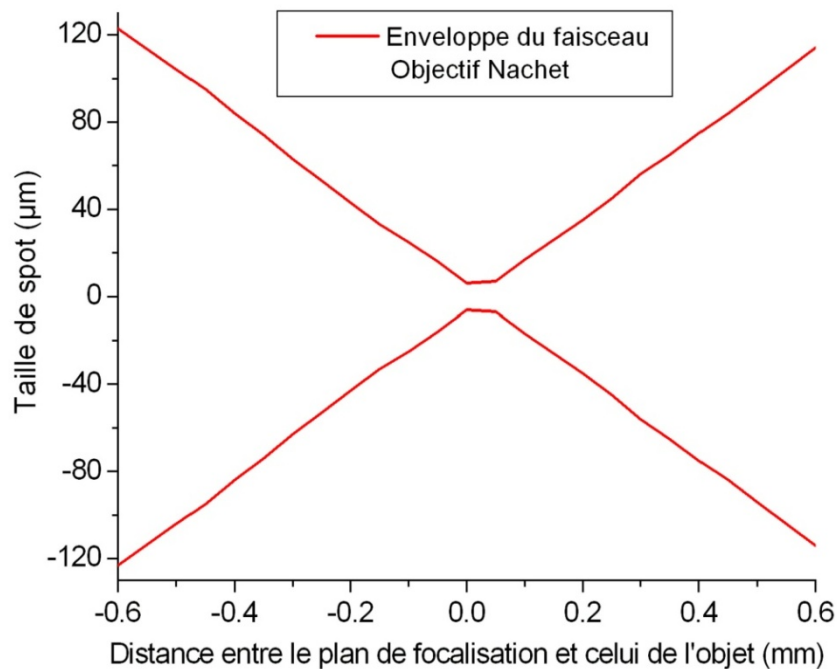


Le système NanoScan permet également de visualiser la distribution énergétique du faisceau en 2D et 3D du faisceau laser focalisé (figure 3.20).



**Figure 3.20.** Mesure de la divergence du faisceau laser : vues 2D et 3D de la distribution énergétique du faisceau par NanoScan. Puissance de la diode : 16,5 mW, taille de spot : 5,4  $\mu\text{m}$

On constate que la répartition de l'intensité du faisceau laser est quasiment gaussienne mais que comme le montrent la figure 3.20 et les courbes des figures 3.18 et 3.19, le faisceau n'est pas totalement circulaire malgré la présence d'un système optique en sortie du faisceau pour le rendre circulaire.



**Figure 3.21.** Taille de spot en fonction de la distance de focalisation

Afin de caractériser plus précisément notre système optique, des mesures ont été réalisées sur le faisceau laser focalisé en modifiant la distance entre l'objectif de focalisation du faisceau et le détecteur NanoScan. La taille de spot pour différentes distances de focalisation est donnée par la figure 3.21. Ces résultats montrent que notre système optique peut donner une taille de spot de l'ordre de 5  $\mu\text{m}$ .

Pour résumer, le tableau 3.2 représente les résultats obtenus par le système NanoScan de mesures sur le faisceau laser non focalisé et focalisé.

Faisceau laser	Taille de spot ( $\mu\text{m}$ )	Puissance au niveau de l'échantillon (mW)
Non focalisé	1868,5	19,2
Focalisé	5,4	16,5

**Tableau 3.2.** Puissance sortie du système optique et la taille de spot du faisceau laser

La connaissance de la taille de spot et l'intensité du faisceau laser réellement déposée à la surface de l'échantillon joue un rôle primordial pour la modélisation de la température. Une fois ces paramètres déterminés, nous pouvons utiliser ces données dans les modèles permettant de simuler l'évolution de la température à l'intérieur de l'échantillon.

## 3.4. Calibration du niveau de charge

### 3.4.1. Calibration du gradient thermique

La principale difficulté que l'on rencontre dans toute modélisation de la température est la vérification expérimentale du profil en profondeur de la température.

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 2.7, les mesures sous faible champ électrique peuvent être utilisées pour la calibration des mesures de charge d'espace de la méthode FLIMM.

Considérons un échantillon isolant qui contient une certaine quantité de charge d'espace induisant un champ électrique résiduel  $E_r(z)$ . Si l'échantillon est soumis à un

champ appliqué  $E_a = V_{HT}/L$  qui ne provoque pas d'injection de charges et qui ne modifie pas la répartition de charges dans l'échantillon, alors le courant FLIMM mesuré  $I_+(f)$ , a une expression identique à l'équation [2.36] :

$$I_+(f) = -j\omega \frac{\alpha\varepsilon}{2L} \int_S \int_0^L (E_r(z) + E_a)T(z, f) dz dS \quad [3.64]$$

L'application à l'échantillon d'un champ électrique externe de même valeur  $E_a$  mais de polarité opposée donne un courant  $I_-(f)$  comme suit :

$$I_-(f) = -j\omega \frac{\alpha\varepsilon}{2L} \int_S \int_0^L (E_r(z) - E_a)T(z, f) dz dS \quad [3.65]$$

Si l'on suppose que les distributions de charge interne dans les deux échantillons sont identiques (les échantillons sont issues du même lot et chargés de manière identique) alors la différence entre les deux courants  $I_+(f)$  et  $I_-(f)$  s'écrivent :

$$I_C(f) = I_+(f) - I_-(f) = -j\omega \frac{\alpha\varepsilon E_a}{L} \int_S \int_0^L T(z, f) dz dS \quad [3.66]$$

Ainsi,  $I_C(f)$  permet une calibration de la température par le biais de l'évaluation de l'intégrale de la température sur l'épaisseur de l'échantillon à partir de la connaissance des différentes constantes. En effet, en modifiant la fréquence, l'évolution de la température en fonction de la profondeur est modifiée de même que l'amplitude maximale, ainsi si les intégrales de la température théorique et expérimentale sont similaires, on peut imaginer que les modèles développés sont pertinents.

A partir de l'équation [3.66], connaissant le courant pyroélectrique, le champ appliqué et les caractéristiques de l'échantillon, on peut déterminer l'intégrale de la température expérimentale donnée par :

$$\int_S \int_0^L T_{ex}(z, f) dz dS = -\frac{I_C(f)L}{j\omega\alpha\varepsilon E_a} \quad [3.67]$$

En utilisant le modèle 1D quatre couches ou le modèle 3D six couches, l'intégrale de la température théorique est déterminée par :

$$\int_{S_{spot}} \int_0^L T_{th}(z, f) dz dS = S_{spot} \int_0^L T(z, f) dz \quad \begin{array}{l} \text{Modèle 1D} \\ \text{quatre couches} \end{array} \quad [3.68]$$

$$\int_{S_{electrode}} \int_0^L T_{th}(z, f) dz dS = 2\pi \int_0^L \int_0^{\frac{\emptyset}{2}} T(r, z, f) r dr dz \quad \begin{array}{l} \text{Modèle 3D six} \\ \text{couches} \end{array} \quad [3.69]$$

avec  $\emptyset$  est le diamètre de l'électrode,  $S_{spot}$  surface du faisceau laser,  $S_{electrode}$  surface de l'électrode.

En fonction des modèles, la surface d'intégration n'est pas la même. Dans le modèle 1D, on considère la surface du faisceau alors que dans le modèle 3D on considère la surface de l'électrode. Cependant, dans le cas du modèle 3D, la quasi-totalité du signal vient de la zone irradiée par le faisceau car dès que l'on s'éloigne de l'axe du faisceau la température décroît rapidement et n'apporte qu'une contribution très faible au signal total. Au final, l'intégrale de la température sur l'épaisseur de l'échantillon est très peu différente entre les deux modèles.

La comparaison entre l'intégrale de la température expérimentale et la valeur théorique permet de calibrer globalement la puissance de la diode laser, le coefficient de dilatation thermique du matériau et le coefficient de dépendance à la température de la permittivité du matériau. Le coefficient de calibration peut s'écrire :

$$k = \frac{\int_S \int_0^L T_{ex}(z, f) dz dS}{\int_S \int_0^L T_{th}(z, f) dz dS} \quad [3.70]$$

Un programme a été mis au point sous l'environnement Matlab, permettant la détermination d'un coefficient de calibration par une méthode des moindres carrés et l'affichage de l'intégrale de température en fonction de la fréquence.

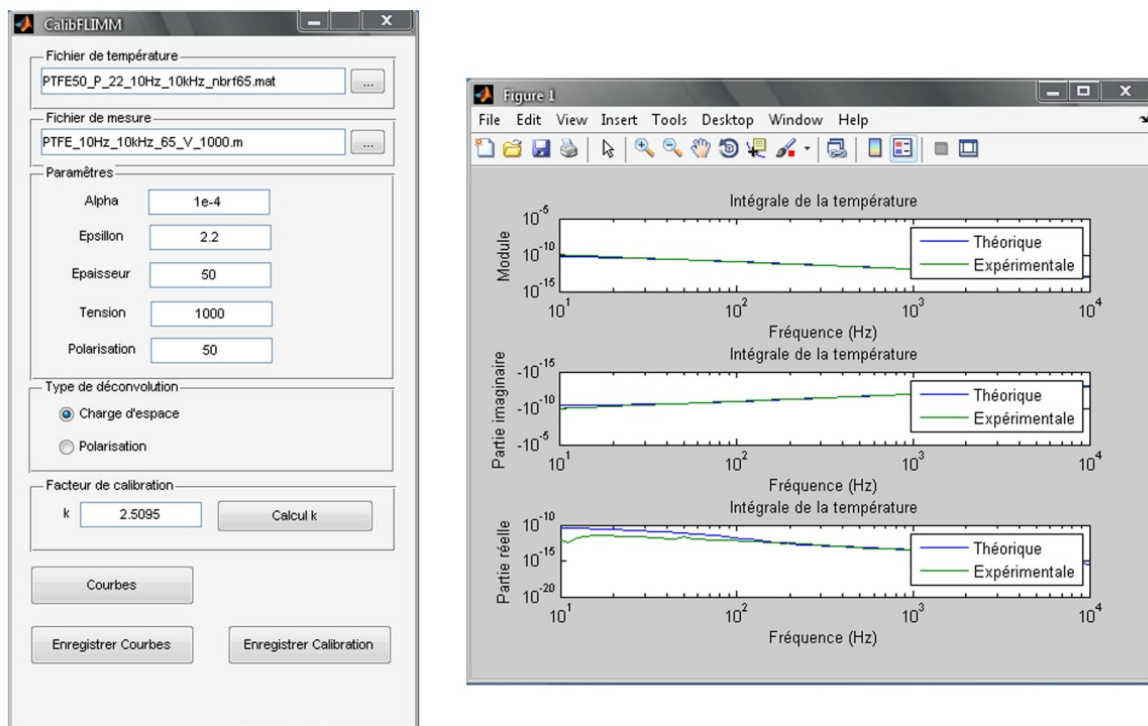
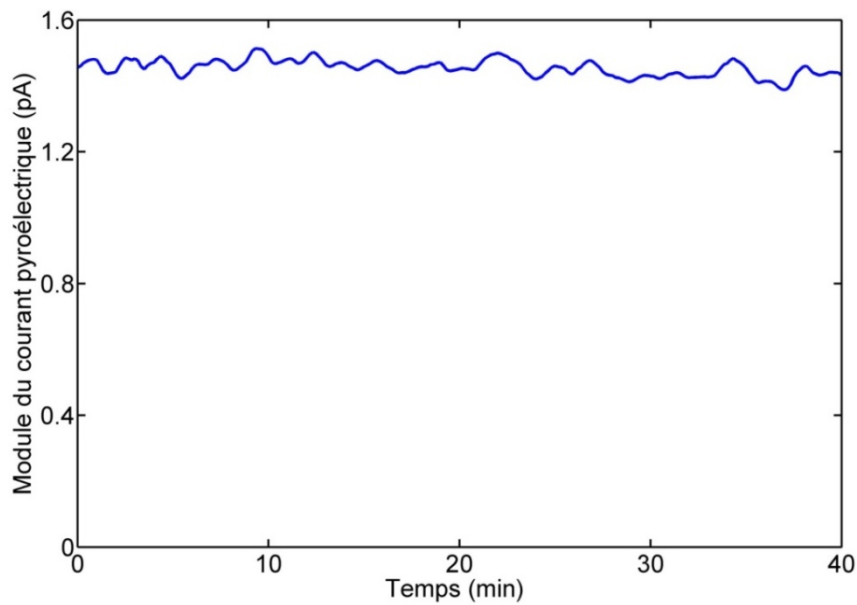


Figure 3.22. Interface du programme d'acquisition

### 3.4.2. Etude de la faisabilité

Pour vérifier la faisabilité de la mesure FLIMM dans la technique «double condensateur», nous avons appliqué cette technique sur les films minces de PTFE de 50  $\mu\text{m}$ , métallisés sur deux faces une couche d'or de 50 nm. Une tension continue de 2500 V a été appliquée aux échantillons pendant 10 minutes à température ambiante. Après la déconnexion de la source HT, des mesures de courant pyroélectrique à une fréquence de 1 kHz ont été réalisées pendant 40 minutes.

L'évolution du module de courant en fonction du temps est représentée sur la figure 3.23. On remarque que le module du courant reste stable au cours du temps. Ainsi, aucun déclin de potentiel n'a pas été constaté. Ce résultat est très important, étant donné qu'une acquisition en FLIMM est relativement longue (quelques minutes) et donc un déclin de potentiel pourrait nuire à nos mesures.



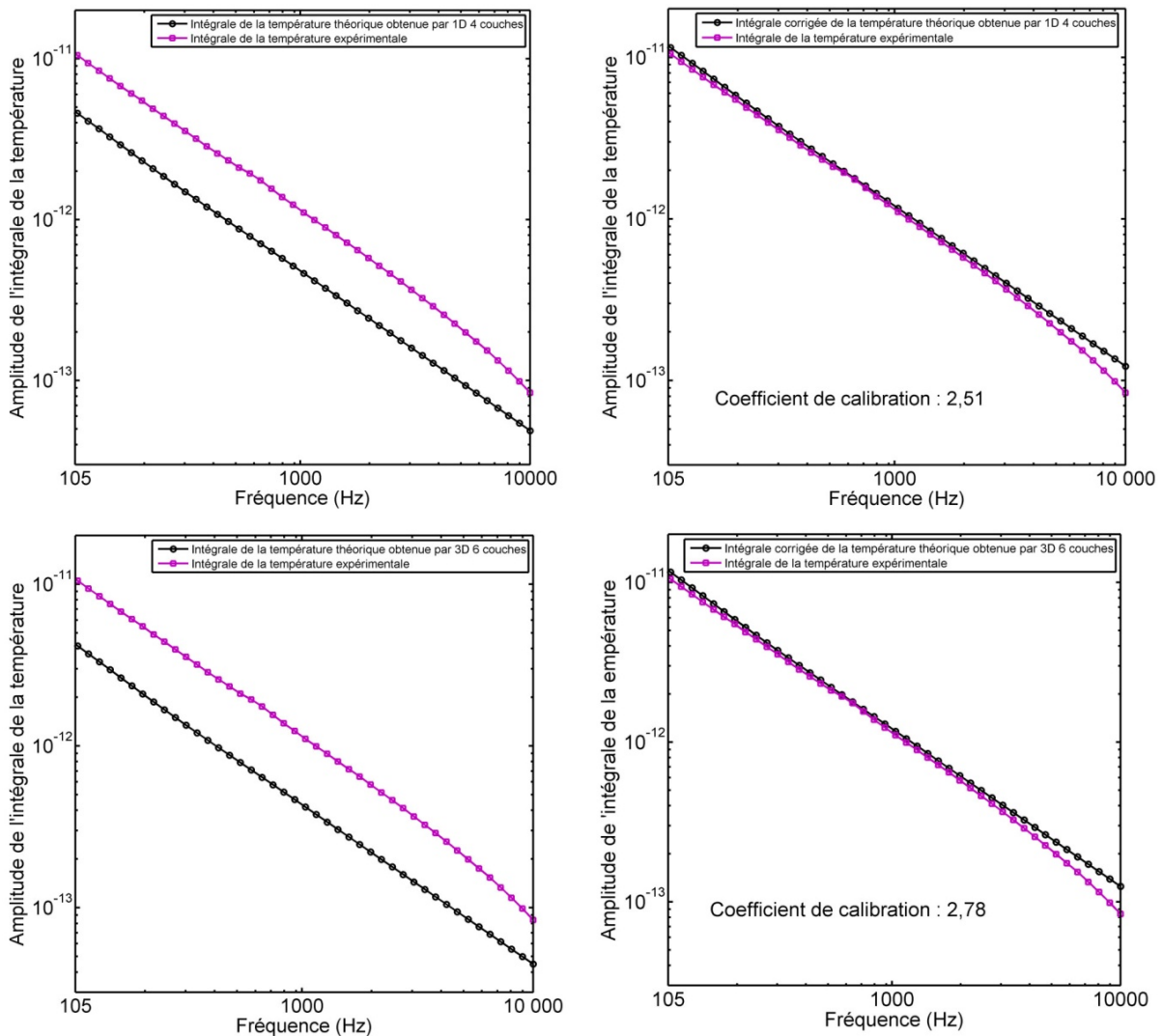
**Figure 3.23.** *Module du courant pyroélectrique en fonction du temps, tension appliquée : 2500 V*

### 3.4.3. Résultats de calibration

Les échantillons étudiés sont des films minces de PTFE (Téflon) de 50  $\mu\text{m}$ , métallisés sur les deux faces avec une couche d'or de 50 nm. Le choix du PTFE vierge a été motivé par le fait qu'il est un matériau non polaire qui contient une très petite quantité de charge d'espace. Le champ électrique résiduel  $E_r(z)$  dans cet échantillon peut être négligé par rapport au champ électrique appliqué. Ainsi, dans la procédure de calibration, une tension de 1000 V a été appliquée aux échantillons pendant 10 minutes à température ambiante. Des mesures de courant FLIMM avec un faisceau laser non focalisé pour une gamme de fréquences comprise entre 105 Hz et 10kHz sont réalisées immédiatement après la déconnexion de la source HT.

Les courbes de la figure 3.24 donnent les valeurs expérimentales et théoriques non corrigées et corrigées obtenues par le modèle 1D quatre couches et 3D six couches et expérimentales de l'intégrale de la température pour les échantillons de PTFE de 50  $\mu\text{m}$ . Les évolutions en fonction de la fréquence de l'intégrale de la température expérimentale et théorique sont quasi identiques pour les deux modèles de température. Il y a seulement un écart visible vers 10kHz qui est peut être dû à la réponse en fréquence du préamplificateur. La différence entre les courbes théoriques et expérimentales se situe essentiellement au

niveau de l'amplitude ce qui permet de définir deux coefficients de calibration 2,51 et 2,78 qui sont très proches.



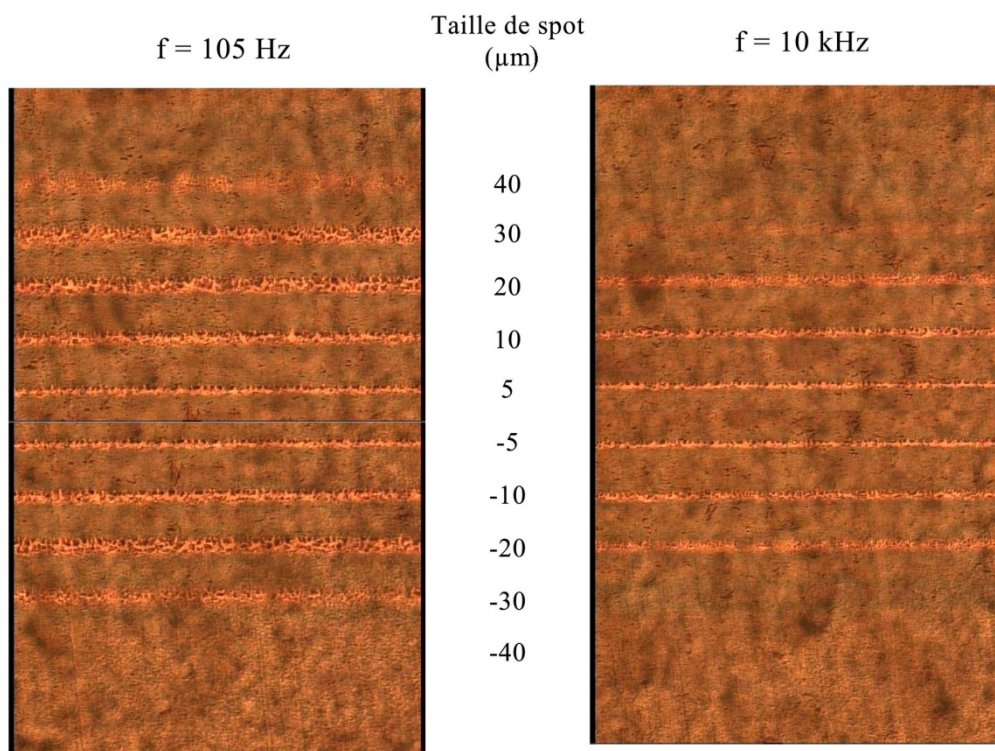
**Figure 3.24.** Intégrale théorique obtenue par 1D quatre couches et 3D six couches et expérimentale de la température avant et après calibration pour les PTFE de 50  $\mu\text{m}$

Cette méthode de calibration permet de définir le coefficient de calibration qui corrige la différence de niveau de signal entre la théorie et l'expérimentation. Cette différence est liée à la méconnaissance du coefficient de dépendance à la température de la permittivité électrique et de dilatation thermique du matériau. Le coefficient de calibration sera utilisé au chapitre suivant pour corriger l'amplitude de la distribution de charge dans l'échantillon.

### 3.5. Ablation des électrodes

Pour mesurer de faibles densités de charge, on cherche à augmenter le rapport signal/bruit en améliorant l'absorption optique du faisceau laser par les électrodes et la puissance de la diode. Cependant, ceci met une contrainte thermique additionnelle sur le film de polymère.

Il a été déjà mentionné par Mellinger et al. <sup>[MEL 05b]</sup> que la focalisation du faisceau laser pulsé à haute énergie peut endommager les électrodes de cuivre ou d'aluminium dans les mesures effectuées par la méthode TPT. Le facteur de limitation est l'ablation de l'électrode supérieure et probablement d'une couche mince du polymère, plutôt que le chauffage du matériau en volume.



**Figure 3.25.** Ablation sur l'électrode de l'or de 20 nm sur un film PTFE de 50 µm pour les différentes tailles de spot et fréquences, puissance sortie du système optique : 16,5 mW

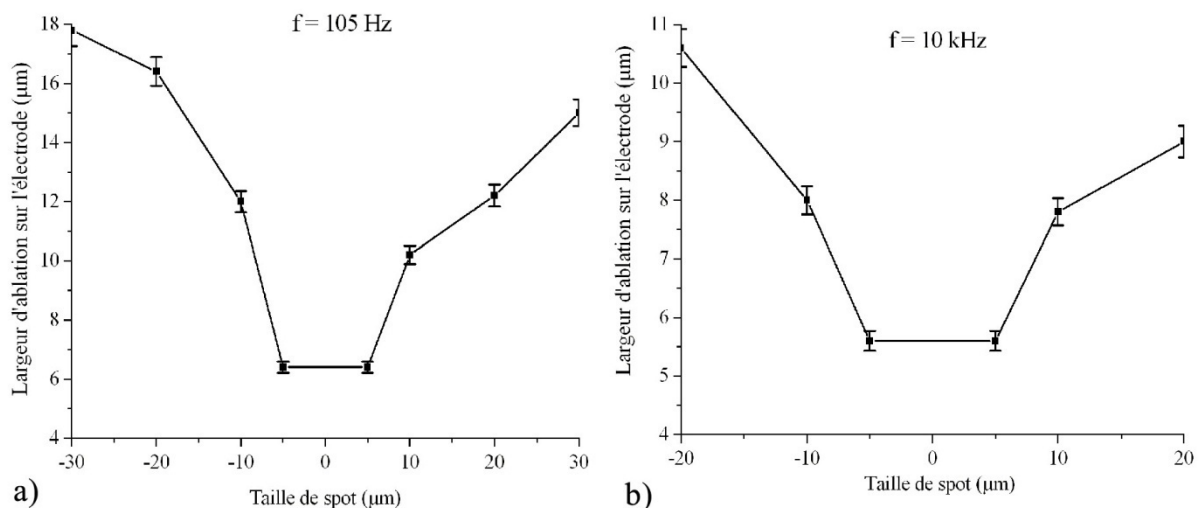
Les diodes laser utilisées généralement dans des expériences de LMM donnent la puissance sortie de 10 - 50 mW et des diamètres de faisceau de 1 - 5 millimètres, dans ce cas l'élévation de la température à l'électrode supérieure est inférieure à 1 K et les densités d'énergie sont faibles. Néanmoins, pour les sources de laser plus puissantes ou faisceaux



focalisés, la densité d'énergie déposée est très importante et la température peut atteindre quelques dizaines de Kelvins entraînant des modifications physiques ou chimiques du polymère. Ainsi, il est indispensable de déterminer la puissance maximale de la diode laser pour optimiser la chaîne instrumentale FLIMM tout en évitant l'ablation de l'électrode.

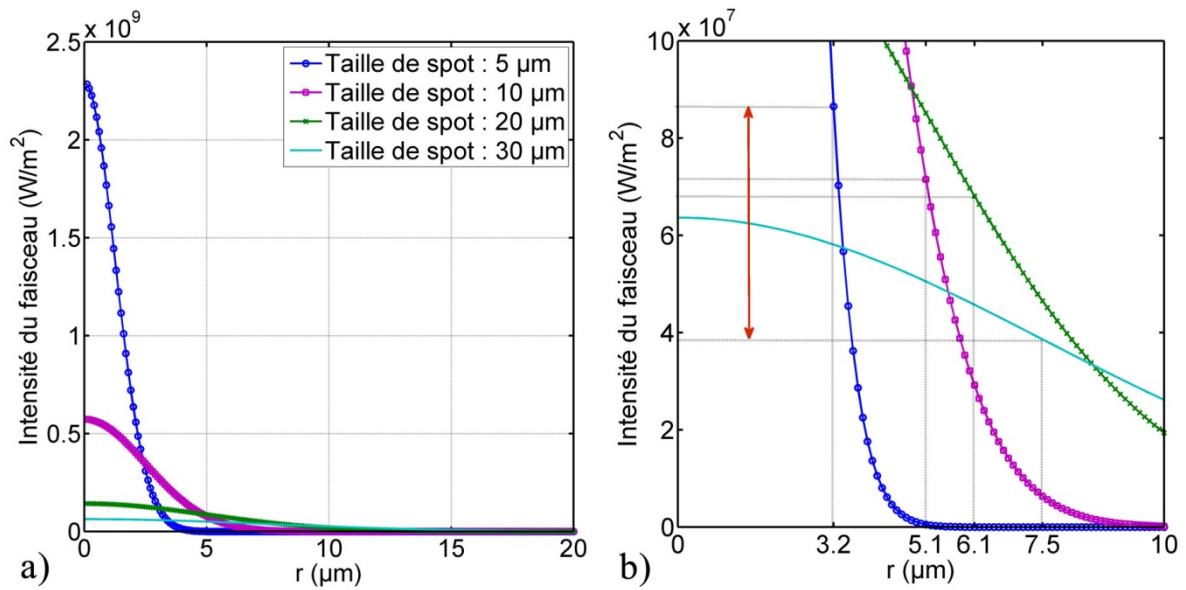
Pour cela, nous avons déplacé notre faisceau laser avec différentes tailles de spot de focalisation sur la surface d'un échantillon de PTFE de 50  $\mu\text{m}$  métallisé avec une couche d'or de 20nm. Si la densité d'énergie est trop importante, il apparaît une ablation des électrodes qui se traduit par les lignes visibles sur la figure 3.25.

Il est important de noter qu'il n'y a pas d'ablation pour une taille de spot de 30  $\mu\text{m}$  et une fréquence de 10 kHz et pour 40  $\mu\text{m}$  à 105 Hz. Concernant les mesures de largeur de l'ablation, celles-ci sont relativement délicates et les résultats présentés dans la figure 3.26, ont été obtenus en moyennant les mesures.

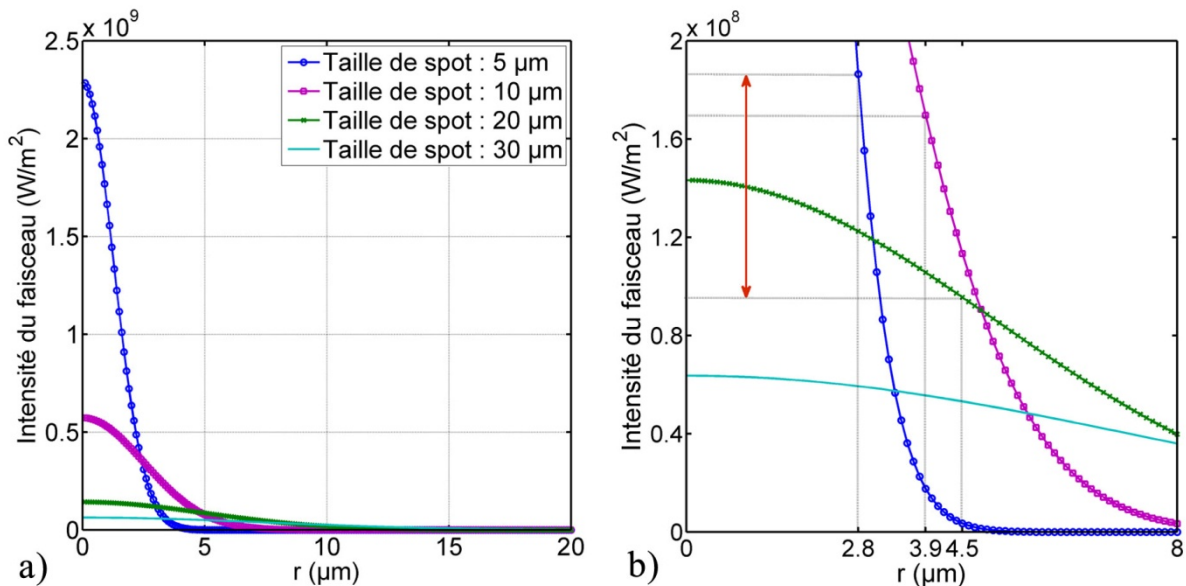


**Figure 3.26.** Largeur de l'ablation sur l'électrode de l'or de 20 nm en fonction de la taille de spot :  
(a)  $f = 105 \text{ Hz}$ , (b)  $f = 10 \text{ kHz}$  (puissance sortie du système optique : 16,5 mW)

Afin d'expliquer ce phénomène d'ablation, la répartition d'énergie gaussienne du faisceau laser a été calculée pour les différentes tailles de spot. A partir des largeurs d'ablation calculées pour chaque taille de spot, nous pouvons déterminer l'intensité du faisceau à l'interface entre deux zones avec ou sans ablation comme dans les deux figures suivantes.



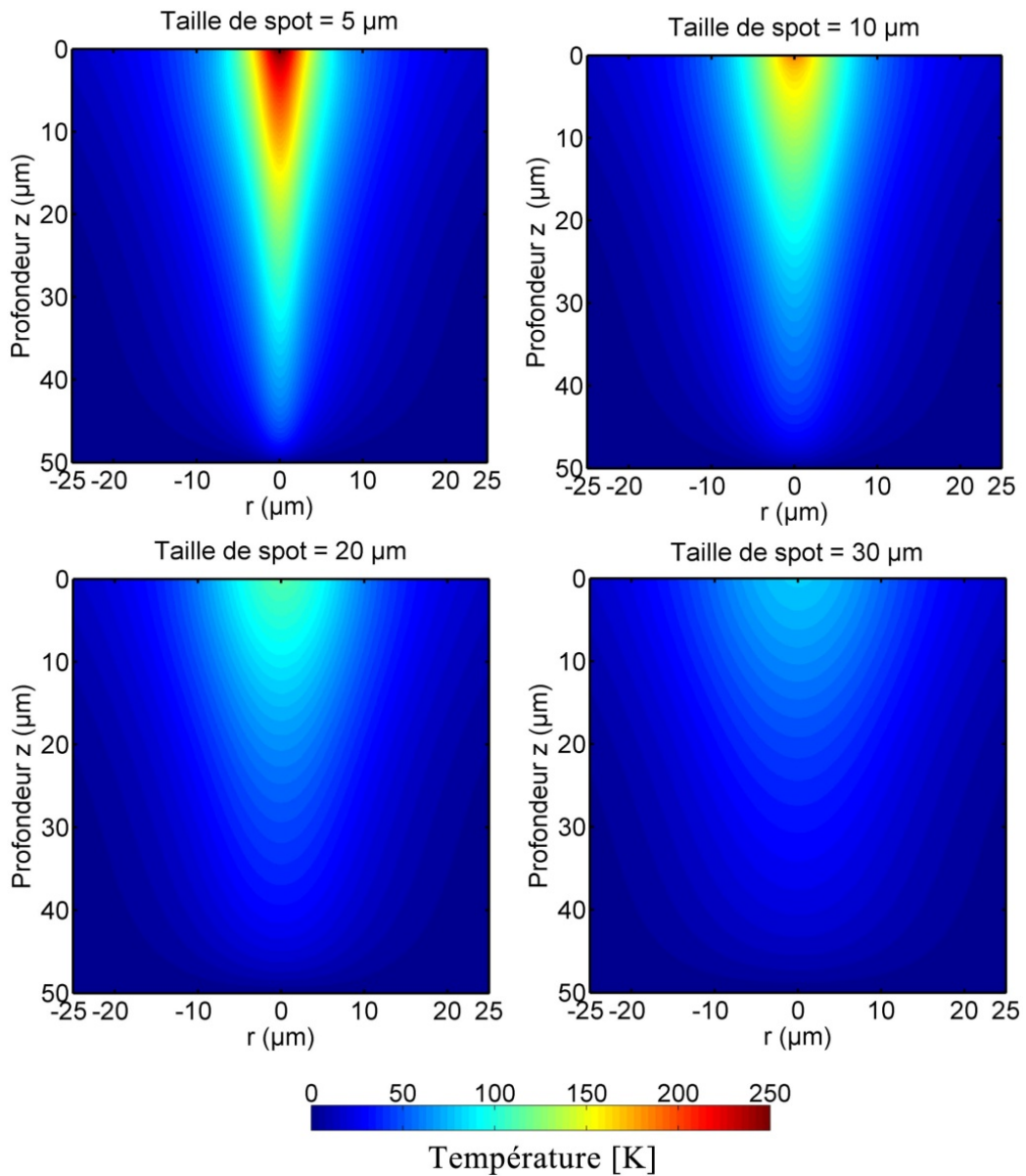
**Figure 3.27.** (a) Profil d'intensité gaussien du faisceau laser pour différentes tailles de spot, (b) Détermination de l'intensité du faisceau à la largeur d'ablation pour la fréquence de 105 Hz (puissance sortie du système optique : 16,5 mW)



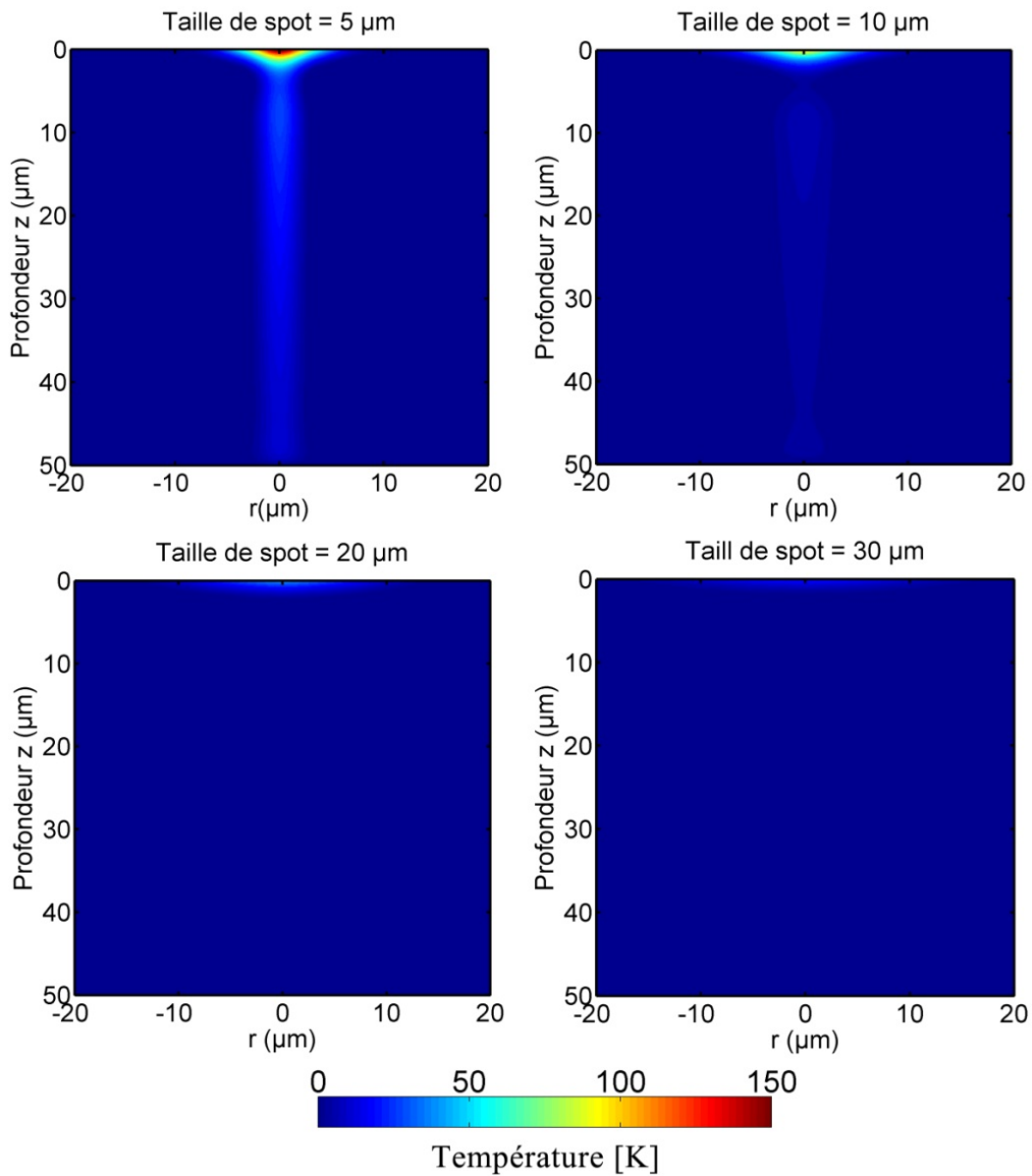
**Figure 3.28.** (a) Profil d'intensité gaussien du faisceau laser pour différentes tailles de spot, (b) Détermination de l'intensité du faisceau à la largeur d'ablation pour la fréquence de 10 kHz (puissance sortie du système optique : 16,5 mW)

D'après les figure 3.27 et figure 3.28, on a ablation de l'électrode d'or de 20 nm pour des intensités de faisceau comprises entre l'intensité du faisceau de  $3,9 \cdot 10^7 \text{ W/m}^2$  et  $8,7 \cdot 10^7 \text{ W/m}^2$  pour la fréquence de 105 Hz et entre à  $9,6 \cdot 10^7 \text{ W/m}^2$  et  $18,7 \cdot 10^7 \text{ W/m}^2$  pour la fréquence 10 kHz. On voit au travers de ces données une influence de la fréquence de modulation du faisceau laser.

Afin d'évaluer la température dans les différentes situations, un calcul de l'élévation de la température à l'électrode d'or de 20 nm sur l'échantillon de PTFE de 50  $\mu\text{m}$  a été effectué par logiciel Comsol (figure 3.29 et figure 3.30).



**Figure 3.29.** Température en fonction de  $r$  et  $z$  pour différentes taille de spot à la fréquence de 105 Hz, puissance sortie du système optique : 16,5 mW



**Figure 3.30.** *Température en fonction de  $r$  et  $z$  pour différentes taille de spot à la fréquence de 10 kHz, puissance sortie du système optique : 16,5 mW*

Une diminution des dimensions de la zone thermique (en profondeur) apparaît très nettement lorsque la fréquence augmente de 105 Hz à 10 kHz ainsi qu’une chute générale du niveau de température quand la taille de spot augmente.

Pour résumer, le tableau 3.3 représente des élévations de la température et intensités du faisceau en fonction de la largeur d’ablation pour différentes fréquences et tailles de spot.

Taille de spot ( $\mu\text{m}$ )	f = 105 Hz			f = 10 kHz		
	Ablation ( $\mu\text{m}$ )	Intensité ( $\text{W}/\text{m}^2$ )	Température (K)	Ablation ( $\mu\text{m}$ )	Intensité ( $\text{W}/\text{m}^2$ )	Température (K)
5	3,2	$8,7 \cdot 10^7$	223	2,8	$18,7 \cdot 10^7$	70
10	5,1	$7,2 \cdot 10^7$	156,7	3,9	$17 \cdot 10^7$	25,9
20	6,1	$6,8 \cdot 10^7$	103,3	4,5	$9,6 \cdot 10^7$	7,7
30	7,5	$3,9 \cdot 10^7$	74,9	-	-	-
40	-	-	-	-	-	-

**Tableau 3.3.** *Elévations de la température et intensités du faisceau en fonction de la largeur d'ablation pour différentes fréquences et tailles de spot*

On voit donc dans ce tableau que l'énergie à partir de laquelle apparait l'ablation est de l'ordre de quelques  $10^7 \text{ W}/\text{m}^2$  qui dépend probablement de la température de l'échantillon.

On voit également que la température peut atteindre des valeurs très élevées, il est donc important d'adapter la puissance de la diode afin de ne pas détériorer les électrodes par ablation et l'échantillon en le chauffant trop.

### 3.6. Conclusion

En FLIMM, il est impossible de mesurer la température locale induite par le faisceau laser. Ainsi, la nécessité de mettre au point un modèle mathématique cohérent pour étudier la température locale dans un échantillon s'est imposée.

En outre, les échantillons étudiés étant généralement thermiquement et optiquement mince, il est donc indispensable de tenir compte de l'environnement thermique de l'échantillon dans la cellule de mesure ainsi que de l'absorption du faisceau par les différents milieux. Ceci nous conduit à une modélisation à quatre couches en une dimension qui est utilisée pour la détermination du profil de la charge d'espace en profondeur. Afin d'étudier les systèmes plus complexes ou des échantillons multicouches dans des études futures, un modèle 1D multicouches a été mis au point en utilisant une nouvelle méthode de calcul. La corrélation parfaite entre les simulations effectuées par le modèle 1D quatre couches et 1D

six couches nous permet de valider cette nouvelle méthode de calcul de la température. Ainsi, le modèle 1D quatre couches sera systématiquement utilisé dans la déconvolution mathématique pour un système classique. Par contre, on devra utiliser le nouveau modèle 1D multicouches pour les systèmes plus complexes ou pour des échantillons multicouches.

La modélisation numérique en trois dimensions de la température de l'échantillon a été développée utilisant le logiciel Comsol et prenant en compte son environnement thermique au sein de la cellule. Ce modèle est utilisé lors de la réalisation de cartographie de polarisation ou de charges d'espace.

Les mesures expérimentales du faisceau laser nous ont permis de déterminer la taille de spot et l'intensité du faisceau laser réellement déposée à la surface de l'échantillon. Les résultats obtenus montrent que notre système optique peut donner une taille de spot de l'ordre de 5  $\mu\text{m}$ .

La calibration du niveau de charge permet la vérification expérimentale de l'évolution théorique du gradient de température au sein de l'échantillon irradié par le faisceau laser, ainsi que la détermination d'un coefficient de calibration. Les résultats obtenus valident notre modélisation de la température. Le coefficient de calibration sera indispensable à la mesure du niveau de charge d'espace dans l'échantillon au chapitre suivant.

Dans la méthode FLIMM, la focalisation du faisceau laser à haute énergie peut provoquer l'ablation de l'électrode. Nous avons montré que l'énergie déposé sur l'échantillon par unité surface joue un rôle important dans l'ablation et donc la puissance du faisceau pour une taille de spot souhaitée.

## **Chapitre 4. Résultats et interprétations**

### **4.1. Introduction**

Dans ce chapitre, des cartographies 3D de profil de polarisation ou de charges d'espace avec une très bonne résolution spatiale sur des films minces de PVDF-TrFE, de PEN soumis à une irradiation UV ou de PTFE irradié par un faisceau d'électron sont présentées et analysées.

Dans une première partie, les cartographies tridimensionnelles de profil de polarisation effectuées sur le PVDF-TrFE par la méthode FLIMM sont comparées avec celles obtenus par la méthode TPT. L'étude du PEN irradié par UV sera elle aussi décrite, puis les cartographies 3D hautes résolution de charges d'espace sur PTFE irradié par un faisceau d'électrons monoénergétique seront abordées. Concernant les mesures de charges d'espace effectuées sur les films minces de PTFE irradiés par MEB (Microscopie Electronique à Balayage), les résultats obtenus avec les techniques FLIMM et PEA ont mis en évidence leur complémentarité.

### **4.2. Tomographie tridimensionnelle de profils de polarisation par FLIMM et TPT**

#### ***4.2.1. Contexte de l'étude***

Le travail présenté dans cette partie s'inscrit dans un projet de collaboration intitulé «Tomographie tridimensionnelle de polarisation et de charges d'espaces par analyse

fréquentielle et temporelle» entre notre équipe et l'équipe du professeur Gerhard, de l'institut de physique, université de Potsdam, dans le cadre d'un projet Procope, Egide. Les différentes approches dans les domaines fréquentiel (FLIMM) et temporel (TPT) offrent une opportunité unique de se focaliser sur leurs capacités, avec une large synergie des effets.

L'amélioration de la tomographie tridimensionnelle de charges d'espace ou de polarisation jouera un rôle crucial dans la caractérisation de nouveaux matériaux piézoélectriques et pyroélectriques avec un grand coefficient et/ou une grande stabilité thermique. Les polymères cellulaires électriquement chargés, les copolymères cyclo-oléfinés et les polyamides en constituent quelques exemples.

Ainsi, le processus de polarisation pourrait être optimisé, conduisant à la fabrication de matériaux possédant des coefficients piézoélectriques très conséquents. Une autre application susceptible de bénéficier de cette amélioration est liée au processus de production de câbles de type capteurs cylindriques piézoélectriques.

#### 4.2.2. Préparation des échantillons

Les échantillons étudiés sont des films minces (12  $\mu\text{m}$ ) de poly (vinylidène fluorure – trifluoroéthylène) (PVDF-TrFE (65% - 35%)) (figure 4.1). Ils ont été préparés à l'Institut de physique de l'université de Potsdam.

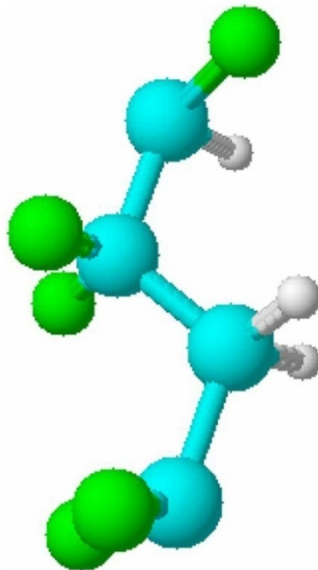
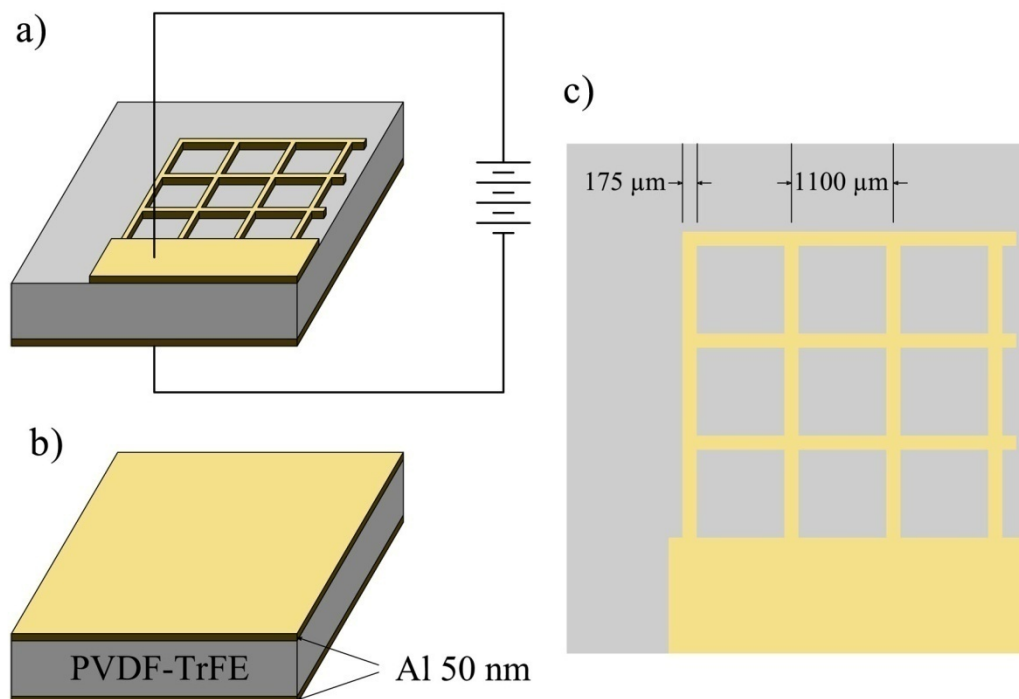


Figure 4.1. PVDF-TrFE (65% - 35%)



Le PVDF-TrFE est un copolymère du PVDF qui possède d'excellentes propriétés mécaniques et une bonne résistance aux produits chimiques. Il montre également une plus grande stabilité thermique que le homopolymère, et une meilleure tenue en champ. Puisque la diffusivité thermique de l'électrode en métal est d'un ordre de grandeur trois fois plus grand que celle du film de polymère, les échantillons ont besoin d'une forme très bien définie d'électrode en métal afin de réduire au minimum la contrainte thermique.

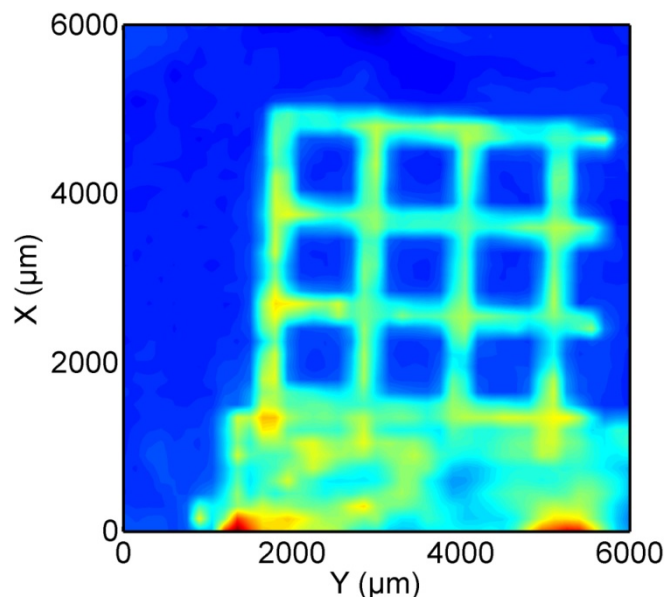
Ces échantillons ont été polarisés suivant un motif réalisé avec une électrode en forme de grille. Un masque de forme de peigne avec 4 bras d'aluminium a été découpé dans une feuille d'aluminium avec le même laser Nd:YAG utilisé pour les mesures TPT mais utilisé à son énergie d'impulsion maximale. L'électrode supérieure a été réalisée en deux étapes : deux métallisations d'aluminium de 50 nm avec le masque en forme de peigne dans deux directions perpendiculaires (figure 4.2.a). Afin de bien polariser l'échantillon sous un champ supérieur au champ coercitif ( $>70$  MV/m), une électrode arrière d'aluminium de 50 nm a été réalisée. Après polarisation, l'électrode supérieure en forme de grille a été chimiquement enlevée et une autre électrode d'aluminium de 50 nm couvrant toute la surface de l'échantillon a été évaporée (figure 4.2.b).



**Figure 4.2.** Préparation des échantillons de PVDF-TrFE (65%-35%) avec (a) l'électrode en forme de grille d'Al utilisée pour la polarisation (b) l'électrode finale d'Al utilisée pour les mesures de FLIMM et TPT et (c) géométrie de l'électrode en forme de grille d'Al en détail

### 4.2.3. Résultats obtenus par la méthode FLIMM

La nouvelle stratégie de mesure de la méthode FLIMM (voir 2.8) a été appliquée sur ces échantillons. Afin de connaître les zones de polarisation de l'échantillon, une cartographie à une profondeur sélectionnée a été réalisée dans un temps court, avec une faible résolution latérale, par un balayage de la surface de l'échantillon à une fréquence fixe. Ainsi, une cartographie globale de polarisation a été obtenue, à une profondeur  $4,4 \mu\text{m}$  ( $f = 1 \text{ kHz}$ ) avec un grand pas de mesure ( $150 \mu\text{m}$ ) comme le montre la figure 4.3. Il est important de noter que les détails de la grille de l'électrode sont très bien reproduits et que la distribution spatiale de la polarisation n'est pas uniforme suivant la longueur de la grille.

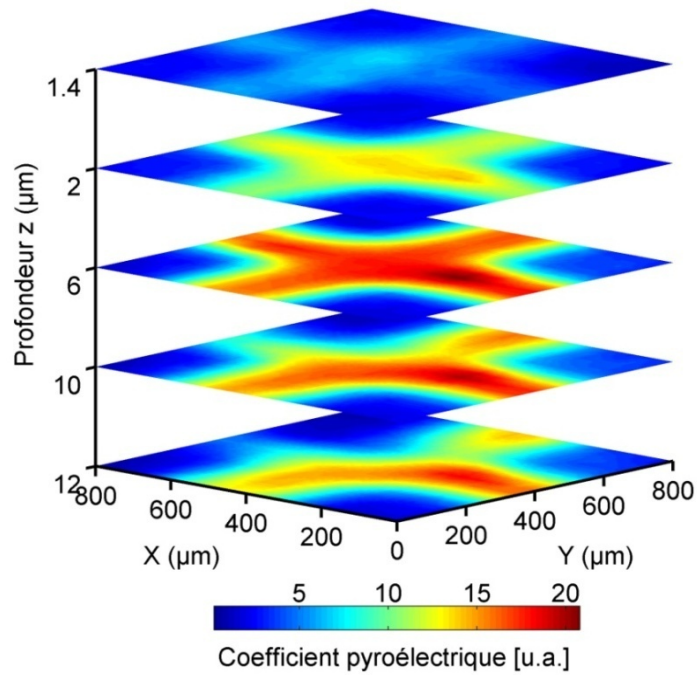


**Figure 4.3.** Cartographie de polarisation avec une faible résolution spatiale latérale par FLIMM pour  $z = 4,4 \mu\text{m}$  ( $f = 1 \text{ kHz}$ )

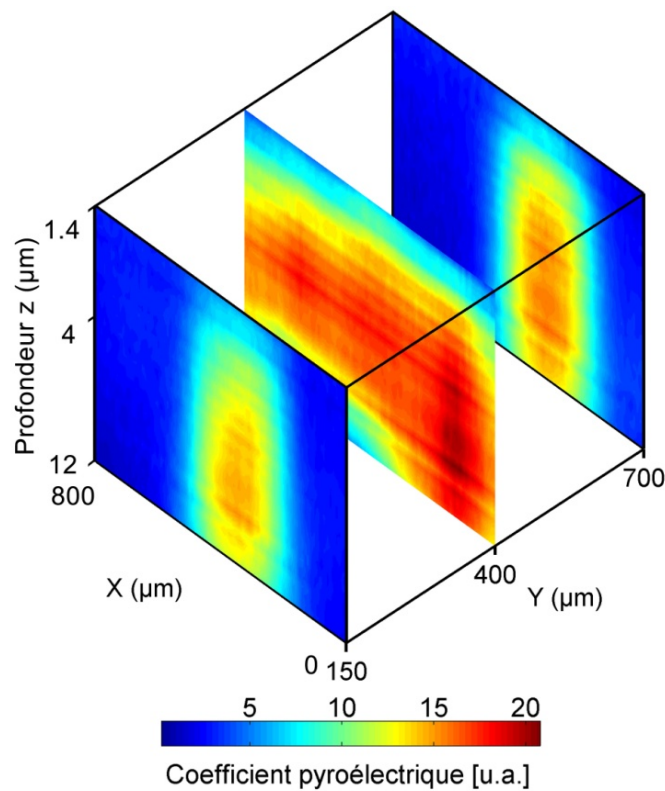
A partir de ces premières mesures, une zone autour d'une croix de la grille a été choisie pour étudier plus précisément la polarisation de PVDF-TrFE en profondeur. Les mesures de courant ont été effectuées avec un pas de mesure de  $50 \mu\text{m}$ , dans une gamme de fréquences comprises entre  $105 \text{ Hz}$  et  $10 \text{ kHz}$  et avec une taille de spot du faisceau laser de  $10 \mu\text{m}$ .

La cartographie 3D de polarisation (figure 4.4) montre que la polarisation commence à partir de  $2 \mu\text{m}$  de profondeur. Des non-uniformités de la polarisation en profondeur sont nettement observées. Pour mieux comprendre ce phénomène, des balayages suivant l'axe X ( $Y = 150, 400 \text{ et } 700$ ) et suivant l'axe Y ( $X = 150, 350 \text{ et } 650$ ) ont été effectués, avec un pas

de mesure de 10  $\mu\text{m}$ . Les résultats obtenus sont représentés dans les figures 4.5 et 4.6. Il est à noter que l'on distingue parfaitement la zone polarisée et la zone non polarisée.



**Figure 4.4.** Cartographie 3D haute résolution de polarisation réalisée par FLIMM pour différentes profondeurs avec une taille de spot de 10  $\mu\text{m}$



**Figure 4.5.** Cartographie de polarisation suivant l'axe  $X$  ( $Y = 150, 400$  et  $700 \mu\text{m}$ )

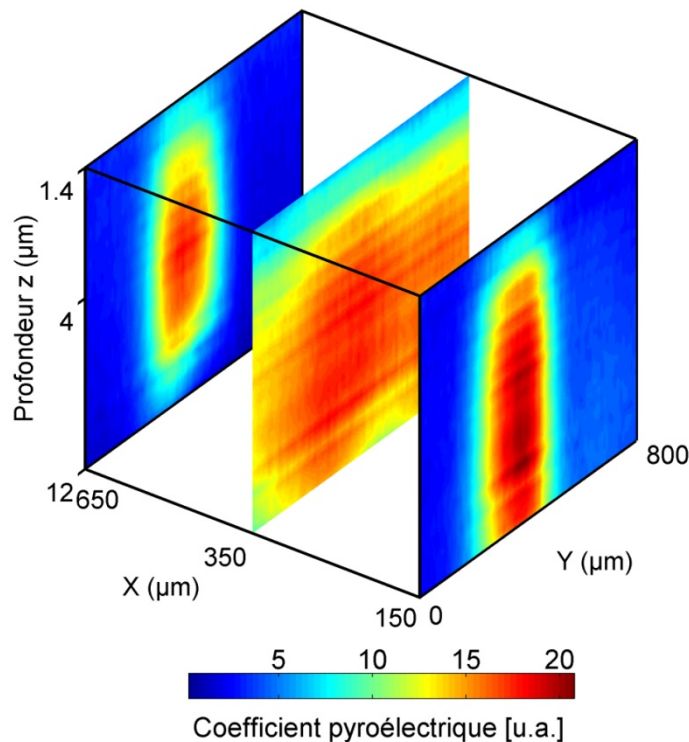
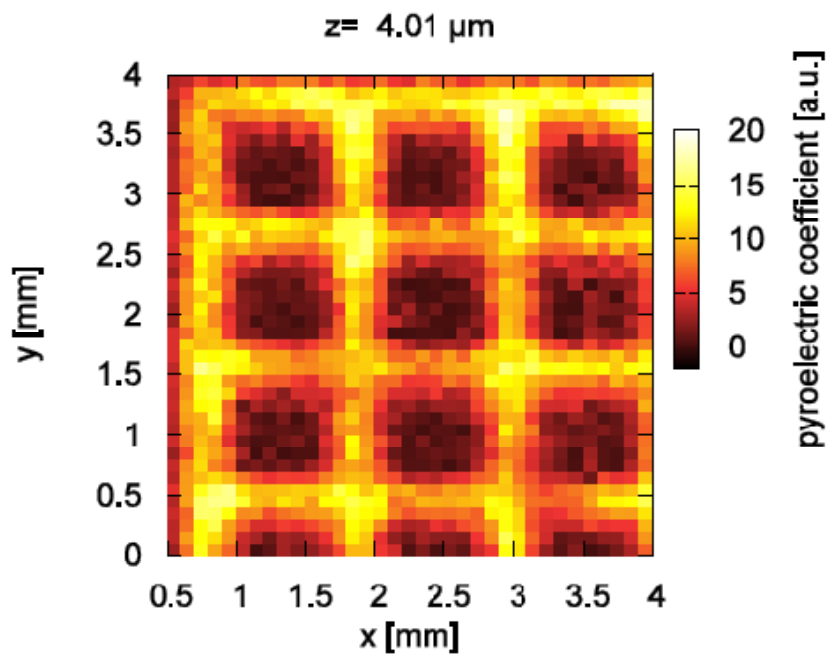


Figure 4.6. Cartographie de polarisation suivant l'axe Y ( $X = 150, 350$  et  $650 \mu\text{m}$ )

#### 4.2.4. Résultats obtenus par la méthode TPT

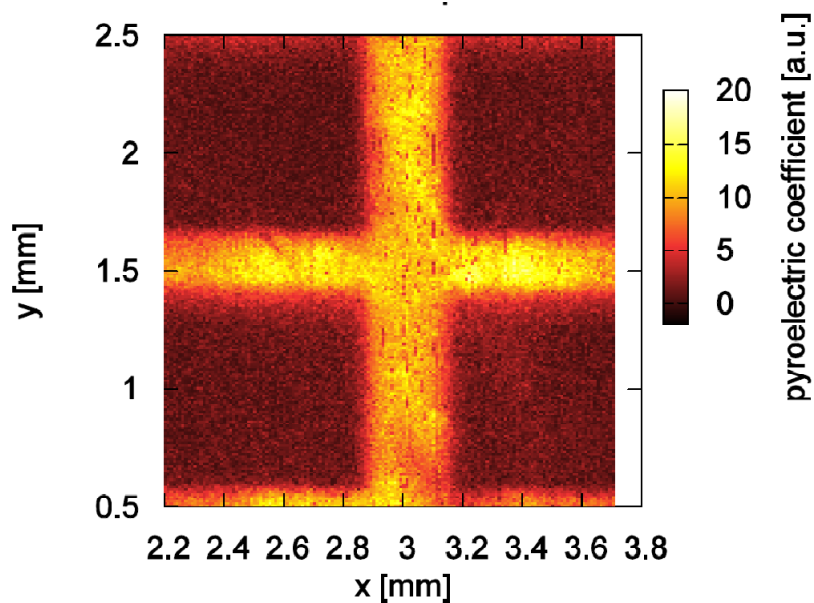
Dans un premier temps, une cartographie globale de polarisation a été réalisée avec un grand pas de mesure ( $100 \mu\text{m}$ ) et une taille de spot du faisceau laser de  $500 \mu\text{m}$ . Les résultats présentés montrent que les détails de la grille de l'électrode sont parfaitement reproduits (figure 4.7).

De la même manière que pour les mesures FLIMM, une cartographie 3D haute résolution sur une croix de la grille d'électrode a été effectuée avec un pas de mesure de  $10 \mu\text{m}$  et une taille de spot du faisceau laser de  $35 \mu\text{m}$ . Une inhomogénéité de la polarisation peut être également remarquée (figure 4.8). La dépolarisation près de la surface et des inhomogénéités sur les films de PVDF et de PVDF-TrFE ont été déjà observées sur des films ou des câbles de type capteurs <sup>[PLO 92], [SUA 06], [PLO 94], [MEL 08]</sup>.

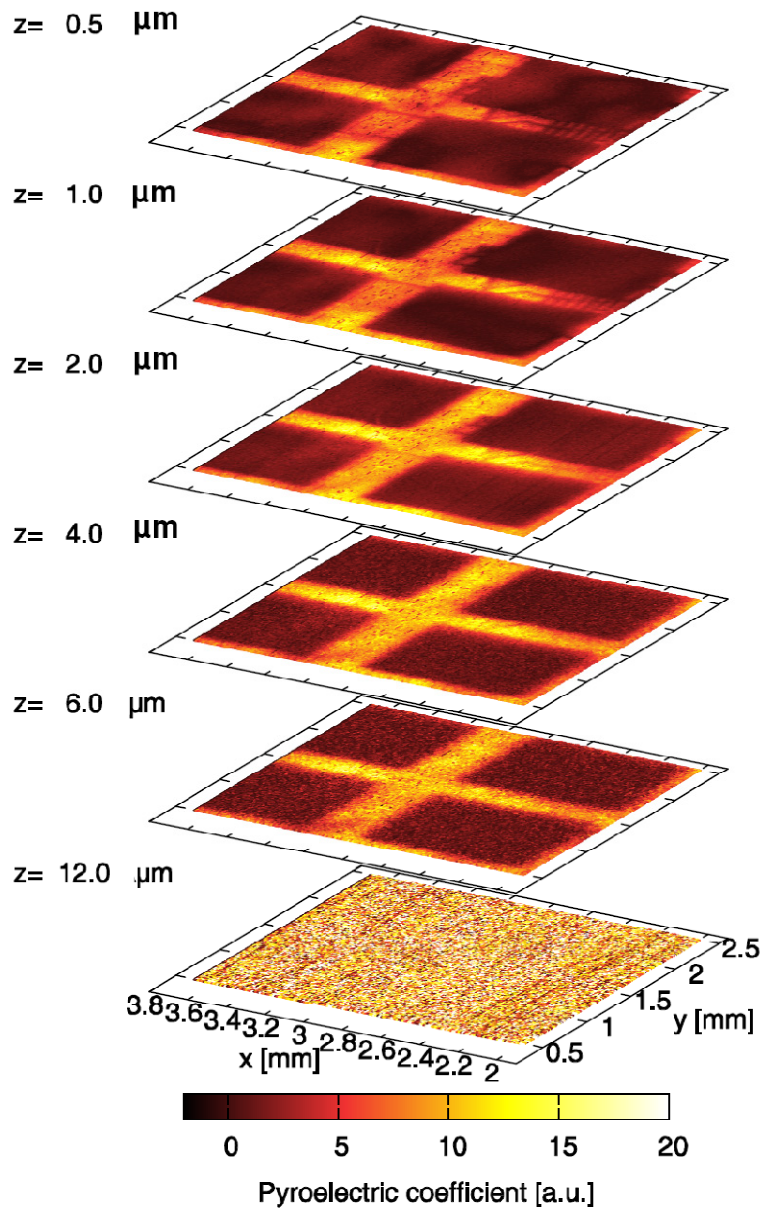


**Figure 4.7.** Cartographie de polarisation avec une faible résolution spatiale latérale par TPT pour  $z = 4,01 \mu\text{m}$

Comme nous pouvons remarquer, la technique TPT permet d’avoir une meilleure résolution spatiale proche de la surface de l’échantillon, des images étant obtenues à partir de  $0,5 \mu\text{m}$ . Par contre, à  $z = 12 \mu\text{m}$ , la méthode FLIMM peut reconstruire la forme de la croix (figure 4.4) tandis que la méthode TPT ne donne pas une bonne résolution (figure 4.9).



**Figure 4.8.** Cartographie 3D haute résolution de polarisation réalisée par TPT pour  $z = 4 \mu\text{m}$

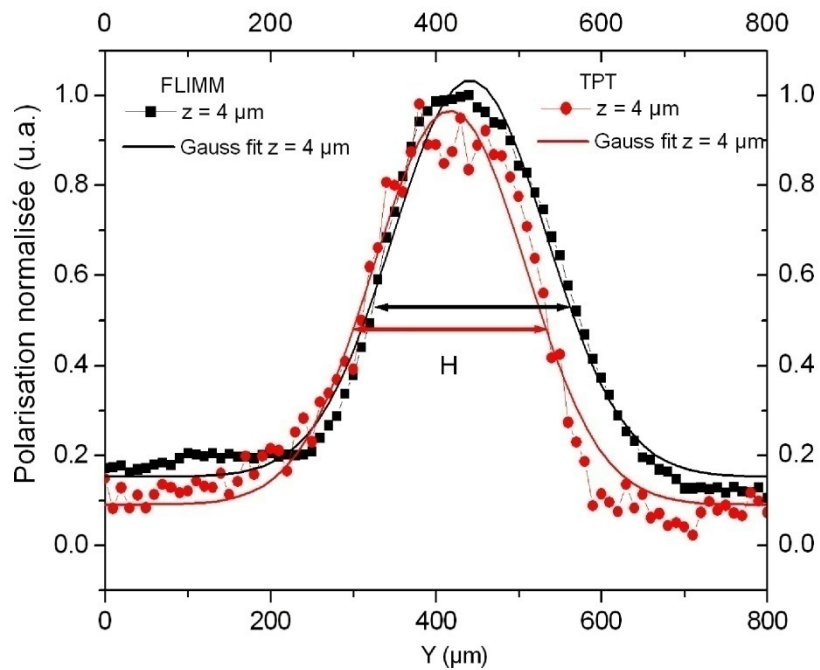


**Figure 4.9.** Cartographie 3D haute résolution de polarisation réalisée par TPT pour différentes profondeurs

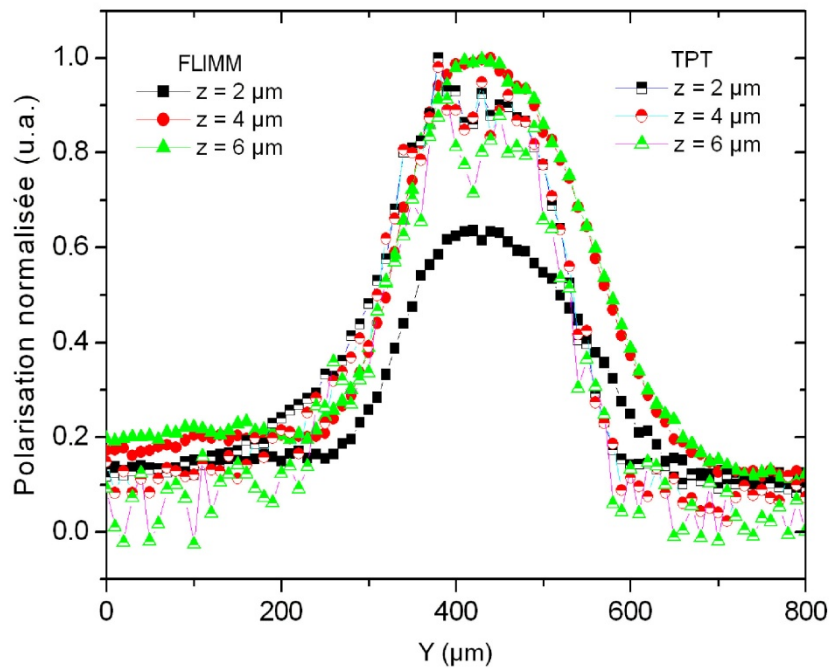
On note que la résolution spatiale dans le volume diminue en profondeur. Ce phénomène est dû à la diffusion forte de la chaleur dans l'électrode en métal <sup>[MEL 05c]</sup>.

#### 4.2.5. Discussion des résultats

Afin de comparer les performances des deux méthodes, des mesures de polarisation suivant l'axe Y ont été effectuées. Les données obtenues ont été normalisées et approximées par une gaussienne. La largeur à mi-hauteur  $H$  représentant la largeur de la grille d'électrode a été également calculée. Les résultats sont représentés dans les figures 4.10 et 4.11.



**Figure 4.10.** Distributions spatiales de la polarisation normalisée et interpolée par la loi de Gauss pour  $z = 4 \mu\text{m}$ . FLIMM :  $X = 150 \mu\text{m}$ ,  $H = 186 \mu\text{m}$ ; TPT :  $X = 2700 \mu\text{m}$ ,  $H = 183 \mu\text{m}$



**Figure 4.11.** Distributions spatiales de la polarisation normalisées pour différentes profondeurs. FLIMM :  $X = 150 \mu\text{m}$ , TPT :  $X = 2700 \mu\text{m}$

Pour résumer, le tableau 4.1 présente les valeurs de la largeur à mi-hauteur  $H$ . Ces valeurs pour deux méthodes sont quasi identiques et proches de la largeur de la grille

d'électrode, ce qui prouve que la FLIMM et TPT sont tout à fait adaptées pour l'étude de polarisation des films minces.

H ( $\mu\text{m}$ ) z ( $\mu\text{m}$ )	FLIMM	TPT
2	183	185
4	186	183
6	186	186

**Tableau 4.1.** Largeur à mi-hauteur pour la méthode FLIMM et TPT

En conclusion, nous pouvons dire qu'il y a une très bonne corrélation entre les résultats obtenus par les méthodes FLIMM et TPT. La tomographie 3D de profils de polarisation obtenue par deux méthodes a montré que la polarisation à l'intérieur de l'échantillon a la même géométrie que l'électrode-grille. La méthode TPT donne des résultats plus rapidement tandis que la méthode FLIMM possède une très bonne résolution spatiale et latérale. Ainsi, ces deux méthodes apparaissent comme deux techniques complémentaires pour l'étude de polarisation des films minces.

### 4.3. Etude du PEN irradié par UV

Sous l'action de nombreux facteurs, plusieurs mécanismes peuvent être impliqués dans le vieillissement des polymères isolants sous des contraintes électriques. Parmi ces facteurs, l'irradiation UV est identifiée pour leur effet dégradant sur beaucoup de matériaux polymères isolants. Les sources d'irradiation UV sont nombreuses : décharges partielles, décharges parasites (ambiantes) ou lumière ambiante. Ces rayons UV entraînent des coupures de chaînes des polymères et probablement les réticulations. En conséquence, des changements dans les propriétés chimiques mènent à des modifications des propriétés électriques.

Notre travail est la suite des travaux précédents <sup>[PET 04c]</sup> qui ont montrés la complémentarité de techniques FLIMM et d'électroluminescence pour l'étude des



phénomènes de vieillissement induit par les UV. Le but est ici d'étudier plus précisément les effets de photo-dégradation en réalisant des cartographies 3D de charges d'espace par la méthode FLIMM. La cartographie 3D de charges d'espace est un outil important qui peut apporter une réponse concernant la distribution des zones endommagées par les UV. En outre, l'étude du comportement du PEN irradié par UV en présence de forts champs électriques sont également abordé.

#### 4.3.1. Matériau étudié

Le poly(éthylène 2, 6-naphtalène) (PEN) appartient à la même famille chimique que le polyéthylène téréphtalate (PET), les polyesters aromatiques saturés. Bien que la demande en PET soit considérable, les propriétés thermiques et mécaniques plus importantes du PEN sont souhaitées pour certaines applications.

Ce polymère a été synthétisé pour la première fois vers 1948, mais son utilisation industrielle est en revanche plus récente. Grâce à ses propriétés supérieures aux autres polymères, il est de plus en plus utilisé en Génie Electrique, notamment pour la fabrication des circuits imprimés flexibles, comme isolants électriques ou encore comme support pour les films photographiques.

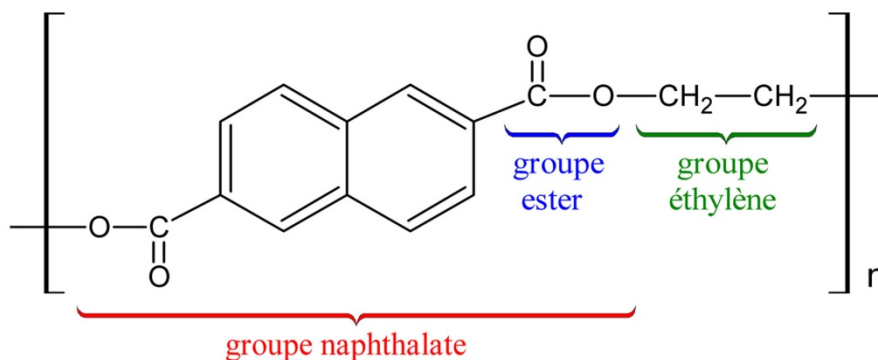
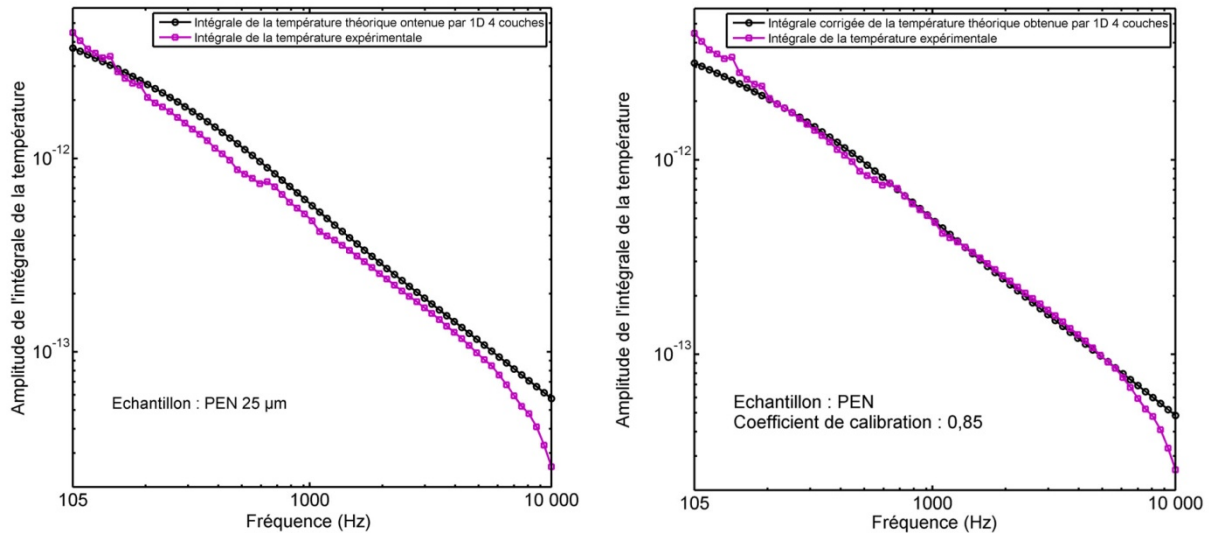


Figure 4.12. Formule chimique du PEN

#### 4.3.2. Calibration du niveau de charge

Les films utilisés dans nos mesures sont des films minces de PEN de 25  $\mu\text{m}$ , provenant de Dupont Teijin Films. Ces films ont été métallisés sur les deux faces avec une couche d'or de 50 nm. Etant donné que le PEN est un matériau polaire, une tension de -500 V et 500 V a

été appliquée aux échantillons pendant 10 minutes à température ambiante lors de la phase de calibration. Des mesures de courant FLIMM avec un faisceau non focalisé pour une gamme de fréquence comprise entre 105 Hz et 10 kHz sont réalisées immédiatement après la déconnexion de la source HT.



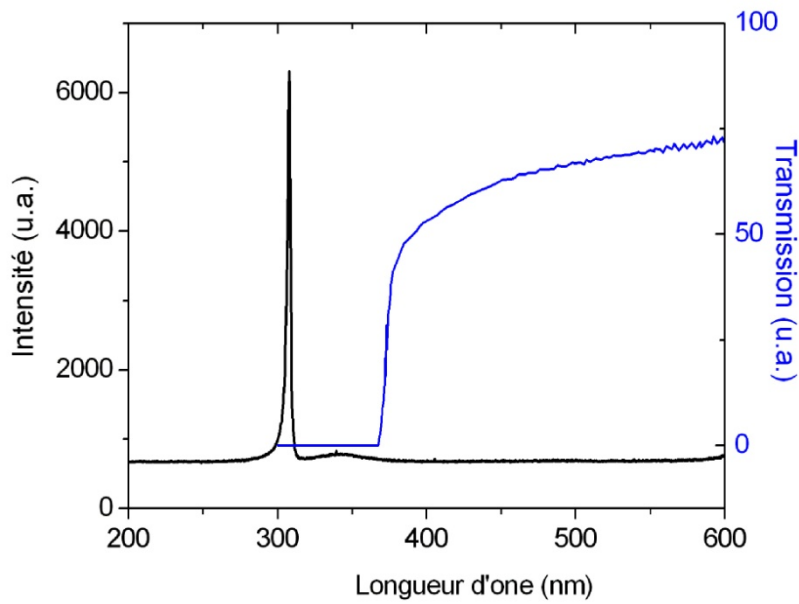
**Figure 4.13.** Intégrale théorique et expérimentale de la température avant et après calibration pour les PEN de 25 µm

Les courbes de la figure 4.13 donnent les valeurs théoriques corrigées et non corrigées et les valeurs expérimentales de l'intégrale de la température pour les échantillons de PEN de 25 µm. Nous pouvons déterminer un coefficient de calibration de 0,85. Ce coefficient de calibration sera utilisé pour corriger l'amplitude de la distribution de charge dans l'échantillon.

#### 4.3.3. Préparation des échantillons

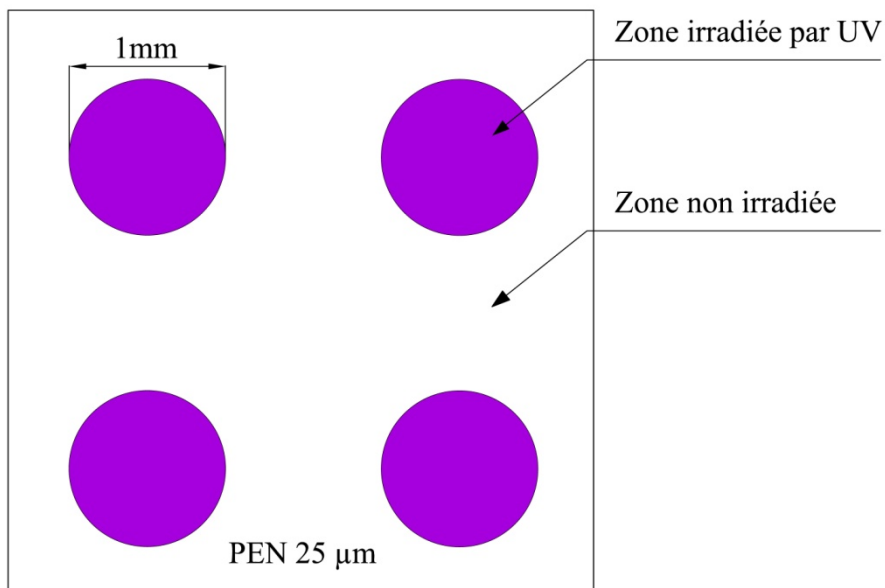
Le vieillissement des échantillons a été induit par des rayons UV d'une lampe à décharge à barrière diélectrique (DBD) <sup>[XU 01]</sup>, dont les caractéristiques sont présentées dans la figure 4.14. Dans le spectre d'émission de la lampe, on remarque un rayonnement à 308 nm très intense par rapport aux autres raies.

Le spectre de transmission d'un film vierge de PEN de 25 µm est également présenté dans la figure 4.14. Comme le PEN absorbe que dans la zone des UV, la lampe va essentiellement induire une photo-dégradation du matériau.



**Figure 4.14.** Spectre de la lampe à décharge barrière diélectrique, insolation à 308nm, densité de puissance :  $13,5 \text{ mW/cm}^2$  et spectre de transmission d'un film vierge de PEN de  $25 \mu\text{m}$

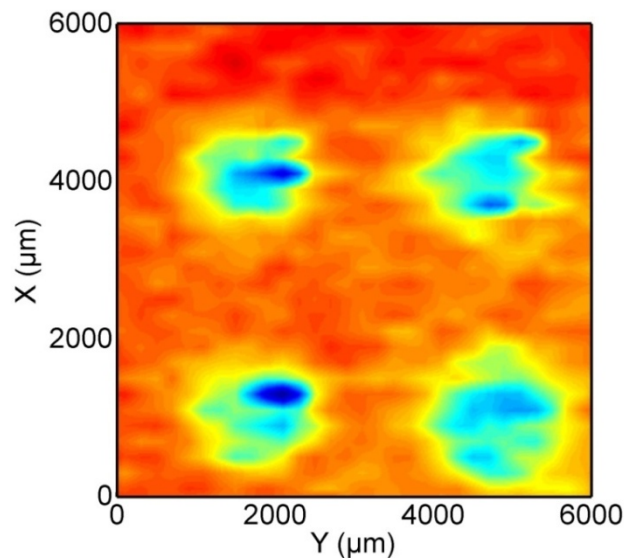
L'échantillon a été protégé par un masque, et seulement quatre zones circulaires de 1 mm de diamètre ont été irradiées pendant 48 h. Après l'irradiation, une couche semi transparente d'or de 50 nm a été déposée sur les deux faces de l'échantillon par sputtering. Enfin une tension continue de 2000 V a été appliquée aux échantillons pendant 10 minutes à température ambiante.



**Figure 4.15.** Préparation des films minces de PEN de  $25 \mu\text{m}$  irradiés par UV

#### 4.3.4. Cartographie 3D de charges d'espace

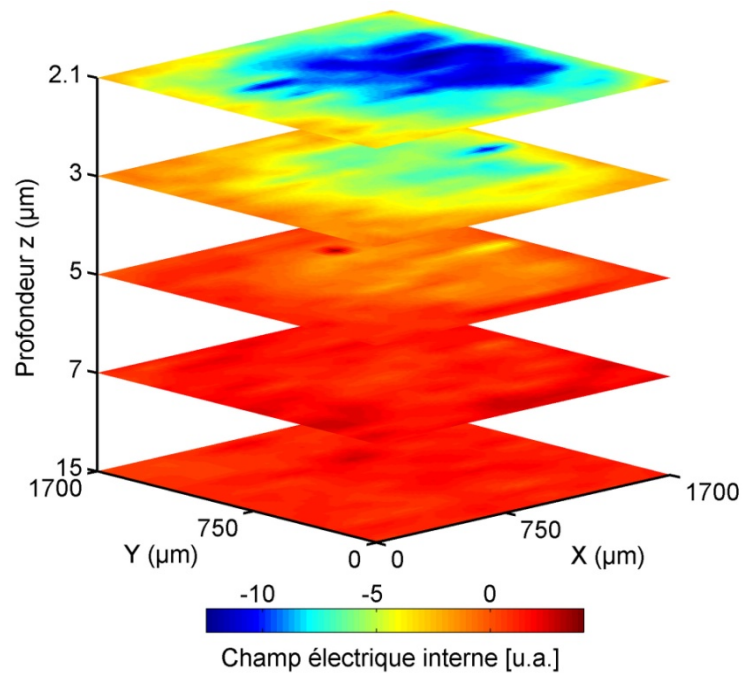
En appliquant la nouvelle stratégie de mesure de la méthode FLIMM (voir 2.8), une cartographie globale du champ électrique interne a été réalisée, à une profondeur  $2,1 \mu\text{m}$  ( $f = 10 \text{ kHz}$ ) avec un grand pas de mesure ( $200 \mu\text{m}$ ) comme le montre la figure 4.16. On remarque que le champ électrique interne n'est pas uniforme dans le plan de mesure. Dans les quatre zones irradiées par UV, ce champ est plus grand que celui dans les zones non irradiées.



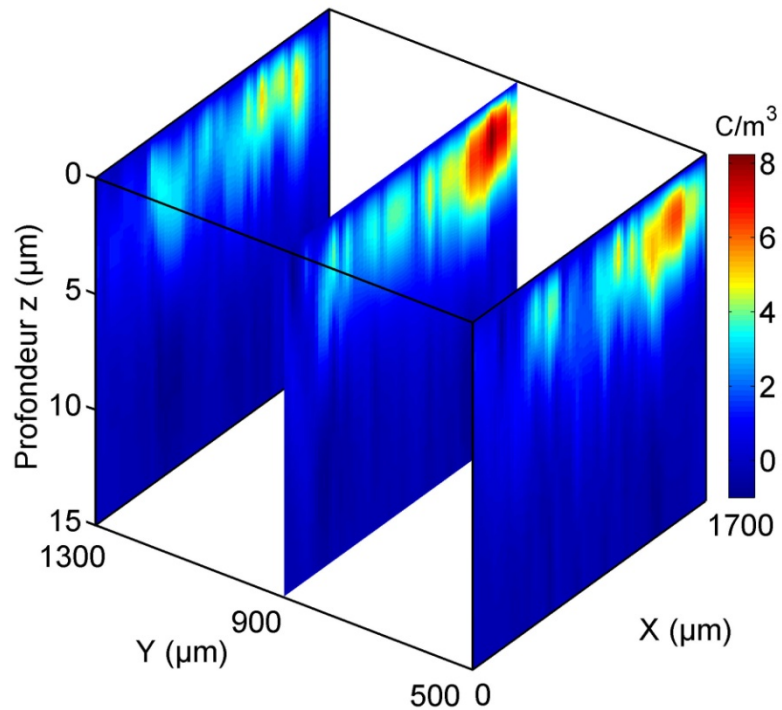
**Figure 4.16.** Cartographie globale du champ électrique interne à  $z = 2,1 \mu\text{m}$  ( $f = 10 \text{ kHz}$ ) avec grand pas de mesure de  $200 \mu\text{m}$

A partir de ces premières mesures, un cercle a été choisi pour étudier plus précisément la distribution de charges en profondeur. Les mesures de courant FLIMM ont été effectuées avec un pas de mesure de  $100 \mu\text{m}$ , à 5 fréquences comprises entre  $105 \text{ Hz}$  et  $10 \text{ kHz}$  et avec une taille de spot du faisceau laser de  $10 \mu\text{m}$ . Le résultat obtenu est montré dans la figure 4.17.

La diminution du champ électrique interne en profondeur est bien distinguée respectivement. A partir de  $5 \mu\text{m}$  en profondeur, le champ électrique interne devient très faible. Pour mieux comprendre ce phénomène, des balayages suivant l'axe X en profondeur avec un pas de mesure de  $50 \mu\text{m}$  et une taille de spot du faisceau laser de  $10 \mu\text{m}$  ont été réalisés, les résultats obtenus sont représentés dans la figure 4.18.



**Figure 4.17.** Cartographie 3D du champ électrique interne pour différentes profondeurs



**Figure 4.18.** Cartographie de charges d'espace suivant l'axe  $X$  pour différentes  $Y$  (500, 900, 1300)

On note que l'une accumulation des charges a lieu d'une façon non homogène à la surface de l'échantillon. Ce résultat est tout à fait attendu, étant donné que la photo-

oxydation du matériau induite par l'irradiation UV est un phénomène de surface. Les effets des UV sur le PEN ont été également étudiés par microprofilométrie IR [SCH 97]. Les auteurs ont montré que la photo-oxydation du matériau n'excède pas 10  $\mu\text{m}$ . Ce résultats est en accord avec celui obtenu par la méthode FLIMM. En effet, les cartographies de charges d'espace montrent que les charges sont confinées dans une zone proche de la surface, sur environ 5  $\mu\text{m}$  de profondeur.

En outre, la zone dégradée à la surface de l'échantillon devient très absorbante, provoquant le jaunissement du matériau constituant ainsi un écran de protection pour le reste du matériau. Ce phénomène de surface a été également mis en évidence par des mesures de photoluminescence [MAR 01].

Cependant, la surface de photo-dégradation n'est pas homogène. Ce résultat peut être directement lié à l'hétérogénéité du matériau, mais également aux propriétés locales de l'interface de métal-polymère qui influencent sur l'injection de porteurs.

#### 4.3.5. PEN soumis à hauts champs

Les cartographies de charges d'espaces sur les PEN irradiées par UV ont montré l'implantation des charges dans une zone très proche de la surface. Pour mieux comprendre ce phénomène, le comportement du PEN irradié par UV est étudié en présence de forts champs électriques.

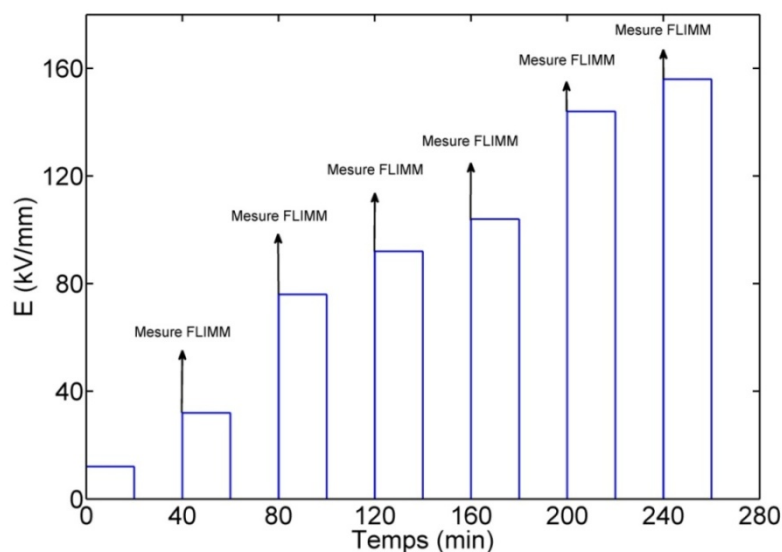
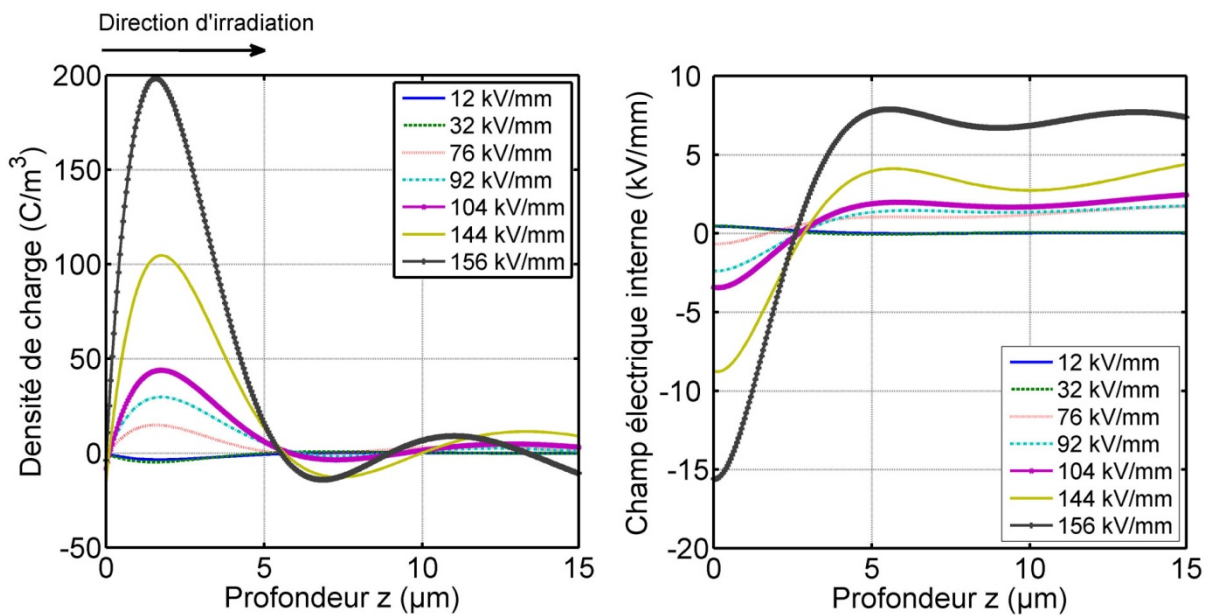


Figure 4.19. Protocole de mesure

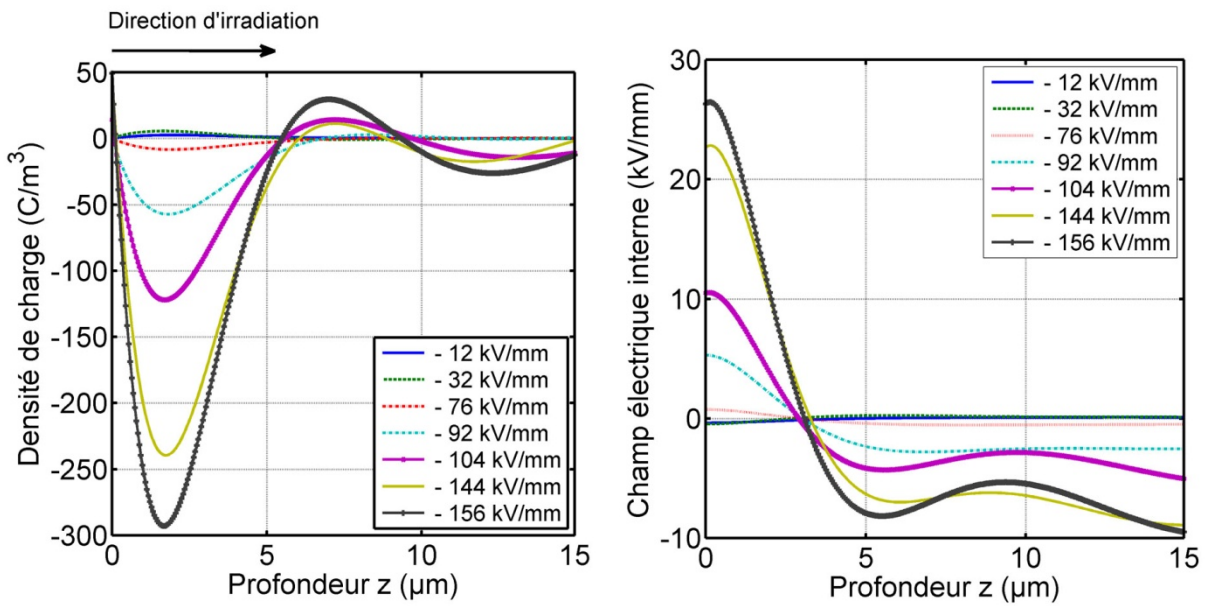
Les échantillons ont été irradiés pendant 48 h par les rayons UV. Après l'irradiation, une couche semi transparente d'or de 50 nm a été déposée sur les deux faces de l'échantillon par sputtering. Puis, ils ont été polarisés à température ambiante pendant 20 minutes à un champ compris entre  $\pm 12$  kV/mm et  $\pm 156$  kV/mm. Après chaque polarisation, les films sont ensuite mis en court-circuit pendant 20 minutes avant d'effectuer les mesures FLIMM (figure 4.19).

Les figures 4.20 et 4.21 représentent les profils de densité de charges et de champ électrique interne obtenus par la méthode FLIMM après 20 minutes de dépolarisation, pour chacun des paliers de champ appliqué.

Dans la zone proche de la surface de l'échantillon, on remarque une accumulation d'homocharges qui augmentent avec le champ.

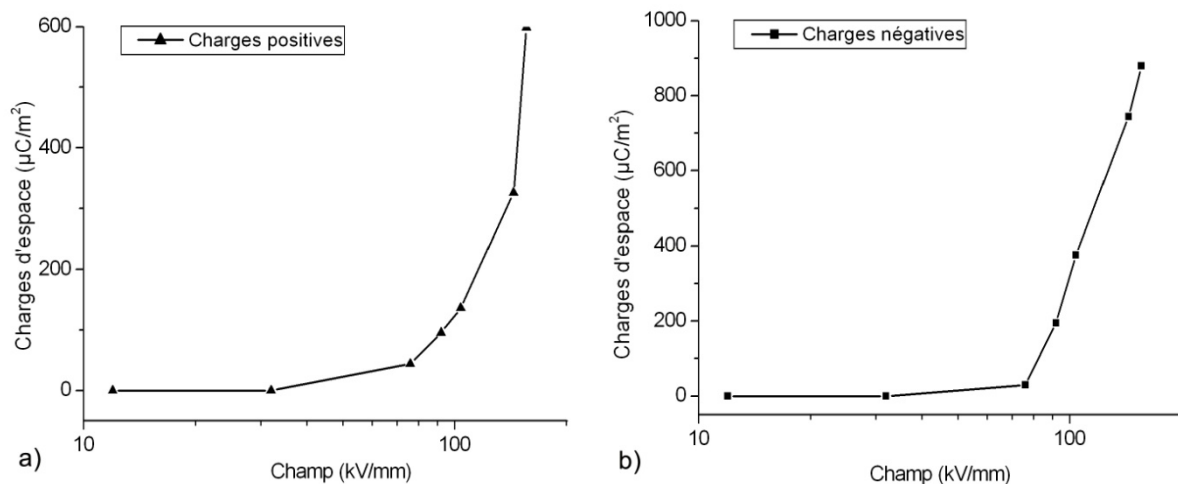


**Figure 4.20.** Evolution des profils de distribution de charge et de champ électrique interne en fonction du champ appliqué positif



**Figure 4.21.** Evolution des profils de distribution de charge et de champ électrique interne en fonction du champ appliqué négatif

A partir des profils de distribution de charges, nous avons calculé la valeur moyenne de la densité d'homocharges situées dans la zone proche de la surface irradiée, sur une épaisseur de 5  $\mu\text{m}$  de l'électrode. Les valeurs obtenues pour chaque courbe sont présentées dans la figure 4.22.



**Figure 4.22.** Densité d'homocharges en fonction du champ appliqué sur une épaisseur de 5  $\mu\text{m}$  de l'électrode. (a) Charges positives, (b) Charges négatives.



D'après ces courbes, nous pouvons distinguer trois zones, qui correspondent aux zones mises déjà en évidence par Augé et al. [AUG 00] par des mesures de  $I(V)$  et par électroluminescence sur les PEN vierges.

A faible champ (12 – 76 kV/mm), la densité de charges est très faible. Elle est probablement associée à une orientation dipolaire et il n'y a pas d'injection d'homocharges. Dans la gamme de 76 kV/mm à 130 kV/mm, nous assistons à une injection de charges à partir des électrodes. Cette injection devient très importante pour des champs supérieurs à 130 kV/mm.

Dans des études précédentes sur des échantillons de PEN vierges soumis à hauts champs [PET 04b], [AUG 00], on a montré que l'injection massive de charges avait lieu pour des champs supérieurs à 160 kV/mm. Pour les échantillons de PEN non irradié, ce champ limite pour lequel il y a une injection massive de charge est supérieur à celui mis en évidence pour les échantillons irradiés par les rayons UV (130 kV/mm). Ceci peut être expliqué par l'effet dégradant des UV sur des matériaux polymères isolants. Ces rayons UV entraînent des coupures de chaînes des polymères et probablement les réticulations. En conséquence, les changements des propriétés chimiques mènent à la modification des propriétés électriques qui favorise l'accumulation de charges sous l'action du champ.

Il est très intéressant de noter que le niveau de charges accumulées pour le champ appliqué négatif est supérieur à celui pour le champ appliqué positif. Ce phénomène peut être dû aux effets de photo-dégradation qui peuvent faciliter l'accumulation d'homocharges négative par rapport à celle positive.

Les résultats obtenus par la méthode FLIMM sont en accord avec ceux obtenus par d'autres auteurs par des mesures de courant et d'EL sur les PEN.

## **4.4. Etude de PTFE irradié par un faisceau d'électrons monoénergétique**

### ***4.4.1. Contexte de l'étude***

L'espace est un milieu complexe et dynamique. Il est empli de champs gravitationnels, constitué de manière dont la densité devient extrêmement faible, également traversé par les

rayons cosmiques et par un très large spectre de radiations corpusculaires, mais aussi occupé par des champs magnétiques plus ou moins intenses. Sur un satellite, le bon fonctionnement d'un équipement embarqué dépend de sa température. Le contrôle thermique utilise principalement, et aussi souvent que possible, les solutions passives que sont les radiateurs de contrôle thermique et les isolations externes. Les matériaux mis en jeu sont essentiellement des polymères diélectriques, soumis directement à l'environnement spatial [REM 07]. En effet, ces matériaux sont exposés à une ambiance radiative définie par des facteurs naturels (vide, radiations solaires, flux de particules chargées, micrométéorites, oxygène atomique en orbite basse), qui peuvent altérer fortement les propriétés de ces derniers. La présence de charges en surface ou dans le volume du diélectrique entraîne alors des majorations locales du champ électrique qui, lorsqu'il atteint une valeur critique, produit une décharge électrostatique. Cet événement peut avoir de lourdes conséquences, allant de la perte partielle d'un équipement jusqu'à la perte totale de la mission [PER 07].

Dans le cadre d'un projet de collaboration avec le CNES et l'ONERA, le but de ce travail était d'étudier des phénomènes de transport de charges dans les diélectriques irradiés par un faisceau d'électrons monoénergétique.

#### 4.4.2. Matériau étudié

Le PolyTétraFluoroEthylène (PTFE), dont la formule chimique est présentée sur la figure 4.23, est un polymère fluorocarboné, aussi appelé Téflon. Cette appellation désigne souvent par défaut la famille des fluoro-polymères associés. Nous utiliserons des films produits par la firme Goodfellow, semicristallin, semi-opaque et blanc.

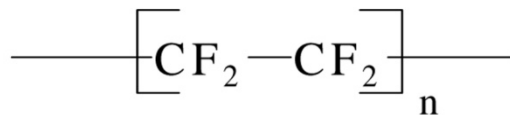


Figure 4.23. Structure chimique du PTFE

Le PTFE est insoluble, sa densité est de 2,2 g/cm<sup>3</sup> et sa température de fusion est située entre 260 et 280 °C. Ce matériau présente une totale résistance aux produits chimiques et une bonne tolérance aux basses et hautes températures. Il offre une très bonne résistance électrique : la rigidité diélectrique est d'environ 160 kV/mm et la constante diélectrique vaut

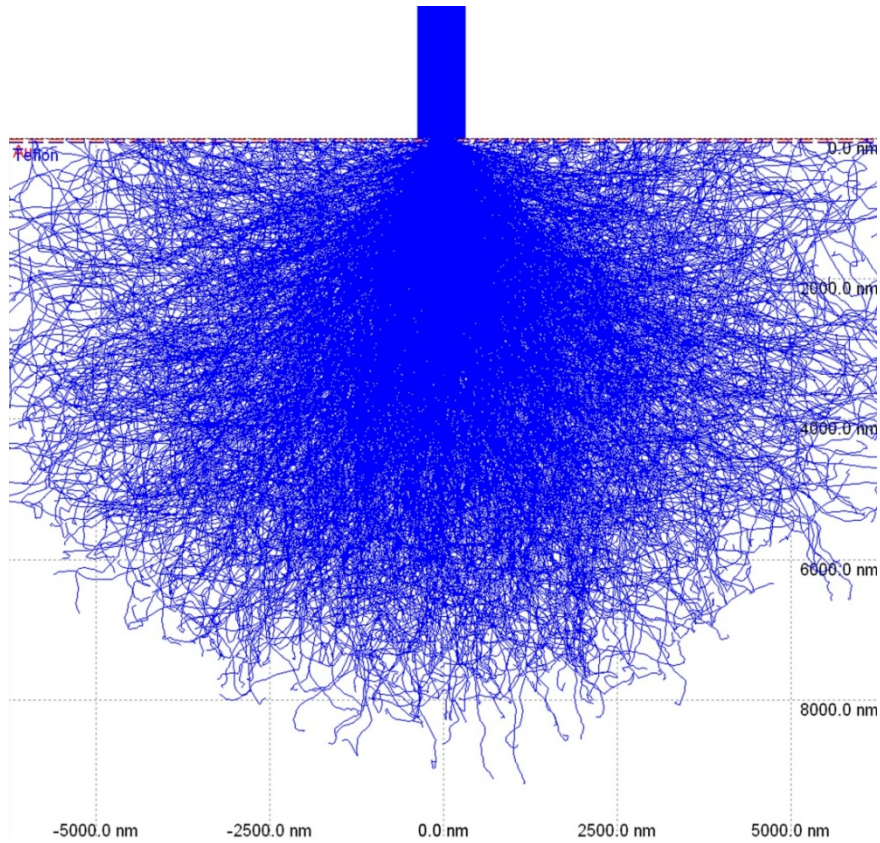
2,2 à 1 kHz. On le retrouve dans de nombreuses applications (aérospatiales, alimentaires, industrielles et médicales). Il est notamment utilisé comme isolant dans les câbles électriques des satellites.

#### **4.4.3. Simulation par CASINO V2.42**

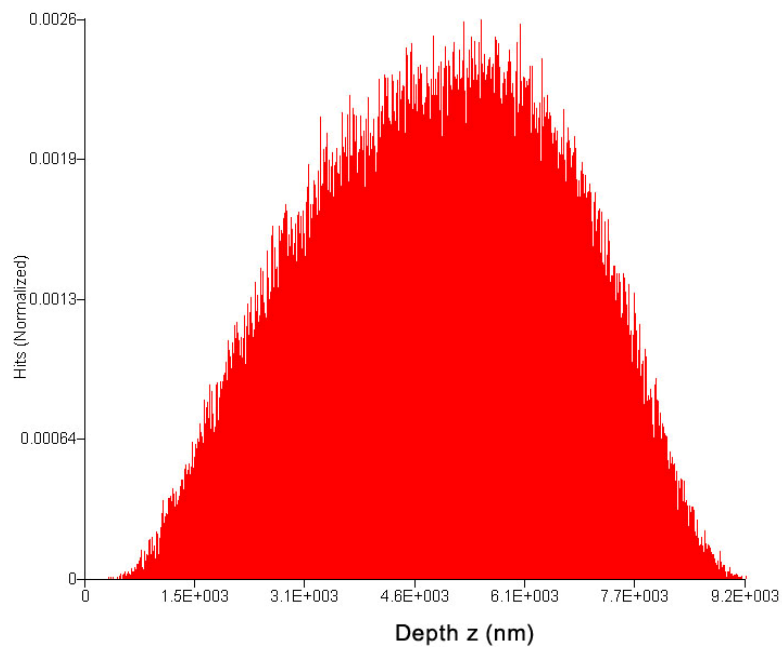
L'irradiation des matériaux diélectriques par des électrons énergétiques s'accompagne de nombreux phénomènes complexes, notamment l'émission électronique secondaire, l'émission photonique, le piégeage de charges, la luminescence etc. Lors du cheminement d'un électron incident d'énergie  $E_0$  dans un échantillon solide, on distingue habituellement deux types d'interactions concomitantes, les interactions élastiques et les interactions inélastiques [DAP 03]. L'interaction est élastique lorsqu'un électron pénétrant dans la zone d'influence du potentiel qui règne autour d'un cœur ionique est dévié sans perte d'énergie appréciable. Si l'énergie de l'électron varie d'une manière significative, par exemple en transmettant une partie de son énergie à un électron d'une couche atomique, l'interaction est dite inélastique. Au gré de ces deux types d'interaction, les électrons incidents empruntent des parcours aléatoires dans la matière jusqu'à la perte totale de leur énergie cinétique. Le lieu de l'ensemble de ces interactions est appelé volume ou « poire d'interaction ».

Le calcul des trajectoires et la profondeur maximale de pénétration des électrons a été effectué par un programme de simulation appelé CASINO V2.42 [DOM 07]. Ce programme simule les trajectoires d'électrons dans les solides par une méthode de Monte Carlo. Ce logiciel est disponible sur le site internet du Département de génie électrique et génie informatique de l'Université de Sherbrooke au Canada. Ce modèle doit être renseigné avec des paramètres importants comme la composition chimique, l'énergie d'excitation et la densité du matériau.

Les trajectoires des électrons obtenus par ce logiciel sur un PTFE de 50  $\mu\text{m}$ , métallisé sur les deux faces avec une couche d'or de 50 nm, sont représentées dans la figure 4.24.



**Figure 4.24.** Trajectoires électroniques simulées par le logiciel CASINO V2.42 (Echantillon : PTFE de 50  $\mu\text{m}$ , métallisé sur les deux faces avec une couche d'or de 50 nm, énergie du faisceau d'électron : 30 keV, nombre de trajectoires d'électrons simulées : 2000)



**Figure 4.25.** Profondeur maximale de pénétration des électrons dans l'échantillon (Echantillon : PTFE de 50  $\mu\text{m}$ , métallisé sur les deux faces avec une couche d'or de 50 nm, énergie du faisceau d'électron : 30 keV, nombre de trajectoires d'électrons simulées : 200000)

Les dimensions latérales (profondeur moyenne de pénétration, de dizaines  $\mu\text{m}$ ) du volume d'interaction dépendent principalement de l'énergie incidente et des propriétés physico-chimiques de l'échantillon. Le logiciel nous permet également de calculer la profondeur maximale de pénétration des électrons (figure 4.25). Il est important de noter que la profondeur maximale de pénétration calculée est environ  $9 \mu\text{m}$  et le pic de charge est de  $5 \mu\text{m}$ .

#### 4.4.4. Préparation des échantillons

Pour la réalisation des cartographies 3D haute résolution de charges d'espace par la méthode FLIMM, l'échantillon doit piéger les charges pendant une longue période. Cette caractéristique est importante dans la mesure où la réalisation d'une cartographie nécessite l'enregistrement de plusieurs points de mesure suivant un balayage dans le plan de l'échantillon (X-Y). Ainsi, l'acquisition totale des données peut durer plusieurs heures.

Une étude concernant la dynamique des charges dans le temps sur les films minces de PTFE de  $50 \mu\text{m}$  d'épaisseur irradiés par MEB (Microscope Electronique à Balayage) <sup>[PET 04b]</sup> a montré que le PTFE peut piéger les charges pendant une longue période.

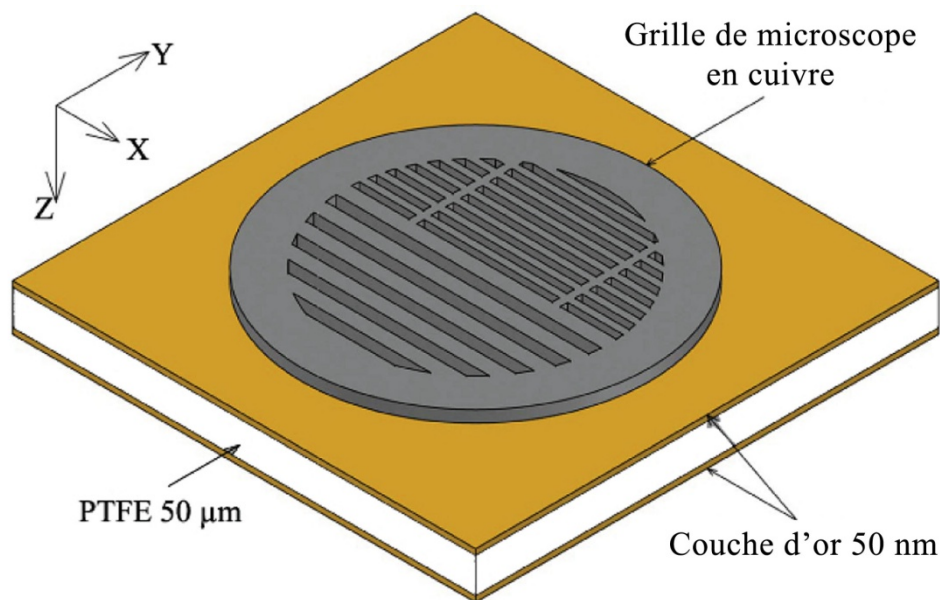


Figure 4.26. Préparations des échantillons de PTFE de  $50 \mu\text{m}$

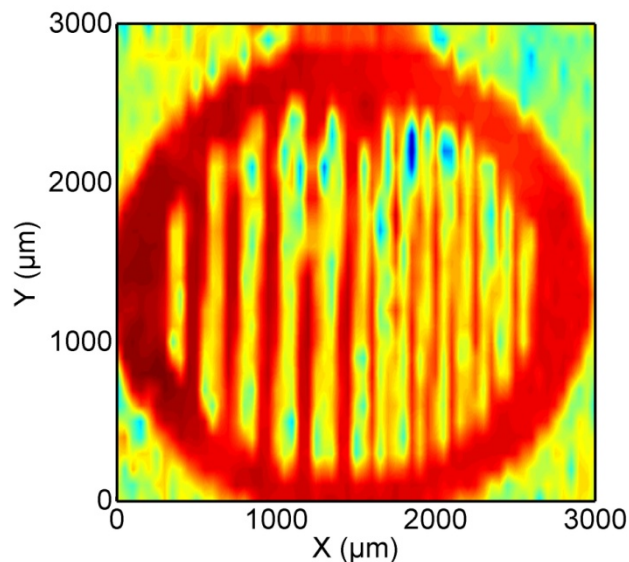
Les échantillons que nous utiliserons pour cette étude sont donc des films minces de PTFE de  $50 \mu\text{m}$  d'épaisseur, métallisés sur les deux faces avec une couche d'or de  $50 \text{ nm}$ . Le

dispositif CEDRE qui a été mis au point à l'ONERA est été utilisé pour irradier nos échantillons.

Afin d'implanter les électrons suivant un motif permettant de mettre en évidence les capacités d'analyse 3D de la FLIMM, des grilles de microscope de diamètre 3 mm possédant 5 barreaux de 130  $\mu\text{m}$ , espacés de 130  $\mu\text{m}$ , 8 barreaux de 65  $\mu\text{m}$ , espacés de 65  $\mu\text{m}$  ont été collées sur les échantillons. L'échantillon a été ensuite irradié pendant 3 minutes par un faisceau d'électrons de 30 keV d'énergie avec un flux de 1 nA/cm<sup>2</sup>. L'implantation des électrons se faisant suivant la géométrie de la grille (figure 4.26).

#### 4.4.5. Cartographie 3D de charges d'espace

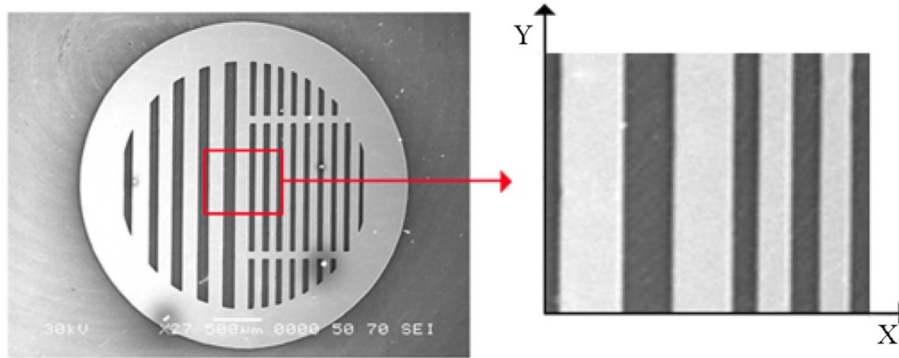
Le nouveau protocole a été appliqué pour des films minces de PTFE. Afin d'avoir une cartographie globale du champ électrique interne, une mesure à une fréquence de modulation  $f = 10$  kHz avec un grand pas de mesure de 50  $\mu\text{m}$  a été réalisée. Les résultats sont représentés dans la figure 4.27. Il est important de noter que les détails de la grille sont très bien reproduits, on retrouve la périodicité de la grille dans la charge implantée.



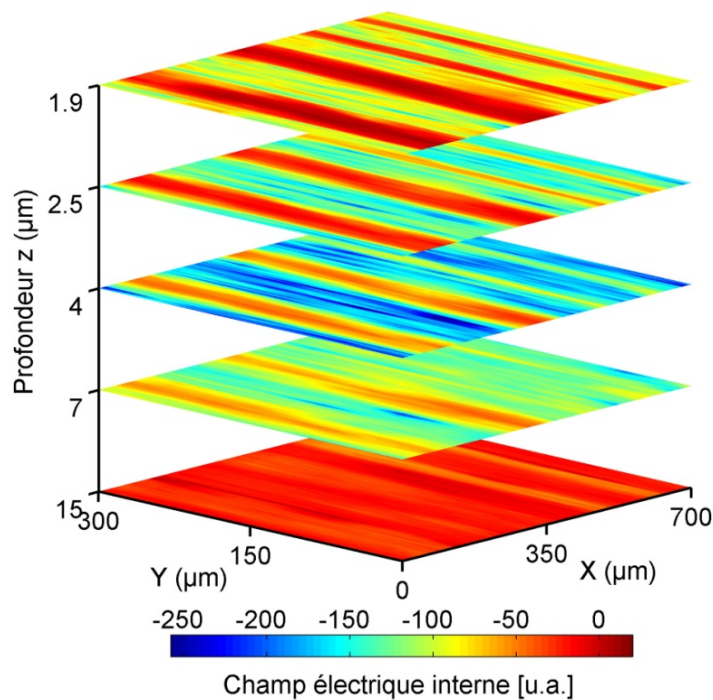
**Figure 4.27.** Cartographie globale du champ électrique interne à  $z = 1,9 \mu\text{m}$  ( $f=10$  kHz) avec grand pas de mesure de 50  $\mu\text{m}$

A partir de ces premières mesures, une petite zone (figure 4.28) a été choisie afin d'étudier plus précisément la distribution de charges en profondeur. Cette zone est particulièrement intéressante, puisqu'elle possède des barreaux de largeurs différentes, nous

permettant ainsi de réaliser des cartographies originales. Les mesures de courant ont été effectuées avec un pas de mesure de  $5\ \mu\text{m}$ , à 5 fréquences comprises entre 105 Hz et 10 kHz et avec une taille de spot du faisceau laser de  $5\ \mu\text{m}$ . Le résultat obtenu est montré dans la figure 4.29.



**Figure 4.28.** *Choix de la zone d'analyse*



**Figure 4.29.** *Cartographie 3D du champ électrique interne pour différentes profondeurs*

Les barreaux de largeurs différentes ont été bien retrouvés. Les non-uniformités du champ électrique interne en profondeur sont bien distinguées respectivement. A  $4\ \mu\text{m}$  en profondeur, le champ électrique interne est plus grand tandis qu'à  $15\ \mu\text{m}$  il est très faible. Pour mieux comprendre ce phénomène, les balayages suivant l'axe X en profondeur sont

réalisés avec le pas de mesure de  $2\ \mu\text{m}$  et la taille de spot du faisceau laser de  $5\ \mu\text{m}$ . Les résultats obtenus sont représentés dans la figure 4.30.

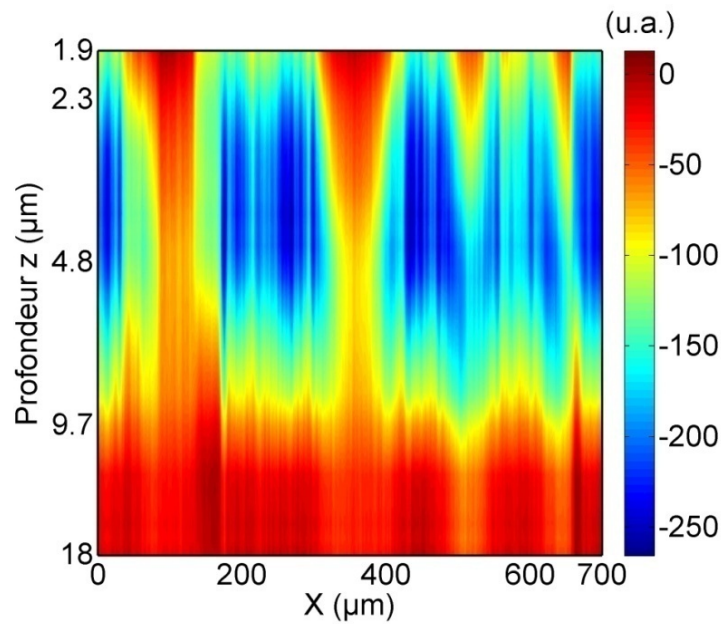


Figure 4.30. Cartographie du champ électrique interne sur le plan  $x$ - $z$

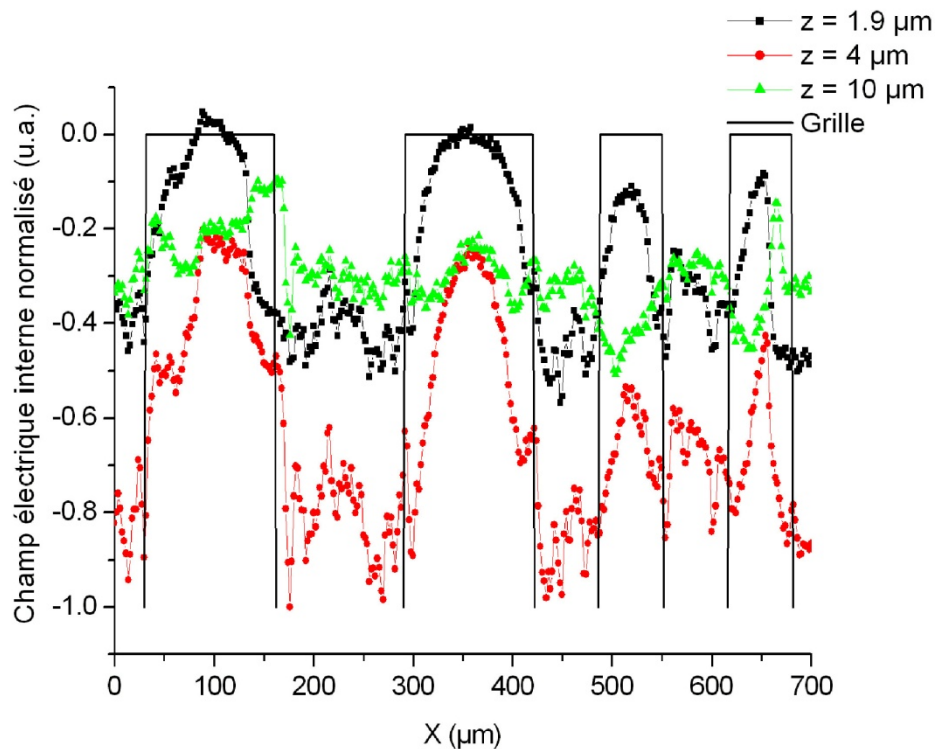
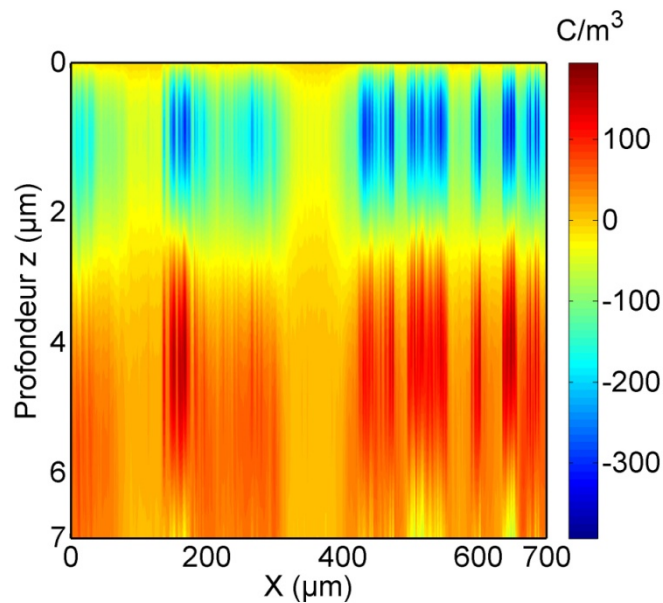


Figure 4.31. Champ électrique interne normalisé suivant l'axe  $X$  pour différentes profondeurs

Il est important de noter que la distribution spatiale du champ électrique interne en



profondeur correspond à la périodicité de grille (figure 4.31).



**Figure 4.32.** Cartographie de charges d'espace sur le plan  $x - z$

La figure 4.32 présente la cartographie de charges d'espace sur le plan  $x - z$ . Comme prévu, l'injection de charge se produit seulement à la surface de l'échantillon <sup>[GRI 02]</sup>. Dans notre cas, le maximum du pic de charges négatives qui est mesuré à environ  $1,5 \mu\text{m}$ , est inférieure à celle calculé par CASINO V2.42 (figure 4.25). Cette différence peut avoir plusieurs causes :

- pendant l'irradiation, l'échantillon n'a pas été mis à la terre. Entre la configuration court-circuit et la configuration circuit ouvert, les charges s'implantent plus loin de la surface irradiée dans la configuration court-circuit <sup>[PER 07]</sup>. En effet, l'extraction constante d'électrons par la surface irradiée dans cette configuration permet aux électrons incidents de pénétrer plus profondément dans le volume car ils ne sont pas freinés par la forte densité d'électrons déjà implantés ;

- après l'arrêt de l'irradiation, les mécanismes de transport de charge qui dominant dépendent aussi de la configuration de mesure. En outre, les mesures effectuées par la méthode FLIMM sont en condition de court-circuit. Ainsi, les charges situées dans la zone irradiée vont avoir tendance à s'extraire par la surface irradiée.

Dans la zone possédant des barreaux plus grands ( $130 \mu\text{m}$ ), la périodicité de la grille est obtenue tandis que dans la zone possédant des barreaux plus fins ( $65 \mu\text{m}$ ) on n'arrive pas

à retrouver la périodicité de la grille. Ceci peut être expliqué par les dimensions latérales (de dizaines  $\mu\text{m}$ ) du volume d'interaction (figure 4.24) ainsi que la résolution latérale de la méthode FLIMM de l'ordre de  $10 \mu\text{m}$ . Ce phénomène est également dû à la propagation du gradient de la température induit par le faisceau laser qui est un phénomène tridimensionnel, alors que c'est un modèle unidimensionnel du signal FLIMM qui a été utilisé pour la déconvolution mathématique. Ainsi il faut prendre en compte l'interaction entre le gradient thermique et la répartition volumique des charges électriques.

En conclusion, les cartographies tridimensionnelles avec une grande résolution latérale de l'ordre de  $10 \mu\text{m}$  de charges d'espace obtenues par la méthode FLIMM sur des films de PTFE de  $50 \mu\text{m}$  irradiés par un faisceau d'électrons sont représentées. Les zones irradiées définies par la grille sont bien reproduites et la profondeur totale de pénétration de charges ne dépasse pas  $4 \mu\text{m}$ , ce qui prouve que la méthode utilisée est tout à fait adaptée à la réalisation des cartographies multidimensionnelles de charges.

#### **4.5. Distributions de charges d'espace par FLIMM et PEA**

Les méthodes thermiques et acoustiques sont des méthodes complémentaires : les techniques acoustiques sont utilisées pour l'étude des films épais avec une bonne résolution spatiale en volume, par contre les méthodes thermiques sont excellentes pour déterminer les distributions des charges ou de la polarisation dans les films minces, avec une très bonne résolution spatiale proche de la surface excitée.

Etant donné que notre équipe est également équipée de la méthode PEA (classique et sans contact), le travail présenté dans ce paragraphe a pour objectif de donner une continuité d'information par les deux techniques en s'intéressant à des matériaux de différentes épaisseurs dans lesquels les charges sont implantées par MEB. Les résultats complémentaires obtenus par les deux méthodes devraient faciliter la compréhension des phénomènes de transfert et d'accumulation de charges dans les matériaux.

#### 4.5.1. Conductivité induite sous rayonnement

La conductivité électrique des matériaux joue un rôle crucial dans la détermination de l'état de charge interne dans les diélectriques. Dans le cas de matériau irradié, la conductivité mesurée n'est plus uniquement égale à la conductivité intrinsèque du diélectrique. La conductivité induite sous rayonnement (Radiation Induced Conductivity - RIC) doit alors également être prise en compte. Dans la plupart des cas, la RIC est très importante par rapport à la conductivité de volume classique <sup>[FOW 56]</sup>.

Après l'arrêt d'irradiation, la DRIC (Delayed Radiation Induced Conductivity) continue à conférer à la zone irradiée une conductivité supérieure à la conductivité intrinsèque du matériau <sup>[YAN 92]</sup>. La valeur de la DRIC diminue au cours du temps et la zone irradiée finit par retrouver sa conductivité initiale. Ce temps de retour à la conductivité initiale varie selon le matériau irradié, il est en général de plusieurs heures.

#### 4.5.2. Préparation des échantillons

Les échantillons utilisés pour cette étude sont des films minces de PTFE de différentes épaisseurs (50 et 100  $\mu\text{m}$ ), métallisés sur les deux faces avec une couche d'or de 50 nm. Ce matériau a été choisi parce qu'il peut piéger des charges pendant de longues périodes et donner donc l'occasion d'étudier le même échantillon par plusieurs techniques.

L'échantillon a été irradié par un MEB de type JEOL JSM-6060LV. Les caractéristiques d'implantation sont données dans le tableau 4.2.

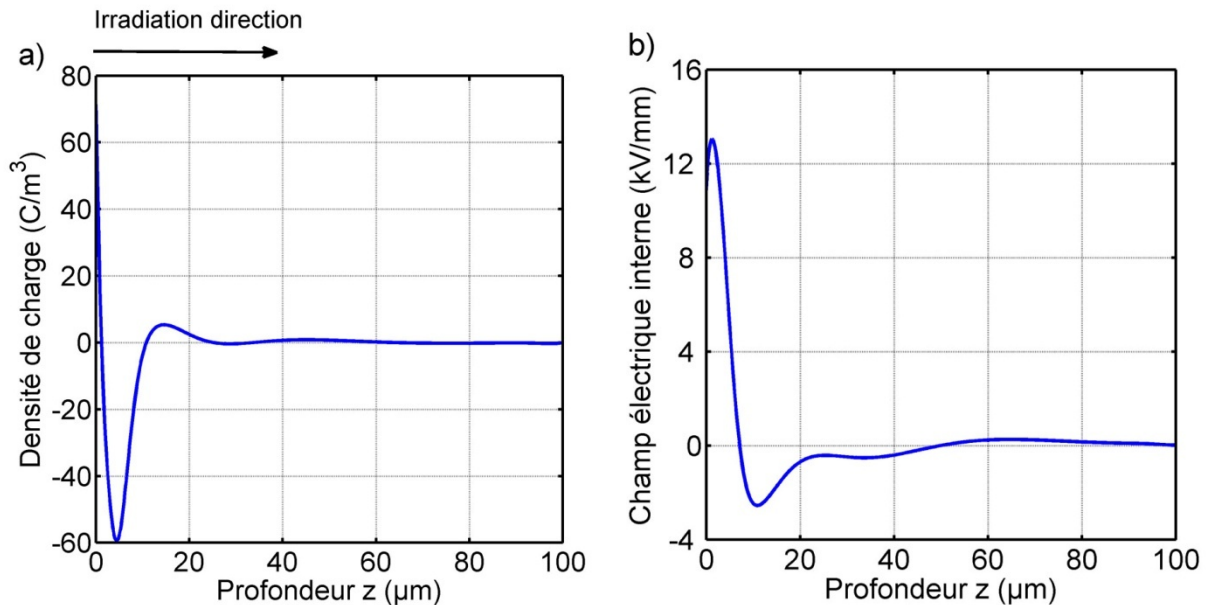
Energie	Temps d'irradiation	Taille de spot	Distance de travail
30 keV	20 min	70 $\mu\text{m}$	30 mm

**Tableau 4.2.** Caractéristique d'irradiation par MEB

Un masque avec un trou ( $D = 6 \text{ mm}$ ) a été appliqué sur la surface de l'échantillon pour limiter la zone irradiée et pour faciliter la localisation de cette zone après l'irradiation.

#### 4.5.3. Résultats obtenus sur PTFE de 100 $\mu\text{m}$

Après l'irradiation, l'échantillon a été placé dans la cellule de FLIMM. Pour tous les échantillons étudiés, la surface irradiée est face au faisceau laser. La figure 4.33 représente les profils de densité de charges et de champ électrique interne obtenus par la méthode FLIMM.

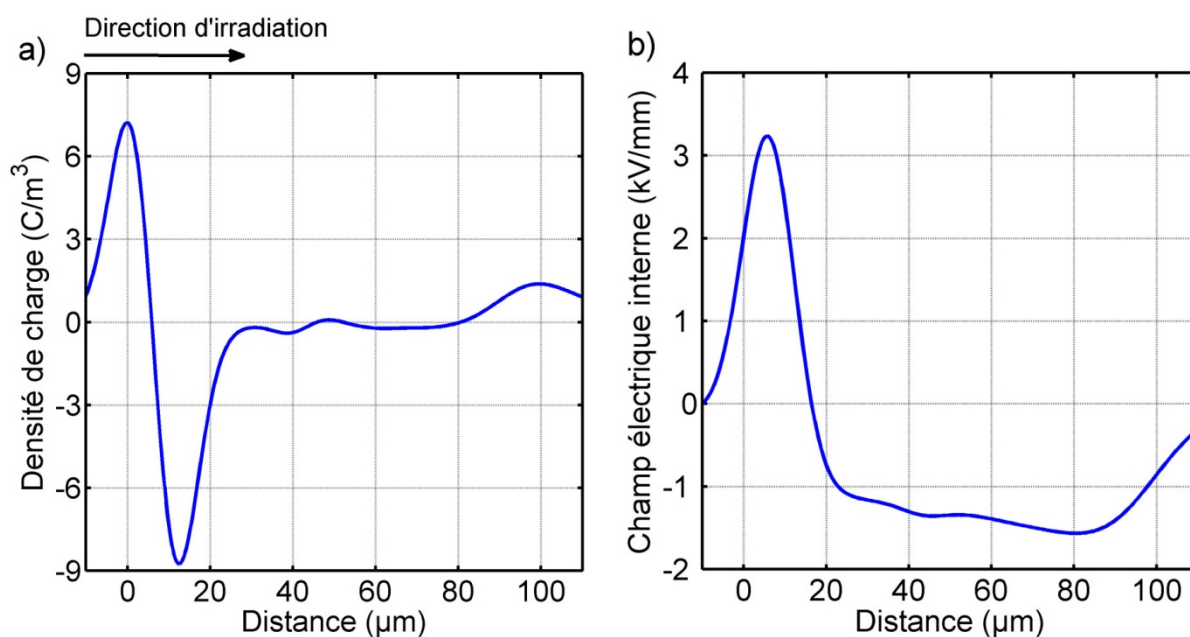


**Figure 4.33.** Evolution du profil de distribution de charge (a) et de champ électrique interne (b) enregistré par la FLIMM sur un échantillon de PTFE 100  $\mu\text{m}$

Comme observé sur la figure 4.33.a, nous pouvons voir un pic négatif des charges injectées près de la surface irradiée. Le maximum est détecté à environ 4  $\mu\text{m}$  de la surface. Des charges négatives sont observées jusqu'à 11  $\mu\text{m}$ . Sur la figure 4.33.b, le champ électrique est positif entre 0 et 7  $\mu\text{m}$ , les charges négatives dans cette région vont donc avoir tendance à se déplacer vers la surface irradiée au cours du temps. D'autre part, dans la région de champ électrique négatif (au delà de 7  $\mu\text{m}$ ) les charges auront tendance à migrer vers la surface non irradiée au cours du temps.

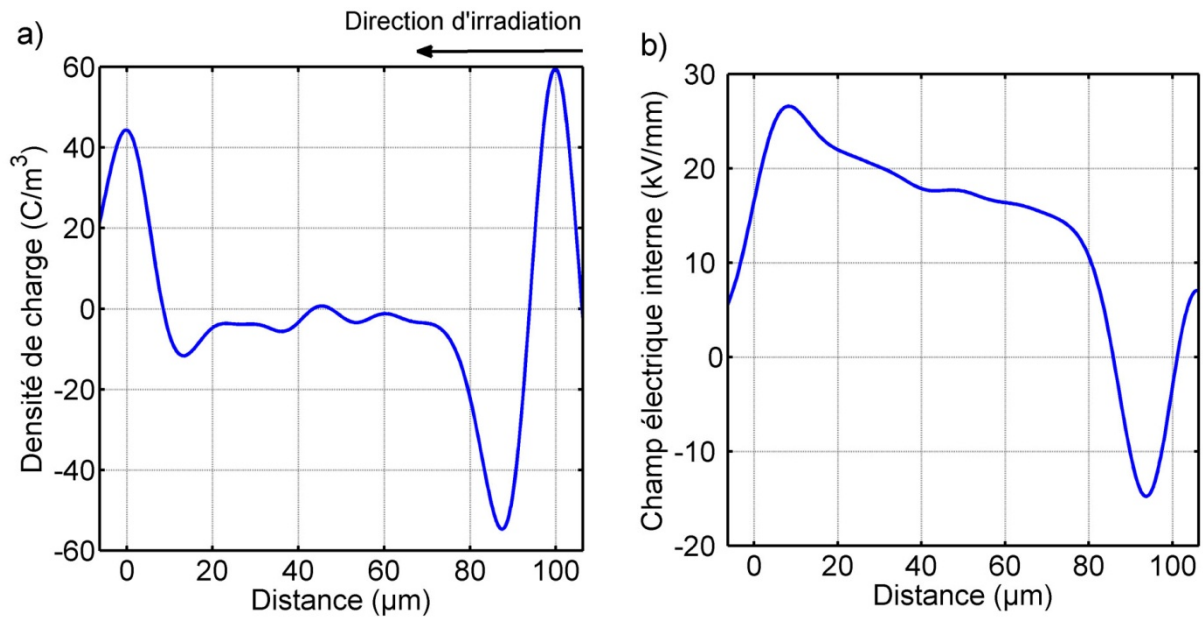
Le même échantillon a ensuite été placé dans le système PEA classique (1.5.2.1). La surface irradiée est en contact avec l'électrode de détection. Dans ce cas (figure 4.34.a), un pic négative des charges injectées est également détecté près de la surface irradiée. Le maximum est détecté à environ 11  $\mu\text{m}$  de la surface et quelques charges sont détectées jusqu'à 28  $\mu\text{m}$ . Deux pics positifs des charges induites sont détectées aux deux interfaces

échantillon/électrode. Comme prévu, le pic positif d'une amplitude plus élevée est situé du côté gauche comme la plupart des charges négatives sont proches de la surface. A partir de la figure 4.34.b, nous pouvons voir qu'un champ positif aura tendance à faire déplacer les charges situées entre 0 et 15  $\mu\text{m}$  vers la surface irradiée tandis qu'au delà de 15  $\mu\text{m}$  les charges sont soumises à un champ électrique négatif qui les poussera dans le sens opposé.



**Figure 4.34.** Evolution du profil de distribution de charge (a) et de champ électrique interne (b) enregistré par la PEA classique sur un échantillon de PTFE 100  $\mu\text{m}$

Ensuite l'échantillon a été étudié avec le système PEA sans contact (1.5.2.2). Dans ce cas la surface irradiée est face à l'électrode d'excitation. Le pic négatif des charges implantées est donc détecté du côté droit (figure 4.35.a). Un pic positif de charges induites est détecté sur l'électrode de détection, d'autre part des charges positives de compensation liée à l'ionisation de l'air apparaissent également sur la surface flottante. Un pic négatif est détecté dans la zone proche de l'électrode de détection. Il est probablement dû aux charges dans la colle (pendant la mesure du système PEA sans contact, l'échantillon a été collé sur l'électrode de détection) car ce pic n'a pas été détecté par d'autres techniques de mesures (FLIMM, PEA classique même lorsque l'échantillon a été retourné). Comme la polarité du champ électrique (figure 4.35.b) est positive dans la zone non irradiée jusqu'à 85  $\mu\text{m}$ , les charges situées dans cette zone seront attirées vers la gauche. Les charges situées sous l'influence du champ négatif seront poussées vers la surface irradiée.



**Figure 4.35.** Evolution du profil de distribution de charge (a) et de champ électrique interne (b) enregistré par la PEA sans contact sur un échantillon de PTFE 100  $\mu\text{m}$

De façon générale, la forme de la distribution de charges d'espace obtenue par les trois systèmes est en bon accord. L'amplitude de la densité de charge enregistrée par la FLIMM et la PEA sans contact sont du même ordre de grandeur. Cependant, si nous comparons l'amplitude de la densité de charge obtenue par les deux systèmes de PEA, nous pouvons observer une forte différence. Ceci peut être expliqué par la petite taille de la surface irradiée. Dans le système PEA classique, il est relativement difficile de placer exactement toute la zone irradiée sous l'électrode supérieure qui est utilisée pour presser l'échantillon et pour appliquer la tension pulsée. La surface irradiée est face au capteur, cependant quand l'électrode supérieure est mise en position, la position de l'échantillon ne peut pas être maîtrisée, elle peut être décalée en dehors de la zone de mesure. Si la totalité de la surface irradiée n'est pas mesurée, la densité de charge est sous-estimée. Pour empêcher un tel problème il est nécessaire d'irradier une zone plus grande mais ce n'est pas possible avec le dispositif actuellement disponible.

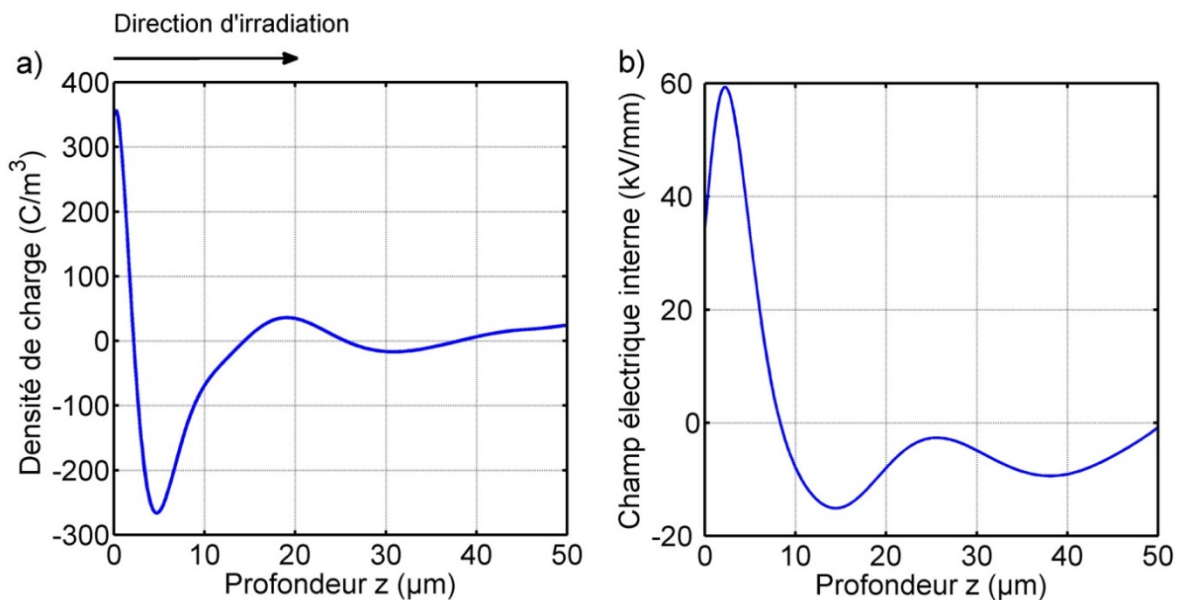
De plus, les charges implantées sont très proches de la surface et le pic de charges image se neutralise avec les charges implantées.

#### 4.5.4. Résultats obtenus sur PTFE de 50 $\mu\text{m}$

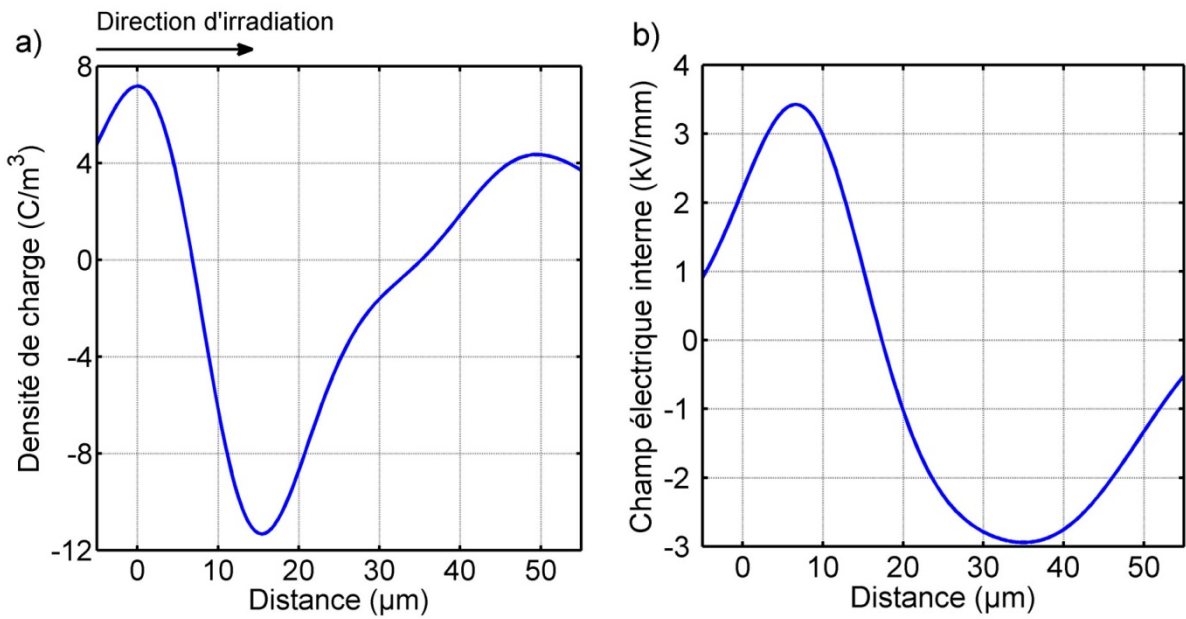
Une deuxième série d'échantillons plus minces a été étudiée. Les échantillons ont été irradiés dans les mêmes conditions que précédemment et les densités de charge ont été mesurées par les méthodes FLIMM, PEA classique et PEA sans contact. Comme prévu, un pic négatif des charges injectées a été détecté près de la surface irradiée (figure 4.36.a, figure 4.37.a, figure 4.38.a). Les amplitudes de la densité de charge enregistrée par la FLIMM et la PEA sans contact sont du même ordre de grandeur tandis qu'elle est beaucoup plus petite avec la PEA classique. Les raisons mentionnées précédemment restent valides dans ce cas.

Le nombre de points enregistrés par la PEA classique est trop petit. Ceci est dû à la résolution limite du signal. La distribution de charges d'espace semble être très large par rapport aux résultats obtenus par la FLIMM. En effet, la résolution spatiale est de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$  pour la PEA classique et 1  $\mu\text{m}$  pour la FLIMM. Cependant nous pouvons voir que la plupart des charges restent dans le premier 15  $\mu\text{m}$  de la surface.

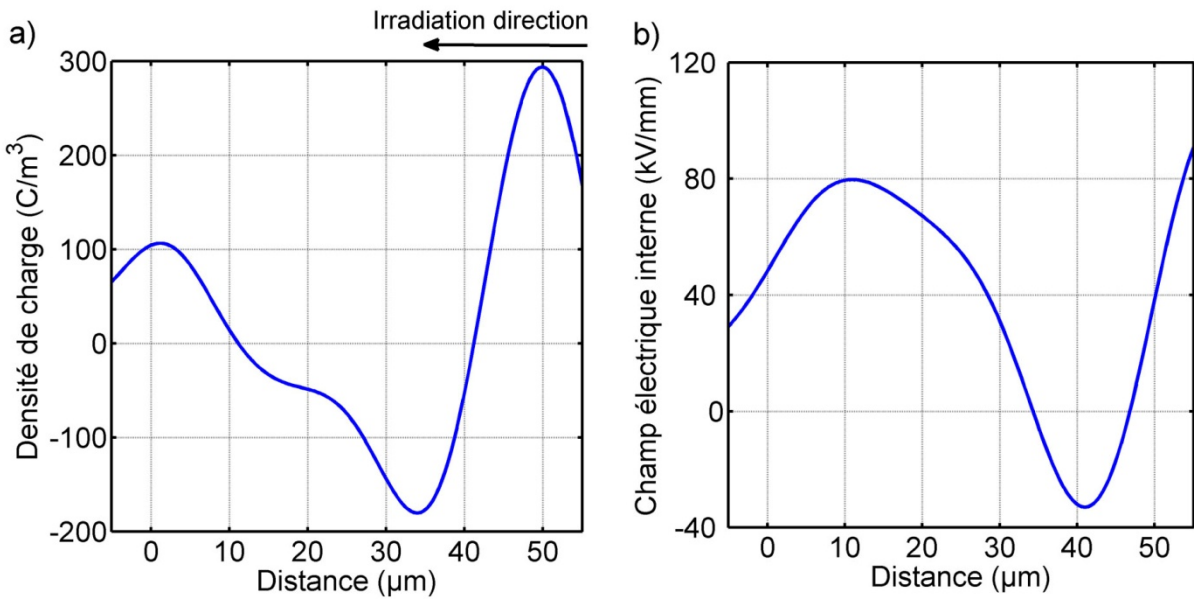
La distribution des charges enregistrée par la FLIMM est toute à faite cohérente avec la simulation par CASINO V2.42 (figure 4.24 et figure 4.25). On peut observer un maximum du pic négatif à 5  $\mu\text{m}$  (figure 4.36.a). Cela confirme que la FLIMM peut donner une très bonne résolution spatiale proche de la surface irradiée.



**Figure 4.36.** Evolution du profil de distribution de charge (a) et de champ électrique interne (b) enregistré par la FLIMM sur un échantillon de PTFE 50  $\mu\text{m}$



**Figure 4.37.** Evolution du profil de distribution de charge (a) et de champ électrique interne (b) enregistré par la PEA classique sur un échantillon de PTFE 50 µm



**Figure 4.38.** Evolution du profil de distribution de charge (a) et de champ électrique interne (b) enregistré par la PEA sans contact sur un échantillon de PTFE 50 µm

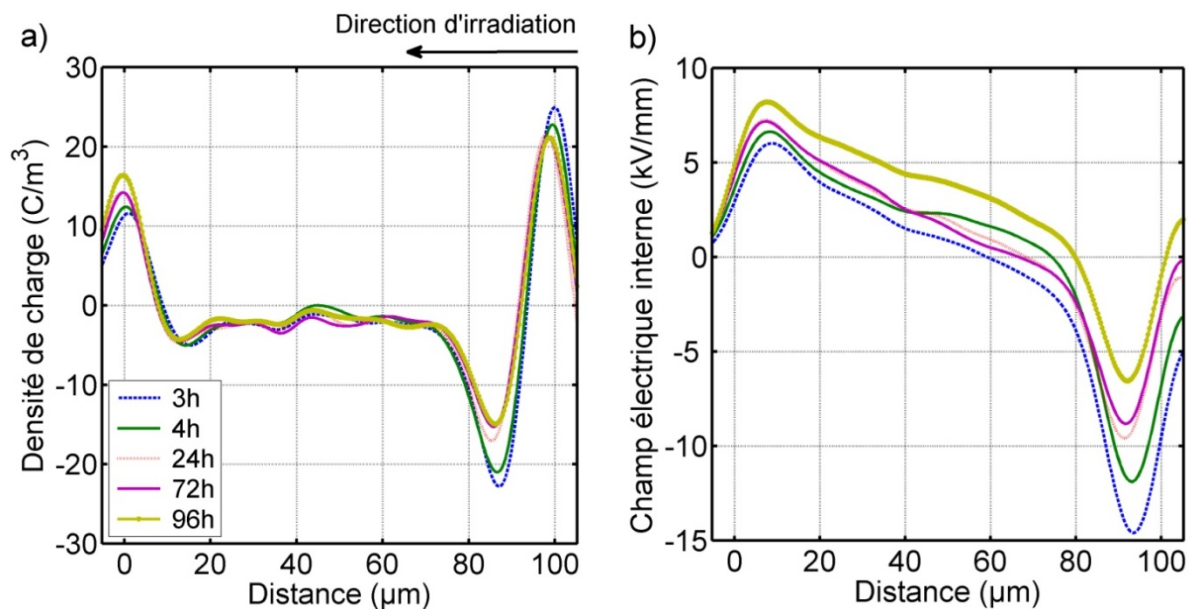
#### 4.5.5. Etude de la relaxation dans l'air

Afin de prouver que la relaxation de charge est très lente et que l'anomalie dans l'amplitude de la densité de charge ne peut pas être due à la relaxation de charge, le signal a



été enregistré pendant 96 h sur un échantillon de 100  $\mu\text{m}$  soumis à des conditions d'irradiation identiques à celles des échantillons précédents.

Dans la figure 4.39.a, on peut noter que la densité de charge détectée par le système PEA sans contact dans cet échantillon de 100  $\mu\text{m}$  est beaucoup plus petite que dans le premier échantillon (figure 4.35). Ceci peut être expliqué par la difficulté de répéter les mêmes conditions d'irradiation par le faisceau d'électrons de MEB. Une nouvelle chambre d'irradiation est en développement pour assurer des conditions d'irradiation constante. En raison de cette absence de répétabilité dans l'irradiation des échantillons, seulement les résultats obtenus avec différentes techniques sur le même échantillon peuvent être comparés.



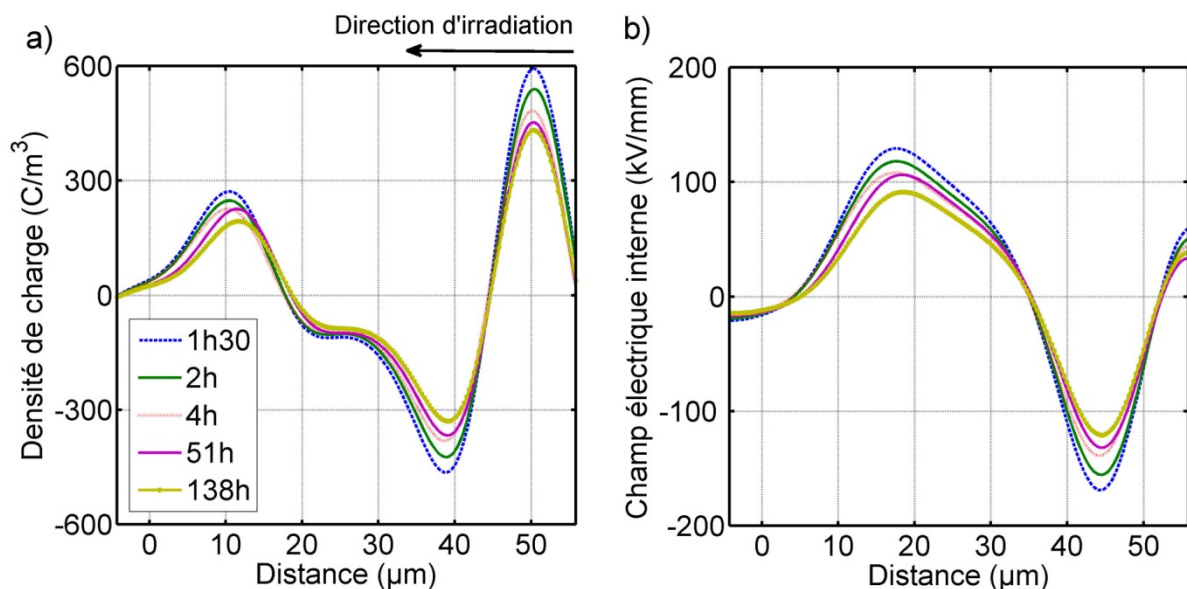
**Figure 4.39.** Evolution du profil de distribution de charge (a) et de champ électrique interne (b) enregistré par la PEA sans contact sur un échantillon de PTFE 100  $\mu\text{m}$  pendant la relaxation dans l'air

Le profil de charge enregistré pendant la relaxation dans l'air avec la PEA sans contact (figure 4.39.a) montrent une diminution de l'amplitude du pic de charges situé près de la surface irradiée. Le tracé du profil de champ électrique dans le volume explique ces évolutions (figure 4.39.b). Après l'arrêt de l'irradiation, le champ électrique est négatif dans la zone [60-100  $\mu\text{m}$ ]. En effet, la DRIC (Delayed Radiation Induced Conductivity) ou conductivité induite différée, confère encore à la zone précédemment irradiée une conductivité supérieure à la conductivité intrinsèque du matériau. Les charges situées dans

cette zone vont avoir tendance à s'extraire par la surface irradiée, ce qui explique la diminution d'amplitude du pic de charge près de la surface irradiée.

Parallèlement, les charges situées dans la zone de champ électrique positif [0-60  $\mu\text{m}$ ] ne peuvent se déplacer que dans le sens opposé, vers la surface non irradiée, si le champ est suffisamment fort. Le champ électrique restant est inférieur à 10 kV/mm, il permet uniquement aux charges de rester implantées dans cette zone pendant la relaxation.

L'étude de la relaxation dans l'air a été également réalisée sur l'échantillon de 50  $\mu\text{m}$  pendant 138 h par la PEA sans contact. Les résultats obtenus (figure 4.40) sont tout à fait cohérents.



**Figure 4.40.** Evolution du profil de distribution de charge (a) et de champ électrique interne (b) enregistré par la PEA sans contact sur un échantillon de PTFE 50  $\mu\text{m}$  pendant la relaxation dans l'air

Dans cette étude, les distributions de charges d'espace dans les PTFE (50  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$ ) irradiées par MEB obtenus avec les deux méthodes FLIMM et PEA (classique et sans contact) ont été comparées. Le pic négatif des charges injectées près de la surface irradiée a été détecté dans tous les échantillons. En outre, la forme de la distribution de charges d'espace est en bon accord. Les résultats montrent les capacités d'analyse des deux méthodes. La méthode FLIMM est excellente pour déterminer les distributions des charges dans les films minces, avec une très bonne résolution spatiale proche de la surface excitée alors que la PEA dispose d'une bonne résolution dans le volume. En conséquence, il est

intéressant d'appliquer les deux méthodes au même échantillon. Afin d'obtenir un meilleur accord entre l'amplitude de la densité de charge enregistrée par les deux techniques, une nouvelle chambre d'irradiation est en construction et nous permettra d'exécuter des états constants d'irradiation.

## 4.6. Conclusion

Les principaux résultats expérimentaux obtenus avec les trois méthodes FLIMM, TPT et PEA ont été présentés et comparés dans ce chapitre.

Les cartographies tridimensionnelles de profil de polarisation effectuées sur le PVDF-TrFE par la FLIMM et la TPT montrent une très bonne corrélation. La méthode TPT donne des résultats plus rapidement tandis que la méthode FLIMM possède une très bonne résolution spatiale et latérale. Ainsi, ces deux méthodes apparaissent comme deux techniques complémentaires pour l'étude de polarisation des films minces.

L'objectif des études sur les PEN irradiés par UV visait à étudier plus précisément les effets de la photo-dégradation en réalisant des cartographies 3D de charges d'espace par la méthode FLIMM. Les charges sont confinées dans une zone proche de la surface, sur environ 5  $\mu\text{m}$  de profondeur. Il est à noter que l'accumulation des charges d'une façon non homogène a lieu à la surface de l'échantillon. Concernant l'étude du comportement du PEN irradié par UV en présence de forts champs électriques, on remarque une accumulation d'homocharges qui augmente avec le champ dans la zone proche de la surface de l'échantillon. En outre, le niveau de charges accumulées pour le champ appliqué négatif est supérieur à celui pour le champ appliqué positif. Ce phénomène est également dû aux effets de photo-dégradation qui peuvent faciliter l'accumulation d'homocharges négative par rapport à celle positive.

Des cartographies tridimensionnelles intéressantes et originales de charges d'espace par la méthode FLIMM ont été obtenues sur des films de PTFE de 50  $\mu\text{m}$  irradiés par un faisceau d'électrons. Ces mesures nous permettent de déterminer les limites actuelles de la méthode en terme de résolution latérale qui est de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$ .

En ce qui concerne les mesures de charges d'espace effectuées sur les films minces de PTFE irradiés par MEB, les résultats obtenus avec les techniques FLIMM et PEA ont mis en évidence leur complémentarité. Ce sont des outils indispensables à la compréhension des phénomènes de transfert et d'accumulation de charges dans les matériaux diélectriques irradiés par un faisceau d'électrons.

## Conclusion générale

Les charges internes qui s'accumulent dans les matériaux diélectriques sont un facteur potentiel de vieillissement des matériaux à travers les distorsions de champ interne qu'elles provoquent. Durant les trois dernières décennies, des nombreuses techniques non destructives de mesure de charges d'espace et de polarisation ont été développées et appliquées à un large éventail de thèmes, tels que les processus de vieillissement des matériaux piézoélectriques, le développement et l'optimisation de capteurs piézoélectriques, les phénomènes de rupture dans les câbles ou les revêtements diélectriques pour le contrôle thermique des satellites géostationnaires. C'est dans ce contexte que s'inscrivent les travaux présentés dans ce mémoire.

Depuis sa mise au point initiale dans notre équipe, la méthode FLIMM n'a cessé d'évoluer et les différentes études et recherches menées ces dernières années ont permis d'en faire l'une des meilleures méthodes de mesure de charge d'espace ou de polarisation, compte tenu de sa capacité à réaliser des cartographies en trois dimensions avec une résolution inférieure à la dizaine de micromètres. Afin de fiabiliser la technique et d'en améliorer les performances, notamment dans le domaine tridimensionnel, de nombreuses avancées, comme par exemple les mesures sous tension continue ou une nouvelle stratégie de mesure, ont été apportées.

Le développement de la méthode FLIMM sous champ électrique continu est d'une grande importance pour nos futures études, car elle permet à la fois d'effectuer des mesures de charges d'espace dans des conditions proches des conditions industrielles mais surtout de calibrer le gradient thermique qui se propage dans le matériau et donc de calibrer le niveau de charge.

La nouvelle stratégie de mesure quant à elle, permet de choisir la zone d'étude et de mesurer l'état de charge dans l'échantillon avec une haute résolution qui est de l'ordre du micromètre dans un temps réduit.

En FLIMM, l'impossibilité de mesurer la température locale induite par le faisceau laser nécessite de mettre au point un modèle mathématique cohérent pour simuler la température locale induite par le faisceau laser dans l'échantillon. Afin de pouvoir étudier les systèmes plus complexes ou des échantillons multicouches dans des études futures, un modèle 1D multicouches a été mis au point en utilisant une nouvelle méthode de calcul. La corrélation parfaite entre les simulations effectuées par le modèle 1D quatre couches et 1D six couches nous permet de valider cette nouvelle méthode de calcul de la température.

La modélisation numérique en trois dimensions par éléments finis de la température de l'échantillon a été également développée en utilisant le logiciel Comsol. Ce modèle prend en compte l'environnement thermique de l'échantillon au sein de la cellule, l'absorption du faisceau dans les différents milieux et la répartition radiale de l'énergie du faisceau. Ce modèle est utilisé lors de la réalisation de cartographie de polarisation ou de charges d'espace.

La calibration du niveau de charge permet d'une part, la vérification expérimentale de l'évolution théorique du gradient de température au sein de l'échantillon irradié par le faisceau laser et la détermination d'un coefficient de calibration d'autre part. Les résultats de calibration obtenus valident nos différents modèles de température.

Toutes ces avancées nous ont permis d'effectuer des cartographies 3D de profil de polarisation ou de charges d'espace avec une très bonne résolution spatiale et latérale sur des films minces de PVDF-TrFE, de PEN soumis à une irradiation UV ou de PTFE irradié par un faisceau d'électrons.

Les tomographies tridimensionnelles de profil de polarisation effectuées sur le PVDF-TrFE par les méthodes FLIMM et TPT montrent une très bonne corrélation. La méthode TPT donne rapidement des résultats tandis que la méthode FLIMM, plus lente, possède une meilleure résolution spatiale et latérale. Ainsi, ces deux méthodes apparaissent comme deux techniques complémentaires pour l'étude de polarisation des films minces.

L'objectif des mesures effectuées sur les PEN irradiés par UV visait à étudier les effets de photo-dégradation. Les charges mesurées par la méthode FLIMM restent confinées dans une zone proche de la surface, sur environ 5  $\mu\text{m}$  de profondeur. Il est à noter que cette accumulation de charges est non homogène à la surface de l'échantillon. On remarque

également une accumulation d'homocharges, qui augmente avec le champ dans la zone proche de la surface de l'échantillon, et que le champ à partir duquel l'injection de charges devient massive est inférieur pour un échantillon vieilli par UV par rapport à un échantillon vierge.

Des cartographies tridimensionnelles intéressantes et originales de charges d'espace par la méthode FLIMM ont été obtenues sur des films de PTFE de 50  $\mu\text{m}$  irradiés par un faisceau d'électrons. Ces cartographies nous permettent de montrer les limites actuelles atteintes en terme de résolution latérale qui est inférieure à 10  $\mu\text{m}$ .

Les résultats obtenus sur les films minces de PTFE irradiés par MEB avec les techniques FLIMM et PEA ont permis de montrer la complémentarité de ces techniques, cela en fait des outils indispensables et complémentaires pour l'étude des phénomènes de transfert et d'accumulation de charges dans les matériaux diélectriques irradiés par un faisceau d'électrons. La méthode FLIMM permet de déterminer les distributions des charges dans les films minces avec une très bonne résolution spatiale proche de la surface excitée tandis que la résolution de la PEA est meilleure dans le volume.

Les perspectives de développement de la FLIMM sont encore conséquentes.

L'association de la méthode FLIMM et la mesure des déformations mécaniques induites par le champ électrique fait actuellement l'objet d'une thèse. En effet, pendant le vieillissement du matériau, des charges électriques s'accumulent et les caractéristiques mécaniques du matériau sont modifiées. De plus, des premières mesures ont montré qu'il existe en fonction du champ électrique, une corrélation très intéressante entre l'évolution de la charge d'espace accumulée et les déformations mécaniques induites par le champ électrique.

Dans le cadre du projet ANR Jeunes Chercheurs MatSpace, une enceinte d'irradiation électronique entre 0-100 keV est mise au point au sein du Laplace. A moyen terme, le travail portera sur le développement de techniques de mesures in-situ de charges d'espace implantées par le canon à électrons par les méthodes FLIMM et PEA. Le développement de nouvelles stratégies de mesure PEA (mesures sans contact) et l'analyse des mesures obtenues par la méthode FLIMM devraient permettre de mieux comprendre l'ensemble des phénomènes d'accumulation, de transport et de disruption pendant l'irradiation ainsi que la relaxation post-irradiation.

## Références Bibliographiques Personnelles

### Revue internationale avec comité de lecture et actes

- [PHA 09a] **C.-D. Pham**, A. Petre, L. Berquez, R. Flores-Suarez, A. Mellinger, W. Wirges, and R. Gerhard, "3D High-resolution Mapping of Polarization Profiles in Thin Poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) (PVDF-TrFE) Films Using Two Thermal Techniques," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 16, pp. 676-681, 2009.
- [PET 09a] A. Petre, **C.-D. Pham**, D. Marty-Dessus, and L. Berquez, "Three-dimensional space charge cartographies by FLIMM in electron irradiated polymers," *Journal of Electrostatics*, vol. 67, pp. 430-434, 2009.

### Congrès internationaux avec comité de sélection et actes

- [PET 07] A. Petre, D. Mary, **C.-D. Pham**, and L. Berquez, "3D cartography of space charges induced by UV irradiation," presented at Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 2007. CEIDP 2007. Annual Report - Conference on, 2007.
- [SUA 08a] R. F. Suarez, A. Mellinger, W. Wirges, R. Gerhard, **C.-D. Pham**, A. Petre, L. Berquez, D. Marty-Dessus, "Time- and frequency-domain polarization imaging on poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) films", presented at 5th International Conference on Broadband Dielectric Spectroscopy and its Applications, Lyon, France, 2008.
- [PET 09b] A. Petre, **C.-D. Pham**, D. Marty-Dessus, and L. Berquez, "Three-dimensional space charge cartographies by FLIMM in electron irradiated polymers", presented at 11th International Conference on Electrostatics, Valencia, Spain, 2009.
- [PHA 09b] **C. D. Pham**, V. Griseri, and L. Berquez, "Space Charge Distribution Detection by FLIMM and PEA Method on Electron Beam Irradiated Dielectric films," presented at Electrical Insulation and Dielectric Phenomena. CEIDP 2009. Annual Report - Conference on, 2009.

### Congrès nationaux avec actes publiés

- [PHA 07] **C. D. Pham**, L. Berquez, A. Petre, and J. L. Franceschi, "Mesure de charge d'espace par la méthode FLIMM : Calibration du niveau de charge," in *Colloque Instrumentation Interdisciplinaire et Innovation: Hermes-Lavoisier*, pp. 575-583, 2007.



- [PHA 08a] **C.-D. Pham**, L. Berquez, A. Petre, J. L. Franceschi, “Cartographies tridimensionnelles de charges d’espace par la méthode FLIMM : nouvelle stratégie de mesure”, presented at Colloque sur les Matériaux du Génie Electrique, Toulouse, France, 2008.
- [PHA 08b] **C.-D. Pham**, “Cartographie 3D haute résolution de charges d'espace et de polarisation par la méthode FLIMM”, presented at Conférence Jeunes Chercheurs en Génie Electrique, Lyon, France, 2008.
- [PET 08] A. Petre, **C.-D. Pham**, L. Berquez, R. Flores Suárez, A. Mellinger, W. Wirges, R. Gerhard-Multhaupt, “Cartographies 3D hautes résolution de profils de polarisation dans les films minces de PVDF-TrFE”, presented at 6<sup>ème</sup> Conférence de la Société Française d’Electrostatique, Paris, France, 2008.

### **Congrès nationaux sans actes publiés**

- [SUA 08b] R. F. Suarez, A. Mellinger, W. Wirges, R. Gerhard, **C.-D. Pham**, A. Petre, L. Berquez, D. Marty-Dessus, “Time-and frequency-domain polarization imaging on poly(vinylidene fluoride-co-trifluoroethylene)”, presented at Verhandlungen der Deutsche Physikalische Gesellschaft, Berlin, Allemagne, 2008.
- [PHA 09c] **C.-D. Pham**, “Cartographie 3D haute résolution de charges d’espace et de polarisation par méthode FLIMM”, presented at Journée annuelle l’ED GEET, Université Paul Sabatier, Toulouse, France, 2009.

## Références Bibliographies

- [ABO 97] M. Abou-Dakka, S. S. Bamji, and A. T. Bulinski, "Space-charge distribution in XLPE by TSM, using the inverse matrix technique," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 4, pp. 314-320, 1997.
- [AGN 00] S. Agnel, P. Notingher, Jr., and A. Toureille, "Space charge measurements under applied DC field by the thermal step method," presented at Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 2000 Annual Report Conference on, 2000.
- [ALQ 81] C. Alquie, G. Dreyfus, and J. Lewiner, "Stress-Wave Probing of Electric Field Distributions in Dielectrics," *Physical Review Letters*, vol. 47, pp. 1483, 1981.
- [ALQ 82] C. Alquié, G. Charpak, and J. Lewiner, "Pulsed laser determination of surface electric charge distributions," *J. Physique Lett.*, vol. 43, pp. 687-693, 1982.
- [ALQ 85] C. Alquié and J. Lewiner, "A new method for studying piezoelectric materials," *Revue de physique appliquée*, vol. 20, pp. 395-402, 1985.
- [ALQ 92] C. Alquie, C. L. Tolra, J. Lewiner, and S. B. Lang, "Comparison of polarization distribution measurement by the L IMM and PWP methods," *Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 27, pp. 751-757, 1992.
- [AND 77] H. C. Andrews and B. R. Hunt, "Digital Image Restoration " *Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey* 1977.
- [ARO 04] R. Arora and V. Tripathi, "Effect of ultra violet irradiation on low voltage cable insulation," presented at Electrical Insulation, 2004. Conference Record of the IEEE International Symposium on, 2004.
- [AUG 00] J. L. Augé and et al., "Combined electroluminescence and charge profile measurements in poly(ethylene-2, 6-naphthalate) under a dc field," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 33, pp. 3129, 2000.
- [AUS 89] J. D. Aussel and J. P. Monchalin, "Measurement of ultrasound attenuation by laser ultrasonics," *Journal of Applied Physics*, vol. 65, pp. 2918-2922, 1989.
- [BAU 93] S. Bauer, "Method for the analysis of thermal-pulse data," *Physical Review B*, vol. 47, pp. 11049, 1993.
- [BAU 94] S. Bauer, "Direct evaluation of thermal-pulse, thermal-step, and thermal-wave results for obtaining charge and polarization profiles," presented at Electrets, 1994. (ISE 8), 8th International Symposium on, 1994.
- [BAU 96] Bauer, S. , "Poled polymers for sensors and photonic applications," *Journal of Applied Physics*, vol. 80, pp. 5531-5558, 1996.
- [BAU 03] S. Bauer and S. Bauer-Gogonea, "Current practice in space charge and polarization profile measurements using thermal techniques," *Dielectrics and*

- Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 10, pp. 883-902, 2003.
- [BER 98] L. Berquez and J.-L. Franceschi, "Modeling and characterization of transducers for thermoacoustic signal," *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 69, pp. 115-120, 1998.
- [BER 03] L. Berquez, D. Marty-Dessus, and J. L. Franceschi, "Defect detection in silicon wafer by photoacoustic imaging," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 42, pp. L1198-L1200, 2003.
- [BIE 01] C. Biellmann, "Caractérisation 3D des charges d'espace dans les isolants polymères," Thèse de doctorat de l'Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2001.
- [BLO 94] P. Bloß and H. Schäfer, "Investigations of polarization profiles in multilayer systems by using the laser intensity modulation method," vol. 65, pp. 1541, 1994.
- [BLO 96] P. Bloss, M. Steffen, H. Schafer, Y. Guo-Mao, and G. M. Sessler, "Determination of the polarization distribution in electron-beam-poled PVDF using heat wave and pressure pulse techniques," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 3, pp. 182-190, 1996.
- [BLO 00] P. Bloß and et al., "Thermal and acoustic pulse studies of space-charge profiles in electron-irradiated fluoroethylene propylene," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 33, pp. 430, 2000.
- [BOU 97] C. Boué, C. Alquié, and D. Fournier, "High spatial resolution of permanent polarization distributions in ferroelectric samples using a combination of PWP and LIMM measurements," *Ferroelectrics*, vol. 193, pp. 175 - 188, 1997.
- [CAS 69] G. Caserta, B. Rispoli, and A. Serra, "Current and Band Structure in Amorphous Organic Films," *Physica Status Solidi*, pp. 237-248, 1969.
- [CHE 92] A. Cherifi, M. A. Dakka, and A. Toureille, "The validation of the thermal step method," *Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 27, pp. 1152-1158, 1992.
- [COE 93a] R. Coelho and B. Aladenize, "Courant permanent : mythe ou réalité," in *Les diélectriques*: Hermès, 1993, pp. 17-33.
- [COE 93b] R. Coelho and B. Aladenize, "Polarisation, permittivité et relaxation," in *Les diélectriques*: Hermes, 1993, pp. 123-181.
- [COL 75] R. E. Collins, "Distribution of charge in electrets," *Applied Physics Letters*, vol. 26, pp. 675-677, 1975.
- [COL 76] R. E. Collins, "Analysis of spatial distribution of charges and dipoles in electrets by a transient heating technique," *Journal of Applied Physics*, vol. 47, pp. 4804-4808, 1976.
- [COL 77] R. E. Collins, "Measurement of charge distribution in electrets," *Review of Scientific Instruments*, vol. 48, pp. 83-91, 1977.
- [COL 80] R. E. Collins, "Practical application of the thermal pulsing technique to the study of electrets," *Journal of Applied Physics*, vol. 51, pp. 2973-2986, 1980.

- [DAG 06] G. Dagher, S. Hole, and J. Lewiner, "A preliminary study of space charge distribution measurements at nanometer spatial resolution," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 13, pp. 1036-1041, 2006.
- [DAM 97] G. Damamme, C. Le Gressus, and A. S. De Reggi, "Space charge characterization for the 21th century," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 4, pp. 558-584, 1997.
- [DAP 03] M. Dapor, *Electron-Beam Interactions with Solids Application of the Monte Carlo Method to Electron Scattering Problems*, vol. 186: Springer Tracts in Modern Physics, 2003.
- [DAS 96] D. K. Das-Gupta, J. S. Hornsby, G. M. Yang, and G. M. Sessler, "Comparison of charge distributions in FEP measured with thermal wave and pressure pulse techniques," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 29, pp. 3113, 1996.
- [DER 78] A. S. DeReggi, C. M. Guttman, F. I. Mopsik, G. T. Davis, and M. G. Broadhurst, "Determination of Charge or Polarization Distribution across Polymer Electrets by the Thermal Pulse Method and Fourier Analysis," *Physical Review Letters*, vol. 40, pp. 413, 1978.
- [DER 92] A. S. De Reggi, B. Dickens, T. Ditchi, C. Alquie, J. Lewiner, and I. K. Lloyd, "Determination of the polarization-depth distribution in poled ferroelectric ceramics using thermal and pressure pulse techniques," *Journal of Applied Physics*, vol. 71, pp. 854-863, 1992.
- [DID 04] N. Didon, "Dynamique de développement des charges d'espace dans les isolants synthétiques sous champ électrique et gradient de température," Thèse de doctorat de l'Université Montpellier II, 2004.
- [DIS 92] L. A. Dissado and J. C. Fothergill, *Electrical degradation and breakdown in polymers*. London, United Kingdom: Peter Peregrinus Ltd, 1992.
- [DIS 97] L. A. Dissado, G. Mazzanti, and G. C. Montanari, "The role of trapped space charges in the electrical aging of insulating materials," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 4, pp. 496-506, 1997.
- [DOM 07] D. Dominique, C. Alexandre Réal, J. Dany, T. Xavier, A. Vincent, and G. Raynald, "CASINO V2.42 - A Fast and Easy-to-use Modeling Tool for Scanning Electron Microscopy and Microanalysis Users," *Scanning*, vol. 29, pp. 92-101, 2007.
- [DOR 96] J. M. Dorkel, P. Tounsi, and P. Leturcq, "3D thermal modeling based on the two-port network theory for hybrid or monolithic integrated power circuits," presented at Semiconductor Thermal Measurement and Management Symposium, 1996. SEMI-THERM XII. Proceedings., Twelfth Annual IEEE, 1996.
- [EIS 82] W. Eisenmenger and M. Haardt, "Observation of charge compensated polarization zones in polyvinylidenfluoride (PVDF) films by piezoelectric acoustic step-wave response," *Solid State Communications*, vol. 41, pp. 917-920, 1982.
- [EMM 92] R. Emmerich, S. Bauer, and B. Ploss, "Temperature distribution in a film heated with a laser spot: Theory and measurement," vol. 54, pp. 334, 1992.

- [FLE 05] R. J. Fleming, "Space charge profile measurement techniques: recent advances and future directions," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 12, pp. 967-978, 2005.
- [FOT 07] J. C. Fothergill, "Ageing, Space Charge and Nanodielectrics: Ten Things We Don't Know About Dielectrics," presented at Solid Dielectrics, 2007. ICSD '07. IEEE International Conference on, 2007.
- [FOU 86] R. Fournie, *Les isolants en électrotechnique, concepts et théories*: Eyrolles, 1986.
- [FOW 28] R. H. Fowler and L. Nordheim, "Electron Emission in Intense Electrical Field," *Proceedings of the Royal Society*, vol. 119, 1928.
- [FOW 56] J. F. Fowler, "X-Ray Induced Conductivity in Insulating Materials," *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, vol. 236, pp. 464-480, 1956.
- [FRA 97] J. L. Franceschi and V. Haas, "Laser thermoacoustic modulation for space charge measurement," *Applied Physics Letters*, vol. 70, pp. 2236-2237, 1997.
- [FRA 00] J. L. Franceschi, D. Marty-Dessus, C. Biellmann, L. Berquez, and M. Moiusseigne, "Profils de charges d'espace dans les isolants polymères minces par une méthode d'excitation thermique avec laser focalisé," presented at SFE, Montpellier, 2000.
- [FRA 06] J. L. Franceschi, A. Petre, D. Marty-Dessus, and L. Berquez, "FLIMM for direct measurement of charging effects in electron irradiated polymers insulators," presented at 16th International Microscopy Congress, Sapporo, Japon, 2006.
- [FRU 07] O. Fruchier, P. Notingher, S. Agnel, A. Toureille, F. Forest, S. Cunningham, B. Rousset, and J. L. Sanchez, "Applications of the Thermal Step Method to the Characterization of Electric Charge in MOS Components," presented at Industry Applications Conference, 2007. 42nd IAS Annual Meeting. Conference Record of the 2007 IEEE, 2007.
- [FUK 04] K. Fukunaga, "Innovative PEA space charge measurement systems for industrial applications," *Electrical Insulation Magazine, IEEE*, vol. 20, pp. 18-26, 2004.
- [FUK 08] K. Fukunaga, "Progress and Prospects in PEA Space Charge Measurement Techniques - [Feature Article]," *Electrical Insulation Magazine, IEEE*, vol. 24, pp. 26-37, 2008.
- [GER 99] R. Gerhard-Mulhaupt, X. Zhengfu, W. Kunstler, and A. Pucher, "Preliminary study of multi-layer space-charge electrets with piezoelectric properties from porous and non-porous Teflon films," presented at Electrets, 1999. ISE 10. Proceedings. 10th International Symposium on, 1999.
- [GOO 56] R. H. Good and E. W. Müller, "Handbuch der Physik," *Berlin: S. Flügge (Springer-Verlag)*, vol. 21, 1956.
- [GOS 00] B. Goss Levi, "Nobel prize in chemistry salutes the discovery of conducting polymers," *Physics Today*, vol. 53, 2000.

- [GRI 02] V. Griseri, L. Levy, D. Payan, T. Maeno, K. Fukunaga, and C. Laurent, "Space charge behaviour in electron irradiated polymers," presented at Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 2002 Annual Report Conference on, 2002.
- [GRI 04] V. Griseri, K. Fukunaga, T. Maeno, C. Laurent, L. Levy, and D. Payan, "Pulsed electro-acoustic technique applied to in-situ measurement of charge distribution in electron-irradiated polymers," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on [see also Electrical Insulation, IEEE Transactions on]*, vol. 11, pp. 891-898, 2004.
- [GRI 07] V. Griseri, "Evolution et perspectives de développement de la méthode électro-acoustique pulsée pour la mesure de charges d'espace " in *Matériaux diélectriques pour le génie électrique 1*, vol. 1. Paris: Hermes-Lavoisier, 2007, pp. 279-300.
- [GRI 09] V. Griseri, C. Perrin, and C. Laurent, "Study of the charge build up and transport in electron beam irradiated dielectric films," *Journal of Electrostatics*, vol. 67, pp. 400-406, 2009.
- [HAA 97] V. Haas, "Caractérisation 3D des charges électriques dans les isolants polymères minces par imagerie thermoacoustique," Thèse de doctorat de l'Université Paul Sabatier - Toulouse III, 1997.
- [HAN 93] P. C. Hansen and D. P. O'Leary, "The Use of the L-Curve in the Regularization of Discrete Ill-Posed Problems," *SIAM Journal on Scientific Computing*, vol. 14, pp. 1487-1503, 1993.
- [HAN 94] P. Hansen, "REGULARIZATION TOOLS: A Matlab package for analysis and solution of discrete ill-posed problems," *Numerical Algorithms*, vol. 6, pp. 1-35, 1994.
- [HAN 96] P. C. Hansen and K. Mosegaard, "Piecewise Polynomial Solutions Without a priori Break Points," *Numerical Linear Algebra with Applications*, vol. 3, pp. 513-524, 1996.
- [HAN 00] P. Hansen, M. Jacobsen, J. Rasmussen, and H. Sørensen, "The PP-TSVD algorithm for image restoration problems," in *Methods and Applications of Inversion*, 2000, pp. 171-186.
- [HON 90] J. Honerkamp and J. Weese, "Tikhonovs regularization method for ill-posed problems," *Continuum Mechanics and Thermodynamics*, vol. 2, pp. 17-30, 1990.
- [IED 84] M. Ieda, "Electrical Conduction and Carrier Traps in Polymeric Materials," *Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. EI-19, pp. 162-178, 1984.
- [IMA 95] Y. Imaizumi, K. Suzuki, Y. Tanaka, and T. Takeda, "Three-dimensional space charge distribution measurement in solid dielectrics using pulsed electroacoustic method," presented at Electrical Insulating Materials, 1995. International Symposium on, 1995.
- [IMA 04] S. Imai, Y. Tanaka, T. Fukao, T. Takada, and T. Maeno, "Development of new PEA system using open upper electrode " presented at Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 2004. CEIDP '04. 2004 Annual Report Conference on,

- 2004.
- [JAC 80] W. Jackson and N. M. Amer, "Piezoelectric photoacoustic detection: Theory and experiment," *Journal of Applied Physics*, vol. 51, pp. 3343-3353, 1980.
- [JBA 97] O. Jbara, B. Portron, D. Mouze, and J. Cazaux, "Electron Probe Microanalysis of Insulating Oxides: Monte Carlo Simulations," *X-Ray Spectrometry*, vol. 26, pp. 291-302, 1997.
- [KAW 69] H. Kawai, "The piezoelectricity of poly(vinylidene flouride)," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 8, pp. 975, 1969.
- [KIT 83] C. Kittel, *Physique de l'état solide*, 5 ed: Dunod Université, 1983.
- [KÜN 00] W. Künstler, Z. Xia, T. Weinhold, A. Pucher, and R. Gerhard-Multhaupt, "Piezoelectricity of porous polytetrafluoroethylene single- and multiple-film electrets containing high charge densities of both polarities," *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, vol. 70, pp. 5-8, 2000.
- [LAH 09] N. Lahoud, "Modélisation du vieillissement des isolants organiques sous contrainte électrique – Application à la fiabilité des matériaux": Thèse de doctorat de l'Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2009.
- [LAM 67] D. R. Lamb, *Electrical conduction mechanisms in thin insulating films*: Methuen, 1967.
- [LAM 70] M. A. Lampert and P. Mark, *Current Injection in Solids*: New York and London: Academic Press, 1970.
- [LAN 81] S. B. Lang and D. K. Das-Gupta, "A technique for determining the polarization distribution in thin polymer electrets using periodic heating," *Ferroelectrics*, vol. 39, pp. 1249 - 1252, 1981.
- [LAN 86] S. B. Lang and D. K. Das-Gupta, "Laser-intensity-modulation method: A technique for determination of spatial distributions of polarization and space charge in polymer electrets," *Journal of Applied Physics*, vol. 59, pp. 2151-2160, 1986.
- [LAN 91] S. B. Lang, "Laser intensity modulation method (LIMM): Experimental techniques, theory and solution of the integral equation," *Ferroelectrics*, vol. 118, pp. 343 - 361, 1991.
- [LAN 94] S. B. Lang, V. D. Kugel, and G. Rosenman, "Direct observation of domain inversion in heat-treated LiNbO<sub>3</sub> using surface laser intensity modulation method (SLIMM)," *Ferroelectrics*, vol. 157, pp. 69 - 74, 1994.
- [LAN 96] S. B. Lang, "A new technique for solving the integral equation of the surface laser intensity modulation method (SLMM)," presented at Electrets, 1996. (ISE 9), 9th International Symposium on, 1996.
- [LAN 98] S. B. Lang, "An analysis of the integral equation of the surface laser intensity modulation method using the constrained regularization method," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 5, pp. 70-76, 1998.
- [LAN 01] S. B. Lang, "Two-dimensional thermal analysis of thin-film pyroelectric infrared detectors," vol. 258, pp. 297, 2001.

- [LAN 03] S. B. Lang, "Determination of the polarization distribution in a weakly-poled PVDF film using the surface laser intensity modulation method (SLIMM)," *Materials Chemistry and Physics*, vol. 79, pp. 154-156, 2003.
- [LAN 04] S. B. Lang, "Laser intensity modulation method (LIMM): review of the fundamentals and a new method for data analysis," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 11, pp. 3-12, 2004.
- [LAN 06] S. B. Lang, "Fredholm integral equation of the Laser Intensity Modulation Method (LIMM): Solution with the polynomial regularization and L-curve methods " *Journal of Materials Science*, vol. 41, pp. 147-153, 2006.
- [LAN 09] S. B. Lang and R. Fleming, "A Comparison of Three Techniques for Solving the Fredholm Integral Equation of the Laser Intensity Modulation Method (LIMM)," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 16, pp. 809-814, 2009.
- [LAU 77] P. Laurenceau, G. Dreyfus, and J. Lewiner, "New Principle for the Determination of Potential Distributions in Dielectrics," *Physical Review Letters*, vol. 38, pp. 46, 1977.
- [LAU 99] C. Laurent, "Diélectriques solides et charge d'espace," *Techniques de l'Ingénieur, Pack Génie électrique*, vol. D 2 305, pp. 1-13, 1999.
- [LEW 04] T. J. Lewis, "Interfaces are the dominant feature of dielectrics at the nanometric level," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 11, pp. 739-753, 2004.
- [LEW 05] T. J. Lewis, "Interfaces: nanometric dielectrics," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 38, pp. 202, 2005.
- [MAD 89] M. R. Madison and T. W. McDaniel, "Temperature distributions produced in an N-layer film structure by static or scanning laser or electron beam with application to magneto-optical media," *Journal of Applied Physics*, vol. 66, pp. 5738-5748, 1989.
- [MAE 85] T. Maeno, H. Kushibe, T. Takada, and C. M. Cooke, "Pulsed electroacoustic method for the measurement of volume charges in E-beam irradiated PMMA," presented at Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, Annual Report. Conference on, 1985.
- [MAE 88] T. Maeno, T. Futami, H. Kushibe, T. Takada, and C. M. Cooke, "Measurement of spatial charge distribution in thick dielectrics using the pulsed electroacoustic method," *Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 23, pp. 433-439, 1988.
- [MAE 96] T. Maeno and K. Fukunaga, "High-resolution PEA charge distribution measurement system," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 3, pp. 754-757, 1996.
- [MAE 98] T. Maeno, "Extremely high resolution PEA charge measurement system," in *Report of Study Meeting IEE Japan*, 1998, pp. 81-86.
- [MAE 01] T. Maeno, "Three-dimensional PEA charge measurement system," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 8, pp. 845-848, 2001.



- [MAR 92] D. Marty-Dessus, M. E. Zejjari, N. Boughanmi, J. Boucher, and J. L. Franceschi, "Génération d'ondes acoustiques dans le silicium par faisceau d'électrons ou laser modulé," *J. Phys. III France*, vol. 2, pp. 1509-1526, 1992.
- [MAR 01] D. Mary, G. Teyssedre, and C. Laurent, "UV-induced degradation of poly(ethylene naphthalate) films from the standpoint of electrical and luminescence properties," presented at Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 2001 Annual Report. Conference on, 2001.
- [MAR 02] D. Marty-Dessus, L. Berquez, A. Petre, and J. L. Franceschi, "Space charge cartography by FLIMM: a three-dimensional approach," *Journal of Physics D: Applied Physics* vol. 35, pp. 3249–3256, 2002.
- [MAT 01] J. Matallana, "Etude des propriétés de transport et de charge d'espace d'un nouveau matériau à base de polyéthylène pour l'isolation des câbles haute tension à courant continu," Thèse de doctorat de l'Université Montpellier II, 2001.
- [MEL 03] A. Mellinger, F. C. Gonzalez, and R. Gerhard-Multhaupt, "Ultraviolet-induced discharge currents and reduction of the piezoelectric coefficient in cellular polypropylene films," *Applied Physics Letters*, vol. 82, pp. 254-256, 2003.
- [MEL 04] A. Mellinger, "Unbiased iterative reconstruction of polarization and space-charge profiles from thermal-wave experiments," *Measurement Science and Technology*, vol. 15, pp. 1347, 2004.
- [MEL 05a] A. Mellinger, R. Singh, M. Wegener, W. Wirges, R. F. Suarez, S. B. Lang, L. F. Santos, and R. Gerhard-Multhaupt, "High-resolution three-dimensional space-charge and polarization mapping with thermal pulses," presented at Electrets, 2005. ISE-12. 2005 12th International Symposium on, 2005.
- [MEL 05b] A. Mellinger, R. Singh, and R. Gerhard-Multhaupt, "Fast thermal-pulse measurements of space-charge distributions in electret polymers," *Review of Scientific Instruments*, vol. 76, pp. 013903-5, 2005.
- [MEL 05c] A. Mellinger, R. Singh, M. Wegener, W. Wirges, R. Gerhard-Multhaupt, and B. S. Lang, "Three-dimensional mapping of polarization profiles with thermal pulses," *Applied Physics Letters*, vol. 86, pp. 082903, 2005.
- [MEL 08] A. Mellinger, R. Flores-Suárez, R. Singh, M. Wegener, W. Wirges, R. Gerhard, and S. Lang, "Thermal-Pulse Tomography of Space-charge and Polarization Distributions in Electret Polymers," *International Journal of Thermophysics*, vol. 29, pp. 2046-2054, 2008.
- [MOP 82] F. I. Mopsik and A. S. DeReggi, "Numerical evaluation of the dielectric polarization distribution from thermal-pulse data," *Journal of Applied Physics*, vol. 53, pp. 4333-4339, 1982.
- [MOT 48] N. F. Mott and R. W. Gurney, *Electronic processes in ionic crystals*, 2 ed. New York: Oxford University Press, 1948.
- [MOT 79] N. F. Mott and E. A. Davis, *Electronic Processes in Non-crystalline Materials*. Oxford: Clarendon Press, 1979.
- [MOU 97] M. Mousseigne, L. Berquez, D. Marty-Dessus, and J. L. Franceschi, "Sondage

- thermoacoustique submicronique," presented at Journée de la société française des thermiciens : La thermique à l'échelle micronique et submicronique 1997.
- [MOU 00] M. Mousseigne, "Application du sondage thermoacoustique submicronique à la cartographie 3D des défauts et des charges électriques," Thèse de doctorat de l'Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2000.
- [NEL 05] J. K. Nelson and Y. Hu, "Nanocomposite dielectrics-properties and implications," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 38, pp. 213, 2005.
- [NOT 98] P. Notingher, Jr., S. Agnel, and A. Toureille, "Recent advances in calculating space charge distribution by processing the signals obtained using the thermal step method," presented at Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 1998. Annual Report. Conference on, 1998.
- [NOT 01] P. Notingher, Jr., S. Agnel, and A. Toureille, "Thermal step method for space charge measurements under applied dc field," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 8, pp. 985-994, 2001.
- [O'DW 73] J. J. O'Dwyer, *The theory of electrical conduction and breakdown of solid*. Oxford: Clarendon Press, 1973.
- [PAW 06] T. Pawlowski and R. J. Fleming, "Thermal wave probing: polynomial and regularized solutions with L-curve," presented at Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 2006 IEEE Conference on, 2006.
- [PER 93] H. Per Christian and O. L. Dianne Prost, "The use of the L-curve in the regularization of discrete ill-posed problems," *SIAM J. Sci. Comput.*, vol. 14, pp. 1487-1503, 1993.
- [PER 96] H. Per Christian and M. Klaus, "Piecewise Polynomial Solutions Without a priori Break Points," *Numerical Linear Algebra with Applications*, vol. 3, pp. 513-524, 1996.
- [PER 07] C. Perrin, "Apport de la technique Electro-Acoustique Pulsée à la mesure et à l'analyse du transport de charges dans les diélectriques sous faisceau d'électrons," Thèse de doctorat de l'Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2007.
- [PER 08] C. Perrin, V. Griseri, and C. Laurent, "Measurement of Internal Charge Distribution in Dielectrics using the Pulsed Electro-acoustic Method in non Contact Mode," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 15, pp. 958-964, 2008.
- [PET 04a] A. Petre, D. Marty-Dessus, L. Berquez, and J. L. Franceschi, "A comparison of different mathematical treatments for solving the inverse problem in Focused Laser Intensity Modulation method," *Jpn. Journal of Applied Physics*, vol. 43, pp. 2572-2579, 2004.
- [PET 04b] A. Petre, "Optimisation de la méthode FLIMM pour la caractérisation en volume des charges d'espace dans les isolants polymères minces ": Thèse de doctorat de l'Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2004.
- [PET 04c] A. Petre, D. Mary, and D. Marty-Dessus, "Electroluminescence and space charge measurements for the study of PEN ageing under UV irradiation,"

- Journal of optoelectronics and advanced materials*, vol. 6, pp. 1049-1054, 2004.
- [PET 06] A. Petre, D. Marty-Dessus, L. Berquez, and J. L. Franceschi, "Space charge cartography by FLIMM on SEM-irradiated PTFE thin films," *Journal of Electrostatics*, vol. 64, pp. 492-497, 2006.
- [PET 07] A. Petre, D. Mary, C. D. Pham, and L. Berquez, "3D cartography of space charges induced by UV irradiation," presented at Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 2007. CEIDP 2007. Annual Report - Conference on, 2007.
- [PET 09] A. Petre, C. D. Pham, D. Marty-Dessus, and L. Berquez, "Three-dimensional space charge cartographies by FLIMM in electron irradiated polymers," *Journal of Electrostatics*, vol. 67, pp. 430-434, 2009.
- [PHA 07] C. D. Pham, L. Berquez, A. Petre, and J. L. Franceschi, "Mesure de charge d'espace par la méthode FLIMM : Calibration du niveau de charge," in *Colloque Instrumentation Interdisciplinaire et Innovation: Hermes-Lavoisier*, 2007, pp. 575-583.
- [PHA 08a] C.-D. Pham, L. Berquez, A. Petre, J. L. Franceschi, "Cartographies tridimensionnelles de charges d'espace par la méthode FLIMM : nouvelle stratégie de mesure", presented at Colloque sur les Matériaux du Génie Electrique, Toulouse, France, 2008.
- [PHA 08b] C.-D. Pham, "Cartographie 3D haute résolution de charges d'espace et de polarisation par la méthode FLIMM", presented at Conférence Jeunes Chercheurs en Génie Electrique, Lyon, France, 2008.
- [PHA 09a] C.-D. Pham, A. Petre, L. Berquez, R. Flores-Suarez, A. Mellinger, W. Wirges, and R. Gerhard, "3D High-resolution Mapping of Polarization Profiles in Thin Poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) (PVDF-TrFE) Films Using Two Thermal Techniques," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 16, pp. 676-681, 2009.
- [PHA 09b] C. D. Pham, V. Griseri, and L. Berquez, "Space Charge Distribution Detection by FLIMM and PEA Method on Electron Beam Irradiated Dielectric films," presented at Electrical Insulation and Dielectric Phenomena. CEIDP 2009. Annual Report - Conference on, 2009.
- [PHE 74] R. J. Phelan, R. L. Peterson, C. A. Hamilton, and G. W. Day, "The polarization of PVF and PVF<sub>2</sub> pyroelectrics," *Ferroelectrics*, vol. 7, pp. 375 - 377, 1974.
- [PLO 91] B. Ploss, S. Bauer, and C. Bon, "Measurement of the thermal diffusivity of thin films with bolometers and with pyroelectric temperature sensors," vol. 118, pp. 435, 1991.
- [PLO 92] B. Ploss, R. Emmerich, and S. Bauer, "Thermal wave probing of pyroelectric distributions in the surface region of ferroelectric materials: A new method for the analysis," *Journal of Applied Physics*, vol. 72, pp. 5363-5370, 1992.
- [PLO 94] B. Ploss and O. Bianzani, "Polarization profiling of the surface region of PVDF and P(VDF-TrFE)," presented at Electrets, 1994. (ISE 8), 8th International Symposium on, 1994.

- [PLO 98] B. Ploss, W. Hassler, H. Hülz, and G. Kobernik, "Investigation of the polarization depth distribution of PZT thick films by LMM," presented at Applications of Ferroelectrics, 1998. ISAF 98. Proceedings of the Eleventh IEEE International Symposium on, 1998.
- [PLO 02] B. Ploss, "The resolution of thermal profiling techniques," presented at Electrets, 2002. ISE 11. Proceedings. 11th International Symposium on, 2002.
- [PUR 98] E. M. Purcell, C. Guthmann, and P. Lallemand, *Cours de physique de Berkeley*, vol. 2: Dunod, 1998.
- [RAT 02] F. E. Ratolojanahary, J. M. Dorkel, and P. Tounsi, "Two-port network theory based thermal characterization of power module packages," *Eur. Phys. J. AP*, vol. 18, pp. 63-75, 2002.
- [REM 07] S. Remaury, "Les revêtements diélectriques pour le contrôle thermique des satellites géostationnaires : tendances et problématiques," in *Matériaux diélectriques pour le génie électrique 2*, vol. 2. Paris: Hermes-Lavoisier, 2007, pp. 185-206.
- [SCH 97] J. Scheirs and J.-L. Gardette, "Photo-oxidation and photolysis of poly(ethylene naphthalate)," *Polymer Degradation and Stability*, vol. 56, pp. 339-350, 1997.
- [SEG 00] I. Segui, "Diélectriques. Courants de conduction," *Techniques de l'Ingénieur, Pack Génie électrique*, vol. D2301, pp. 1-12, 2000.
- [SER 98] S. Serra, E. Tosatti, S. Iarlori, S. Scandolo, G. Santoro, and M. Albertini, "Interchain states and the negative electron affinity of polyethylene," presented at Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 1998. Annual Report. Conference on, 1998.
- [SES 81] G. M. Sessler, J. E. West, and R. Gerhard, "Measurement of charge distribution in polymer electrets by a new pressure-pulse method," *Polymer Bulletin*, vol. 6, pp. 109-111, 1981.
- [SES 82] G. M. Sessler, J. E. West, R. Gerhard-Mulhaupt, and H. von Seggern, "Nondestructive Laser Method for Measuring Charge Profiles in Irradiated Polymer Films," *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, vol. 29, pp. 1644-1649, 1982.
- [SES 97] G. M. Sessler, "Charge distribution and transport in polymers," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 4, pp. 614-628, 1997.
- [SIM 71] J. G. Simmons, *DC conduction in thin films*. London: Mills & Boon 1971.
- [SKI 02] O. Skipa, M. Nalbach, F. B. Sachse, and O. Dössel, "Comparison of regularization techniques for the reconstruction of transmembrane potentials in the heart," *Biomedizinische Technik*, vol. 47, pp. 246-248, 2002.
- [SUA 06] R. F. Suarez, A. Mellinger, M. Wegener, W. Wirges, R. Gerhard-Mulhaupt, and S. Rajeev, "Thermal-pulse tomography of polarization distributions in a cylindrical geometry," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 13, pp. 1030-1035, 2006.
- [TAN 69] T. Tanaka, "High-field conductivity of polyethylene," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation Japan*, vol. 29, pp. 673-682, 1969.

- [TAK 87] T. Takada, T. Maeno, and H. Kushibe, "An Electric Stress-Pulse Technique for The Measurement of Charges in A Plastic Plate Irradiated by an Electron Beam," *Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. EI-22, pp. 497-501, 1987.
- [TAK 99] T. Takada, "Acoustic and optical methods for measuring electric charge distributions in dielectrics," *Dielectrics and Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 6, pp. 519-547, 1999.
- [TAR 03] G. Tardieu, "Apport des Mesures de Luminescence à la Compréhension du Piégeage et du Transport dans les Isolant Synthétiques ". Toulouse: Université Paul Sabatier, 2003.
- [TEY 03] G. Teyssedre, D. Mary, and C. Laurent, "Electroluminescence and photoluminescence of UV-aged poly(ethylene naphthalate) films," *Science, Measurement and Technology, IEE Proceedings -*, vol. 150, pp. 83-88, 2003.
- [TIK 77] A. N. Tikhonov and V. Y. Arsenin, *Solutions of Ill-Posed Problems*. Washington, DC: Winston, 1977.
- [TOU 87] A. Toureille, "Sur une méthode de détermination de densité spatiale de charge d'espace dans le polyéthylène," presented at Jicable 87, 2nd Intern. Conf. Polymer Insulating Cables, Paris, 1987.
- [TOU 91] A. Toureille, J. P. Reboul, and P. Merle, "Détermination des densités de charge d'espace dans les isolants solides par la méthode de l'onde thermique," *J. Phys. III France*, vol. 1, pp. 111-123, 1991.
- [TOU 94] A. Toureille, "Mesures de charges d'espace par la méthode de l'onde thermique: différentes techniques de validation numérique et expérimentale," *Journal of Electrostatics*, vol. 32, pp. 277-286, 1994.
- [TOU 07a] A. Toureille, P. Nothinger, J. Castellon, and S. Agnel, "Les charges d'espace : définition, historique, mesure," in *Matériaux diélectriques pour le génie électrique 1*, vol. 1. Paris: Hermes–Lavoisier, 2007, pp. 151-164.
- [TOU 07b] A. Toureille, S. Agnel, P. Nothinger, and J. Castellon, "La méthode de l'onde thermique pour la mesure des charges d'espace," in *Matériaux diélectriques pour le génie électrique 1*, vol. 1. Paris: Hermes–Lavoisier, 2007, pp. 341-376.
- [TOU 06] M. Touzin, D. Goeriot, C. Guerret-Piecourt, D. Juve, D. Treheux, and H. J. Fitting, "Electron beam charging of insulators: A self-consistent flight-drift model," *Journal of Applied Physics*, vol. 99, pp. 114110, 2006.
- [TUN 05] E. Tuncer and S. B. Lang, "Numerical extraction of distributions of space-charge and polarization from laser intensity modulation method," *Applied Physics Letters*, vol. 86, pp. 071107-3, 2005.
- [TUN 06] E. Tuncer and S. B. Lang, "Kramers-Kronig relations in laser intensity modulation method," *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, vol. 74, pp. 113109-4, 2006.
- [TUR 75] J. van Turnhout, *Thermally Stimulated Discharge of Polymer Electret*: Elsevier, 1975.
- [WAD 03] M. Wadamori, M. Fukuma, T. Maeno, K. Fukunaga, and M. Nagao, "Proposal

- of numerical analysis model of acoustic wave propagation and generation on PEA method," presented at Properties and Applications of Dielectric Materials, 2003. Proceedings of the 7th International Conference on, 2003.
- [WIN 83] H. J. Wintle, "Conduction processes in polymers," in *Engineering Dielectrics*, vol. IIA, R. Bartnikas and R. M. Eichom, Eds., 1983, pp. 239-354.
- [WUB 94] M. Wubbenhorst and J. Van Turnhout, "Thermal wave methods: some experimental pitfalls," presented at Electrets, 1994. (ISE 8), 8th International Symposium on, 1994.
- [XIA 99] Q. Xiaokui and et al., "Three-dimensional space-charge measurement in a dielectric using the acoustic lens and PWP method," *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 32, pp. 157, 1999.
- [XU 01] J.-z. Xu and et al., "UV Emission of Excimer XeCl\* Excited in Dielectric Barrier Discharge by using Pulse Power Supply," *Plasma Science and Technology*, vol. 3, pp. 933, 2001.
- [YAN 92] G. M. Yang and G. M. Sessler, "Radiation-induced conductivity in electron-beam irradiated insulating polymer films," *Electrical Insulation, IEEE Transactions on*, vol. 27, pp. 843-848, 1992.
- [YIL 93] S. Yilmaz, S. Bauer, W. Wirges, and R. Gerhard-Multhaupt, "Scanning electro-optical and pyroelectrical microscopy for the investigation of polarization patterns in poled polymers," *Applied Physics Letters*, vol. 63, pp. 1724-1726, 1993.

## Annexe

### Calcul de la source de chaleur et de la température pour le modèle 1D six couches

- Calcul de la source de chaleur  $Q_i$  avec  $i = 2, \dots, 6$

Les coefficients des matrices  $[B_i]$  s'écrivent :

$$\begin{cases} B_{i11} = \frac{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)}e^{-2\beta\lambda_i L_i} - 1}{(R_{(i-1)i} - 1)e^{-\beta\lambda_i L_i}} \\ B_{i12} = \frac{-R_{(i-1)i}(R_{i(i+1)} - 1)e^{-\beta\lambda_i L_i}}{R_{(i-1)i} - 1} \\ B_{i21} = R_{i(i+1)}e^{-\beta\lambda_i L_i} \\ B_{i22} = (1 - R_{i(i+1)})e^{-\beta\lambda_i L_i} \end{cases}, i = 2, \dots, 5$$

La matrice globale  $[B]$  est donnée par :

$$[B] = \prod_{i=2}^5 [B_i] = \begin{bmatrix} B_{11} & B_{12} \\ B_{21} & B_{22} \end{bmatrix}$$

La détermination de la matrice globale  $[B]$  permet d'exprimer tous les flux de lumière aux interfaces du modèle en fonction du flux incident  $\phi_0$  seul en supposant que le flux  $I'_5$  est égal à zéro.

$$\begin{cases} I_1 = \phi_0 \\ I'_5 = 0 \\ I_5 = \frac{I_1}{B_{11}} \\ I'_1 = B_{21}I_5 \\ I_4 = B_{511}I_5 \\ I'_4 = B_{521}I_5 \\ I_3 = B_{411}I_4 + B_{412}I'_4 \\ I'_3 = B_{421}I_4 + B_{422}I'_4 \\ I_2 = B_{311}I_3 + B_{312}I'_3 \\ I'_2 = B_{321}I_3 + B_{322}I'_3 \end{cases}$$

Après avoir calculé tous les flux de lumière aux interfaces, on peut obtenir les expressions des constantes  $N_i$  et  $M_i$  suivantes :

$$\begin{cases} M_i = \frac{R_{i(i+1)}(R_{(i-1)i} - 1)}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta_{\lambda i}L_i}} I_{i-1} + \frac{(R_{i(i+1)} - 1)e^{\beta_{\lambda i}L_i}}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta_{\lambda i}L_i}} I'_i \\ N_i = \frac{(R_{(i-1)i} - 1)e^{2\beta_{\lambda i}L_i}}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta_{\lambda i}L_i}} I_{i-1} + \frac{R_{(i-1)i}(R_{i(i+1)} - 1)e^{\beta_{\lambda i}L_i}}{R_{(i-1)i}R_{i(i+1)} - e^{2\beta_{\lambda i}L_i}} I'_i \end{cases}, i = 3, \dots, 5$$

On peut également calculer les sources de chaleur dans toutes les couches. Il est à noter que la source de chaleur dans la couche de verre  $Q_2(z)$  est égale à zéro.

$$Q_i(z) = \beta_{\lambda i}(N_i e^{-\beta_{\lambda i}z} + M_i e^{\beta_{\lambda i}z}), i = 3, \dots, 5$$

- **Calcul de la température**

On va déterminer d'abord des constantes  $C_i, D_i, E_i, F_i$ .

$$\begin{cases} C_2 = D_2 = (Q_2(z) = 0) \\ C_i = \frac{\beta_{\lambda i}N_i}{\chi_i(\delta_i^2 - \beta_{\lambda i}^2)} \\ D_i = \frac{\beta_{\lambda i}M_i}{\chi_i(\delta_i^2 - \beta_{\lambda i}^2)} \\ E_i = C_i e^{-\beta_{\lambda i}L_i} + D_i e^{\beta_{\lambda i}L_i} \\ F_i = -\chi_i \beta_{\lambda i} C_i e^{-\beta_{\lambda i}L_i} + \chi_i \beta_{\lambda i} D_i e^{\beta_{\lambda i}L_i} \end{cases}, i = 3, \dots, 5$$

Les constantes du flux de chaleur  $\Phi_{(i-1)0}$  et de la température  $T_{(i-1)0}$  sont données par ( $i = 2, \dots, 5$ ) :



$$\begin{cases} T_{(i-1)0} = -\left(\frac{e^{-\delta_i L_i} - e^{\delta_i L_i}}{2\delta_i \chi_i}\right) F_i - \left(\frac{e^{-\delta_i L_i} + e^{\delta_i L_i}}{2}\right) E_i + C_i + D_i \\ \Phi_{(i-1)0} = -\left(\frac{e^{-\delta_i L_i} + e^{\delta_i L_i}}{2}\right) F_i - \chi_i \delta_i \left(\frac{e^{-\delta_i L_i} - e^{\delta_i L_i}}{2}\right) E_i - \chi_i \beta_{\lambda i} C_i + \chi_i \beta_{\lambda i} D_i \end{cases}$$

Les coefficients des matrices  $[A_i]$  s'écrivent :

$$\begin{cases} A_{i11} = \frac{e^{-\delta_i L_i} + e^{\delta_i L_i}}{2} \\ A_{i12} = \frac{e^{-\delta_i L_i} - e^{\delta_i L_i}}{2\delta_i \chi_i} \\ A_{i21} = \chi_i \delta_i \left(\frac{e^{-\delta_i L_i} - e^{\delta_i L_i}}{2}\right) \\ A_{i22} = \frac{e^{-\delta_i L_i} + e^{\delta_i L_i}}{2} \end{cases}, i = 2, \dots, 5$$

Les matrices  $[A]$  et  $[A_0]$  sont données par :

$$\begin{cases} [A] = \prod_{i=2}^5 [A_i] \\ [A_0] = \left(\prod_{i=2}^4 [A_i]\right) [A_{40}] + \left(\prod_{i=2}^3 [A_i]\right) [A_{30}] + [A_2][A_{20}] + [A_{10}] \end{cases}$$

Alors, l'expression de la température dans chaque couche est définie de la manière suivante :

$$\begin{cases} T_1(z) = B_1 e^{\delta_1 z} \\ T_2(z) = A_2 e^{-\delta_2 z} + B_2 e^{\delta_2 z} \\ T_3(z) = A_3 e^{-\delta_3 z} + B_3 e^{\delta_3 z} + C_3 e^{-\beta_{\lambda 3} z} + D_3 e^{\beta_{\lambda 3} z} \\ T_4(z) = A_4 e^{-\delta_4 z} + B_4 e^{\delta_4 z} + C_4 e^{-\beta_{\lambda 4} z} + D_4 e^{\beta_{\lambda 4} z} \\ T_5(z) = A_5 e^{-\delta_5 z} + B_5 e^{\delta_5 z} + C_5 e^{-\beta_{\lambda 5} z} + D_5 e^{\beta_{\lambda 5} z} \\ T_6(z) = A_6 e^{-\delta_6 z} + C_6 e^{-\beta_{\lambda 6} z} \end{cases}$$

D'autre part, on a :

$$\begin{cases} \begin{bmatrix} T_1 \\ \Phi_1 \end{bmatrix} = [A] \begin{bmatrix} T_5 \\ \Phi_5 \end{bmatrix} + [A_0] \\ \Phi_1 = \chi_1 \frac{dT_1(z)}{dz} \Big|_{z=0} = \chi_1 \delta_1 B_1 = a_0 T_1 \\ \Phi_5 = \chi_6 \frac{dT_6(z)}{dz} \Big|_{z=0} = -\chi_6 \delta_6 A_6 - \chi_6 \beta_{\lambda_6} C_6 = b_0 T_5 + c_0 \end{cases}$$

avec

$$\begin{cases} a_0 = \chi_1 \delta_1 \\ b_0 = -\chi_6 \delta_6 \\ c_0 = -\chi_6 \beta_{\lambda_6} C_6 + \chi_6 \delta_6 C_6 \\ T_5 = A_6 + C_6 \\ T_1 = B_1 \end{cases}$$

On trouve :

$$\begin{cases} T_5 = \frac{c_0 A_{22} + A_{021} - a_0 c_0 A_{12} - a_0 A_{011}}{a_0 b_0 A_{12} + a_0 A_{11} - b_0 A_{22} - A_{21}} \\ \Phi_5 = b_0 T_5 + c_0 \\ T_4 = A_{511} T_5 + A_{512} \Phi_5 + A_{4011} \\ \Phi_4 = A_{521} T_5 + A_{522} \Phi_5 + A_{4021} \\ T_3 = A_{411} T_4 + A_{412} \Phi_4 + A_{3011} \\ \Phi_3 = A_{421} T_4 + A_{422} \Phi_4 + A_{3021} \\ T_2 = A_{311} T_3 + A_{312} \Phi_3 + A_{2011} \\ \Phi_2 = A_{321} T_3 + A_{322} \Phi_3 + A_{2021} \\ T_1 = A_{211} T_2 + A_{212} \Phi_2 + A_{1011} \\ \Phi_1 = A_{221} T_2 + A_{222} \Phi_2 + A_{1021} \end{cases}$$

On obtient :

$$\begin{cases} A_i = \frac{e^{\delta_i L_i}}{2} T_i - \frac{e^{\delta_i L_i}}{2 \delta_i \chi_i} \Phi_i + \frac{e^{\delta_i L_i}}{2 \delta_i \chi_i} F_i - \frac{e^{\delta_i L_i}}{2} E_i \\ B_i = \frac{e^{-\delta_i L_i}}{2} T_i + \frac{e^{-\delta_i L_i}}{2 \delta_i \chi_i} \Phi_i - \frac{e^{-\delta_i L_i}}{2 \delta_i \chi_i} F_i - \frac{e^{-\delta_i L_i}}{2} E_i \end{cases}, i = 1, \dots, 6$$

**AUTEUR :** Cong Duc PHAM

**DIRECTEUR DE THESE :** Laurent BERQUEZ

**LIEU ET DATE DE SOUTENANCE :** Toulouse, le 30 novembre 2009

**DISCIPLINE ADMINISTRATIVE :** Génie Electrique

---

**TITRE :** Cartographie de charges d'espace par méthode FLIMM / Complémentarité avec les méthodes PEA et TPT

**RESUME :** Les charges internes qui s'accumulent dans les matériaux diélectriques sont un facteur potentiel de vieillissement des matériaux à travers les distorsions de champ interne qu'elles provoquent. Durant les trois dernières décennies, des nombreuses techniques non-destructives de mesure de charges d'espace et de polarisation ont été développées et appliquées à un large éventail de thèmes, tels que les processus de vieillissement des matériaux piézoélectriques, le développement et optimisation de capteurs piézoélectriques, les phénomènes de rupture dans les câbles ou les revêtements diélectriques pour le contrôle thermique des satellites géostationnaires. Notre équipe a ainsi développé une méthode originale, appelée FLIMM (Focused Laser Induced Modulation Method) et s'est équipée de la méthode PEA (Pulsed Electro-Acoustic).

Dans un premier temps, la méthode FLIMM a été adaptée pour réaliser des mesures sous champ électrique appliqué. Ces mesures sous tension permettent entre autre de calibrer les mesures de charges d'espace. Ensuite, une nouvelle stratégie de mesure a été mise en œuvre, elle permet après une phase de calibration, de choisir la zone d'étude et de mesurer l'état de charge dans l'échantillon avec une haute résolution de l'ordre du micromètre dans un temps réduit.

Dans un second temps, la modélisation thermique a été abordée. Un nouveau modèle 1D multicouches rendant le calcul plus souple et flexible et une modélisation multicouches de la température en 3D par éléments finis ont permis une prise en compte plus fine de l'environnement thermique de l'échantillon et de l'absorption du faisceau laser.

Enfin, des cartographies 3D de profil de charges d'espace ou de polarisation ont été réalisées avec une très bonne résolution spatiale sur des films minces de PEN soumis à une irradiation UV, de PVDF-TrFE ou de PTFE. Les cartographies effectuées sur le PVDF-TrFE ont été comparées avec celles obtenues par la méthode TPT. Concernant les mesures de charges d'espace effectuées sur les films minces de PTFE irradiés par un faisceau d'électrons, les résultats obtenus avec les techniques FLIMM et PEA ont mis en évidence de leur complémentarité.

**MOTS-CLES :** FLIMM, PEA, TPT, charges d'espace, polarisation, isolants solides, polymères, faisceau d'électrons, irradiation UV, modélisation thermique, cartographies 3D

---

**TITLE :** Space charge cartography by FLIMM method/ Complementarity with PEA and TPT methods

**ABSTRACT :** Internal charges, which accumulate in dielectric materials, are a potential factor of materials ageing through distortions of the internal field, which they cause. During the three last decades, many nondestructive techniques of polarization and space charges measurement were developed and applied to a wide range of topics, such as the ageing processes of piezoelectric materials, the development and optimization of piezoelectric sensors, the cables breakdown phenomena or the dielectric coating for the thermal control of geostationary satellites. Thus, our team has developed an original method, called FLIMM (Focused Laser Induced Modulation Method) and was equipped with PEA (Electro-Acoustic Pulsed) method.

First, the FLIMM method was adapted to carry out measurements under applied electric field. These measurements make it possible to calibrate space charges levels. Then, a new strategy of measurement has been developed, which allows, after a phase of calibration, to choose a zone of investigation and to measure the charge state in the sample with a very high-resolution, of about 1  $\mu\text{m}$ , within a reduced time.

In the second time, thermal modelling was approached. A new 1D multilayers model making calculation more simple and flexible and a 3D multilayers model by finite elements of the temperature allowed a closer consideration of the thermal environment of the sample and the laser beam absorption.

Finally, 3D space charges or polarization profile cartographies were realized with a very good spatial resolution on PEN thin films irradiated by UV, PVDF-TrFE or PTFE. Cartographies carried out on PVDF-TrFE were compared to those obtained by TPT method. Concerning space charges measurements carried out on PTFE thin films irradiated by an electron beam, results obtained with FLIMM and PEA techniques put in evidence the complementarity of these techniques.

**KEYWORDS :** FLIMM, PEA, TPT, space charge, polarization, solid dielectrics, polymers, electron beam, UV irradiation, thermal modeling, 3D cartographies

---