

RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE



Université des Frères Mentouri Constantine  
Faculté des Sciences de la Technologie  
Département d'Électronique



N° d'ordre :  
Série :

**THÈSE**

Présentée pour obtenir le diplôme de Doctorat 3<sup>ème</sup> cycle LMD  
en Électronique

**OPTION : Micro et nano technologies**

Par

**ROUABAH Sawsen**

**THEME**

*Etude de l'interaction élasto-optique et son  
application dans la conception de capteurs*

Soutenue le : 29/06/2017

**Devant le jury :**

Président :	M.BENSLAMA	Prof.	Université des Frères Mentouri Constantine
Rapporteur :	A. CHAABI	Prof.	Université des Frères Mentouri Constantine
Co-Rapporteur :	D. ROUXEL	Prof.	Université de Lorraine, France
Examineurs :	F.HOBAR	Prof.	Université Larbi Ben M'hidi Oum el Bouaghi
	R. MAHAMDI	Prof.	Université de Batna 2
	M.BOUCHEMAT	Prof.	Université des Frères Mentouri Constantine

# **REMERCIEMENTS**

*Ce travail de recherche a été effectué au laboratoire hyperfréquences et semi conducteurs (LHS) département électronique au niveau de l'université des Frères Mentouri de Constantine dans le cadre de l'obtention du Doctorat troisième cycle LMD.*

*Je remercie professeur Chaabi Abdelhafid, directeur de thèse, j'ai trouvé en lui un maître bienveillant qui m'a fait bénéficier de ses conseils et de son enseignement toujours utile.*

*La partie expérimentale a été réalisée à l'équipe 405 du département P2M de l'institut Jean LAMOUR (IJL) au sein de l'université de Lorraine, Nancy, France.*

*Je remercie les autorités compétentes de mon cher pays qui grâce à la ténacité et la réussite de mon parcours universitaire, m'ont honoré en m'octroyant la bourse PROFAS B+ qui m'a permis de finaliser ma thèse en France.*

*Je tiens à remercier professeur Benslama d'avoir présidé le jury de soutenance.*

*Je remercie vivement Professeur Hobar, d'avoir accepté de participer à mon jury de thèse, je la remercie vivement pour sa disponibilité et ses conseils, elle me semble un exemple à suivre tant professionnel qu'humain.*

*Je remercie professeur Mahamdi et professeur Bouchemat, pour leur participation à mon jury de thèse.*

*Je tiens à exprimer ma profonde gratitude et à remercier sincèrement mes co-directeurs de thèse Mr. Didier ROUXEL et particulièrement Mr. Brice VINCENT pour leur disponibilité, leur patience, leur pédagogie et leur confiance.*

*Je remercie mon collègue Van Son Nguyen pour son aide chaleureuse durant mon séjour de stage en France.*

*Je remercie également tous les enseignants qui m'ont guidé tout le long de mon cursus universitaire en particulier Madame Rebei et mes collègues de la promotion.*

*Et enfin je remercie toutes les personnes qui m'ont aidé de près ou de loin à la réalisation de ce travail.*

*Que ce travail soit un témoignage de ma très sincère reconnaissance et de mon profond respect.*

## *Dédicaces*

*En témoignage de ma profonde gratitude,*

*Je dédie ce mémoire :*

*A mon cher et adoré papy que j'aime profondément.*

*A mes parents pour l'affection dont ils m'ont toujours entourée et les encouragements qu'ils m'ont prodigués et surtout à ma très chère maman qui m'a encouragée tout le long de mon travail de recherche.*

*A la mémoire de ma regrettée grand-mère maternelle.*

*A la mémoire de mes regrettés grands parents paternels*

*A mes sœurs Yasmine et Nardjes.*

*A mes beaux frères Brice et Mehdi.*

*A Mes petites nièces Jenna et Sandra.*

*A mes très chers adorés Djihene et Abdou*

*Et à toute ma famille.*

# SOMMAIRE

<b>Introduction Générale.....</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique.....</b>	<b>4</b>
Introduction.....	5
1.1 Ondes élastiques dans les solides.....	5
1.1.1 Généralités sur les ondes.....	5
1.1.2 Types d'ondes.....	5
1.1.3 Autres ondes élastiques.....	5
1.2 Propriétés élastiques de solides.....	6
1.2.1 Déformation et contrainte.....	7
a- Tenseur de déformation.....	7
b- Tenseur de ontrainte.....	8
1.2.2 Loi de Hooke.....	9
1.3 Piézoélectricité.....	9
1.3.1 Définition.....	9
1.3.2 Histoire.....	10
1.3.3 Matériaux piézoélectriques.....	10
1.3.4 Equations de la piézoélectricité.....	11
1.3.5 Coefficient de couplage électromécanique.....	12
1.3.6 Modes de vibration.....	12
1.4 Interaction élasto-optique.....	14
1.4.1 Principaux cas d'interaction.....	14
1.4.2 Effet élasto-optique.....	16
1.5 Simulation des transformateurs piézoélectriques .....	16
1.5.1 Transformateurs piézoélectriques de type radial.....	16
1.5.1.1 modes e polarisation de transformateurs piézoélectriques.....	17
1.5.1.2 Simulation par Matlab.....	18
1.5.2 Transformateurs piézoélectriques type Rosen.....	21
1.5.2.1 Modes de polarisation de transformateurs piézoélectriques .....	21
1.5.2.2 Simulation avec le Comsol .....	22
Conclusion.....	25
<b>Chapitre 2 : Microscopie Brillouin et application dans les capteurs .....</b>	<b>26</b>
2.1 Diffusion Brillouin.....	26
2.2 Diffusion de lumière spontanée et stimulée.....	30
2.2.1 Diffusion spontanée	
2.2.2 Diffusion Stimulée	

2.3 Microscopie Brillouin.....	31
2.3.1. Dispositif expérimental de base.....	32
2.3.1.1 Source de lumière.....	33
2.3.1.2 Géométrie de diffusion.....	33
2.3.2. Le spectromètre.....	36
2.3.3. Détecteurs .....	39
2.4. Applications des capteurs à fibres optiques.....	40
2.4.1 Capteurs à fibres optiques.....	40
a- Effets d'irradiation sur les fibres optiques .....	41
2.4.2 Partie expérimentale .....	42
a- Echantillons préparés .....	42
b- Résultats et Discussions .....	42
Conclusion.....	49
<b><i>Chapitre 3 : Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés .....</i></b>	<b>50</b>
<b>Introduction.....</b>	<b>51</b>
3.1 Copolymère P(VDF-TrFE) .....	51
3.2 Les nanoparticules.....	52
3.2.1 Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	
3.2.2 ZnO	
3.3 Les nanocomposites.....	53
3.4 Comportement des polymères sous irradiation.....	53
3.4.1 interaction rayonnement- matière.....	53
3.4.2 Interactions électrons-matière.....	54
a) Collisions inélastiques avec les électrons des atomes de la cible.....	54
b) Collisions nucléaires.....	55
c) Rayonnement de freinage (Bremsstrahlung).....	55
d) Rayonnement Cerenkov.....	56
3.4.3 Comportement des polymères sous rayonnement.....	56
3.4.3.1 Les défauts macromoléculaires.....	57

i. Scissions de chaînes et réticulations .....	57
ii. Insaturations.....	57
3.5 Dispositif expérimental.....	71
Conclusion.....	80
<b>Conclusions générales .....</b>	<b>81</b>
<b>Liste des figures.....</b>	<b>84</b>
<b>Liste des tableaux.....</b>	<b>88</b>
<b>Références bibliographiques.....</b>	<b>90</b>
<b>Production scientifique.....</b>	<b>97</b>
<b>Annexes.....</b>	<b>99</b>
<b>Résumé.....</b>	<b>107</b>
<b>Abstract.....</b>	<b>108</b>
<b>ملخص.....</b>	<b>109</b>

# **Introduction générale**

### Introduction générale :

Les capteurs sont devenus des éléments clefs dans le fonctionnement ou la production des systèmes et ceci quelque soit le secteur industriel. Nous les retrouvons dans les technologies du secteur du divertissement jusqu'à celui de la santé en passant par les transports[1]. Ils sont indispensables pour de nombreuses applications que ce soit pour la mesure de paramètres physiques comme la température ou la pression ou de paramètres de fonctionnement comme la mesure de déplacement ou de déformation. Pour ces diverses applications, la miniaturisation et la sensibilité [2] sont parmi les paramètres les plus importants pour déterminer la pertinence de leur incorporation aux systèmes.

Les céramiques piézoélectriques [3] sont caractérisées comme des matériaux intelligents et ont été largement utilisées dans le domaine des actionneurs, des capteurs et des transformateurs piézoélectriques. Ces derniers ont été développés ces dernières années et possèdent d'excellentes propriétés de densité de puissance élevée, de faible bruit, de miniaturisation et d'isolation et qui sont devenus plus fiables.

Les capteurs à fibres optiques [4] font partie d'une technologie récente, au regard de l'histoire des capteurs, actuellement mise en œuvre dans une grande variété d'applications. Ces capteurs à fibres optiques distribués [5] , basés sur la diffusion Brillouin suscitent un énorme intérêt en raison de leur potentiel pour le contrôle de la température et de la déformation dans les grandes infrastructures [6]. Ils permettent de remplacer des milliers de capteurs ponctuels en raison de leur précision, de la longueur sur laquelle il peuvent être actifs, de la rapidité de la détection tout en étant actifs pendant de très longues durées, de la déformation spatiale mesurable élevée et de la résolution de la température. Nous pouvons trouver ce genre de capteurs à fibre dans diverses applications telles que : les structures civiles, la surveillance de l'environnement, l'industrie de l'aérospatial, la surveillance du générateur de puissance et l'ingénierie géotechnique. Dans notre travail, les réseaux de capteurs à fibres optiques sont utilisés dans les applications des sites de stockage en tant qu'élément sensible pour la mesure de profils de température ou de déformation sur de très longues distances. Après avoir conclu la faisabilité du stockage profond pour les déchets de haute activité (HA) et de moyenne activité à vie longue (MA-VL) ; l'ANDRA [7] (agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs) a développé le projet Cigéo [8] (centre industriel de stockage géologique) de stockage souterrain de déchets radioactifs. Plus précisément, ce projet vise à stocker les déchets radioactifs de haute activité et à vie longue produits par l'ensemble des installations nucléaires françaises, jusqu'à leur démantèlement, et par le traitement des combustibles usés utilisés dans les centrales nucléaires.

Quant aux nanocomposites hybrides [9] à base de nanoparticules qui sont incorporés dans matrice polymère, ils ont une grande importance pour les connaissances scientifiques académiques et les applications technologiques, en particulier dans le domaine de l'industrie spatiale. Leurs constantes diélectriques, piézoélectriques et pyroélectriques relativement grandes qui leur permettent de jouer un rôle majeur dans les applications spatiales.



## Introduction générale

Notre travail de thèse consiste à étudier l'interaction élasto-optique et son application dans la conception de capteurs. Notre manuscrit est composé de trois chapitres.

Le premier chapitre portera sur l'analyse purement théorique impliquant l'étude bibliographique des ondes élastiques dans les solides et l'interaction acousto-optique. Nous allons approfondir les notions de base théoriques de la piézoélectricité ainsi que des différents transducteurs et transformateurs piézoélectriques puis nous nous familiariserons à l'application du simulateur COMSOL Multiphysics dans le domaine des capteurs.

Le deuxième chapitre sera consacré à connaître la microscopie Brillouin, quelques généralités sur les fibres optiques et capteurs à fibres optiques, et à mesurer la fréquence des phonons acoustiques des modes longitudinaux par microscopie Brillouin.

Le troisième et dernier chapitre concernera l'étude des effets d'irradiation des copolymères P(VDF-TrFE) remplis des nanoparticules d'Oxyde de Zinc (ZnO) et d'Alumine ( $Al_2O_3$ ) et la capacité de ces matériaux à supporter des environnements de rayonnement tels que rencontrés dans les centrales nucléaires. Nous présenterons un état de l'art sur ces nanocomposites en décrivant le comportement de polymères sous rayonnement ionisant, la combinaison des propriétés mécaniques, électriques ou optiques. Enfin ce chapitre présentera l'étude et la mesure de la constante élasto-optique en utilisant la microscopie Brillouin.

# Chapitre 1

## *Etude de l'interaction élasto-optique*

# Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

---

## Introduction

Dans cette partie, nous allons présenter une relation entre les ondes élastiques et les ondes lumineuses en trois catégories. L'interaction acousto-optique, les mesures optiques du déplacement surfacique et la génération des ondes élastiques par effet photothermique.

Un nouveau intérêt dans les interactions élasto-optiques [10] (souvent appelées interactions acousto-optiques) a été généré surtout depuis l'invention du laser, de la source de la lumière monochromatique, et de la haute densité d'énergie. Ainsi que le développement de transducteurs piézoélectriques fonctionnant sur la gamme de GHz.

En effet, ce type d'interaction acousto-optique, appelé alors la diffusion Brillouin, s'est rapidement avéré être un moyen puissant d'investigation spectroscopique des vibrations dans les solides et les liquides.

Il a été découvert qu'un faisceau d'onde élastique constitué un moyen relativement simple pour modifier rapidement les paramètres d'un faisceau de la lumière, par exemple, l'intensité, la direction et la fréquence. A l'inverse, un faisceau lumineux était une sonde idéale pour mesurer certaines caractéristiques d'un faisceau d'ondes élastiques à l'intérieur du solide, comme, l'homogénéité, l'atténuation et le motif du rayonnement.

## 1.1 Ondes élastiques dans les solides

### 1.1.1 Généralités sur les ondes

Les ondes [11] sont définies par un phénomène de propagation d'une perturbation dans un milieu quelconque. Et elles sont définies aussi par une modification de l'état physique d'un milieu matériel ou immatériel, qui se propage à la suite d'une action locale avec une vitesse finie et déterminée par les propriétés des milieux traversés.

### 1.1.2 Types d'ondes

Il existe deux grandes familles d'ondes que nous pouvons les citer : ondes électromagnétiques (OEM) et ondes mécaniques (OM).

Les ondes OEM [12] sont caractérisées par la propagation simultanée d'un champ électrique et d'un champ magnétique comme la lumière, l'infrarouge, l'ultra violet, les rayons X, les ondes radio et le rayon Gamma. Les ondes mécaniques [13] telles que les ondes acoustique, les vibrations mécaniques, les ondes sismiques et les vagues à la surface d'eau ; sont définies par un phénomène de propagation d'une perturbation qui correspond à une variation d'une propriété mécanique (vitesse, position, énergie des points d'un milieu matériel) [14].

### 1.1.3 Autres ondes élastiques

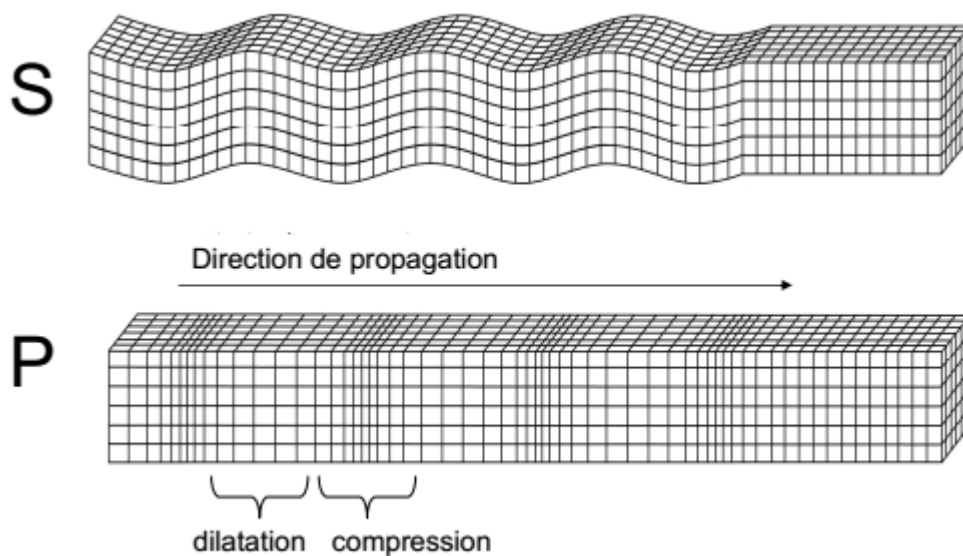
Nous distinguons deux types d'ondes fondamentales telle que :

## Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

- a- Ondes longitudinales : appelées ondes de compression, elles sont caractérisées par un déplacement des particules parallèle à la direction de propagation c'est à dire par une polarisation colinéaire au vecteur d'onde [14].
- b- Ondes transversales ou ondes de cisaillement ; le déplacement des particules s'effectue perpendiculairement au vecteur d'onde. Ces ondes se propagent dans des milieux solides isotropes et illimités [15].

Ces deux ondes sont considérées comme ondes de volume, cette dernière se propage dans tout milieu de dimension infinie.

Lorsque le milieu illimité est anisotrope, trois ondes peuvent se propager suivant une direction quelconque dont aucune n'est purement longitudinale ou purement transversale.



**Figure 1.1. Ondes de volume [16]**

Quant aux ondes de surface, elles sont allées pour le déplacement des particules, dépend de la surface de tout milieu. Parmi ces ondes de surface, nous pouvons en citer quelques uns sans détailler leur principe de génération [17].

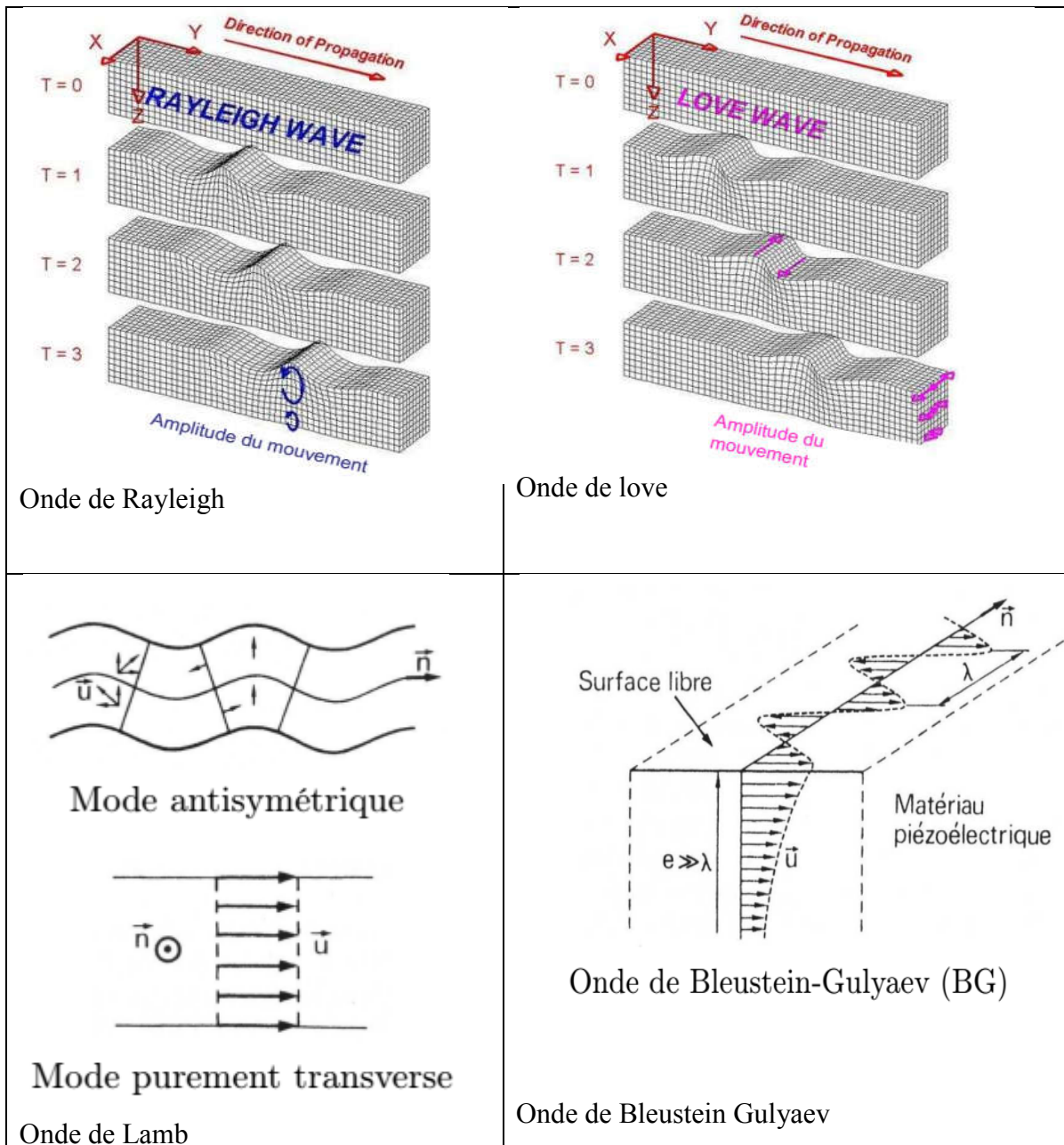


Figure 1.2. Différents types des ondes de surface [18-21]

## 1.2 Propriétés élastiques des solides

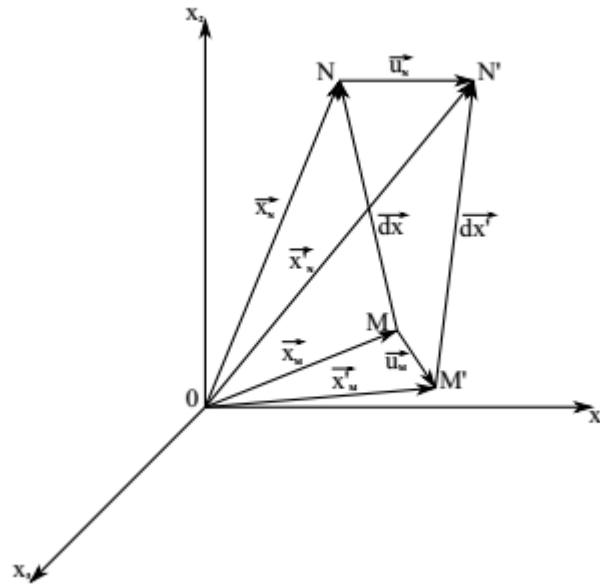
### 1.2.1 Déformation et contrainte

#### a- Tenseur de déformation

La déformation est un processus auquel un corps change ses dimensions en appliquant à des forces extérieures. Considérant deux points MN proche et placés dans un corps homogène (voir figure 1.3.) [22]

# Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

Après action d'une force sur ce corps, les points M et N se déplacent en M' et N'.



**Schéma 1.3. Déformation d'un matériau solide**

Les coordonnées du vecteur définies par ses deux points avant et après déformation sont données par :

$$MN \begin{pmatrix} dx_1 \\ dx_2 \\ dx_3 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad M'N' \begin{pmatrix} dx_1 + du_1 \\ dx_2 + du_2 \\ dx_3 + du_3 \end{pmatrix}$$

Nous pouvons écrire  $du_1$ ,  $du_2$  et  $du_3$  sous forme de

$$\begin{aligned} du_1 &= \frac{\partial u_1}{\partial x_1} \cdot dx_1 + \frac{\partial u_1}{\partial x_2} \cdot dx_2 + \frac{\partial u_1}{\partial x_3} \cdot dx_3 \\ du_2 &= \frac{\partial u_2}{\partial x_1} \cdot dx_1 + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} \cdot dx_2 + \frac{\partial u_2}{\partial x_3} \cdot dx_3 \\ du_3 &= \frac{\partial u_3}{\partial x_1} \cdot dx_1 + \frac{\partial u_3}{\partial x_2} \cdot dx_2 + \frac{\partial u_3}{\partial x_3} \cdot dx_3 \end{aligned}$$

En posant  $S_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial u_k}{\partial x_i} \cdot \frac{\partial u_k}{\partial x_j} \right)$

Les composantes du tenseur des déformations se réduisent à

$$S_{ij} = S_{ji} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad \text{avec } i, j = 1, 2, 3 \quad \dots \dots \dots (I)$$

b- Tenseur de contrainte :

Des actions extérieures sont nécessaires pour déformer un solide. Des forces peuvent être exercées sur sa surface, par contact mécanique ou en son cœur par un champ. Les contraintes

# Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

qui sont des tensions mécaniques sont apparues dans le solide déformé, tendent à le ramener dans son état de repos et assurent l'équilibre de la matière [23].

La contrainte est une grandeur homogène et s'exprime en Pa. Nous pouvons déduire la relation suivante de la contrainte :  $\sigma = \frac{F}{S}$  avec F ; la force exercée et S ; l'aire

## 1.2.2 Loi de Hooke

Les contraintes qui se développent dans un solide déformé sous l'action de forces d'extérieures tendent à lui restituer sa forme initiale. La loi de Hooke est une relation entre une contrainte et une déformation. Elle s'écrit suivant la relation  $T_{ij} = c_{ijkl} \cdot S_{kl}$

Avec  $T_{ij}$  : tenseur de contrainte

$S_{kl}$  : tenseur de déformation

$c_{ijkl}$  : tenseur des rigidités élastiques

nous remarquons que ce tenseur de rigidité est de rang quatre, mais peut s'écrire avec seulement deux indices  $c_{ij}$  en notation de Voigt.

## 1.3 Piézoélectricité :

### 1.3.1 Définition

La piézoélectricité est une propriété possédée par certains matériaux (cristaux, céramiques, polymères ou composites) de se polariser électriquement sous l'action d'une contrainte mécanique ; c'est un effet direct, et de se déformer sous l'action d'un champ électrique [24].

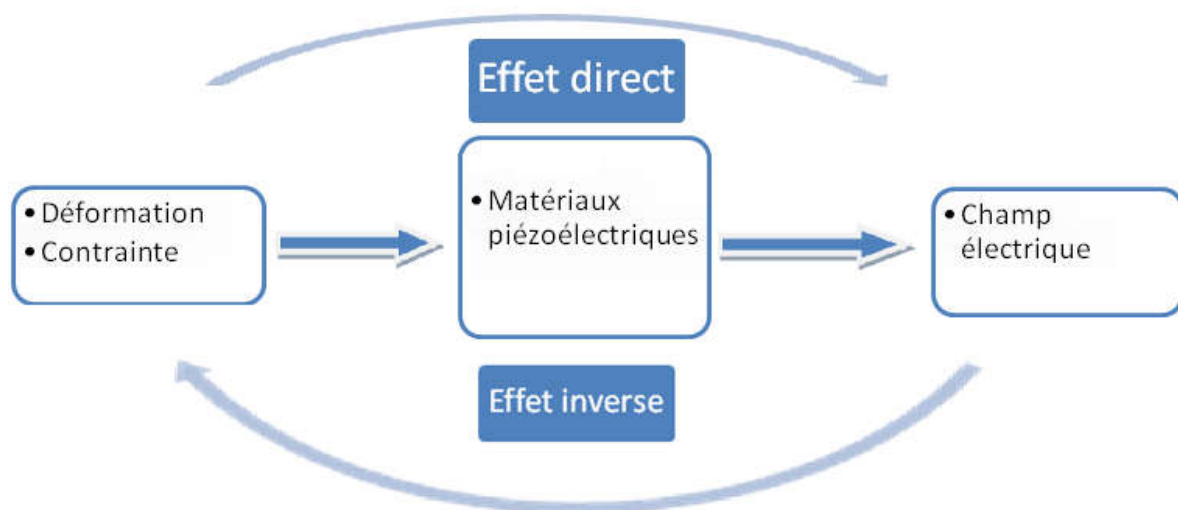


Figure 1.4. Définition de la piézoélectricité

# Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

## 1.3.2 Histoire

La première observation qualitative du phénomène de la piézoélectricité ait été faite par un minéralogiste français l'abbé : René Just Haiy en 1817.

En 1880, les frères Jacques et Pierre Curie ont attribué la découverte expérimentale de l'effet direct de la piézoélectricité à Paris sur le cristal de Quartz. Cette découverte attira immédiatement l'attention d'un français Gabriel Lippman. Il a démontré que le phénomène était réversible l'année suivante.

En 1917, Paul Langevin réalisa un générateur d'onde d'ultrasonore pour la mesure et la détection sous marine. Le transducteur fut le précurseur du premier SONAR (Sound Navigating Ranging). Le succès de sonar a stimulé l'activité intense de développement sur toutes sortes de dispositifs piézoélectriques résonnant et non résonnant.

En 1954, les PZT (Zirconate Titanate de Plomb) ont été élaborés et se sont répandues très rapidement. En 1969, Kawai a été le premier à découvrir les propriétés piézoélectriques du polymère PVDF (Polyvinilidène difluoré).

Depuis les années 1980, différents nouveaux matériaux piézoélectriques ont été élaborés. Jusqu'à maintenant, la recherche de nouvelles applications a ouvert la voie à de nombreux axes de recherche ce qui mène que la piézoélectricité entre dans le monde de micro et nano technologie [25].

## 1.3.3 Matériaux piézoélectriques

Il existe trois grandes familles des matériaux piézoélectriques présentant l'effet piézoélectrique : les cristaux [26], les polymères [27] et les céramiques. Ces derniers font partie de la classe cristalline piézoélectrique que nous pouvons les conclure dans l'organigramme suivante :

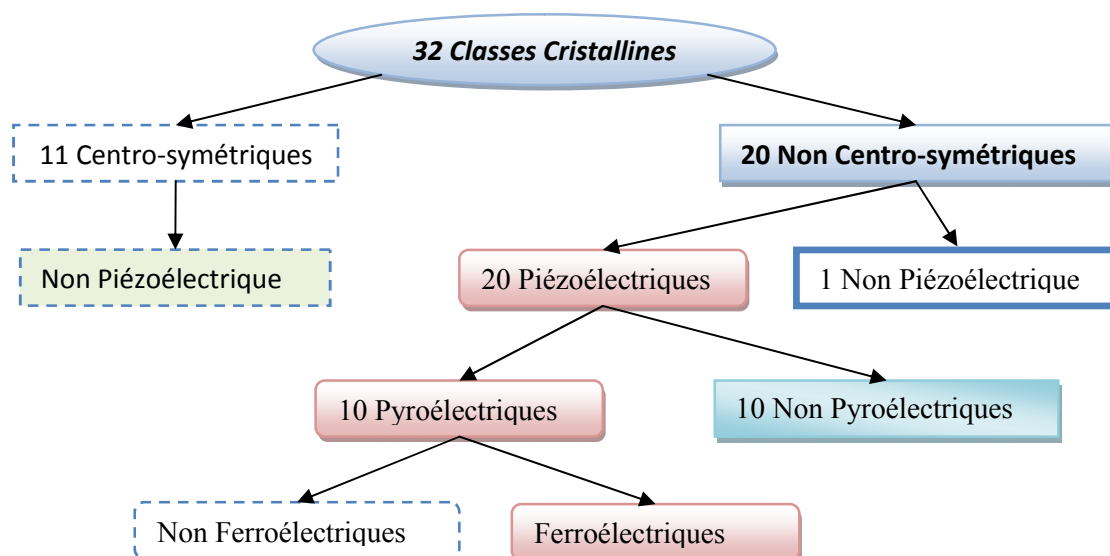


Figure 1.5. Hiérarchie des classes cristallines



# Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

Les structures cristallines peuvent être divisées en 32 classes, ou des groupes de point selon le nombre d'axe rotationnel et les plans de réflexion pour qu'ils laissent la structure cristalline inchangée. Parmi ces 32 classes, il existe 20 qui représentent l'effet piézoélectrique qui manquent un centre de symétrie. Tout matériau développe une polarisation électrique sous l'influence d'une contrainte mais une substance a une telle séparation de charges à l'état naturel, même en absence d'un champ électrique, ceci est appelé un matériau polaire.

Parmi les 20 classes piézoélectriques, il y a 10 classes qui sont polaires, cela signifie qu'ils ont une direction du vecteur. Ces matériaux peuvent avoir une polarisation spontanée qui est généralement une fonction de la température. Ils sont appelés pyroélectriques. Quant aux matériaux ferroélectriques, ils sont un sous ensemble des matériaux pyroélectriques dans lequel le sens de la polarisation peut être renversé sous l'action d'un champ électrique, donc, tous ces matériaux sont à la fois piézoélectrique et pyroélectrique.

### 1.3.4 Equations de la piézoélectricité

Dans un solide piézoélectrique, il existe un phénomène de couplage entre énergie élastique (variables mécaniques : déformation  $S$  ou contrainte  $T$ ) et énergie électrique (variables électriques telle que induction électriques  $D$  ou champ électrique  $E$ ).

Il existe quatre couples d'équations de la piézoélectricité qui permettent d'écrire le phénomène de couplage ; ils sont décrits selon les relations tensorielles suivantes [28] :

$$\begin{cases} S = S^E \cdot T + d^e \cdot E \\ D = \varepsilon^T \cdot E + d \cdot T \end{cases} \dots \dots \dots (2)$$

$$\begin{cases} T = c^D \cdot S - h^T \cdot D \\ E = \beta^S \cdot D - h \cdot S \end{cases} \dots \dots \dots (3)$$

$$\begin{cases} S = S^D \cdot T + g^t \cdot D \\ E = \beta^T \cdot D - g \cdot T \end{cases} \dots \dots \dots (4)$$

$$\begin{cases} T = c^e \cdot S - e^t \cdot E \\ D = \varepsilon^S \cdot E + e \cdot S \end{cases} \dots \dots \dots (5)$$

Dont l'appellation de chaque terme des équations est montrée suivant le tableau (Tab 1.1) :

**Tab1.1. Glossaire des grandeurs électriques, mécaniques et piézoélectriques [29]**

Grandeur	Terme	Noms	Taille matricielle	Unité
Electrique	$\varepsilon$	Permittivité électrique	3x3	F/m
	$\beta$	Imperméabilité électrique		m/F
Mécanique	$S$	Compliance/ souplesse	6x6	$m^2/N$
	$C$	Raideur / rigidité élastique		$N/m^2$

## Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

Piézoélectrique	D	Constante de charge	3x6	C/N ou m.V
	e	Constante piézoélectrique		C.m <sup>2</sup>
	g	Constante de tension		m <sup>2</sup> /C
	h	Constante piézoélectrique		V/m ou N/C

L'exposant t dans les équations (2), (3), (4) et (5), signifie de la matrice transposée de chaque élément.

Nous allons définir les différentes matrices essentielles présentes dans les équations précédentes. Nous allons considérer dans le cas d'une classe 6mm qui est un matériau hexagonal c'est-à-dire, il possède un axe d'ordre 6 et 6 plans de symétrie ; ce système comporte 5 classe cristallines. Et aussi dans le cas d'un système trigonal comme (3m) qui est un matériau possédant un axe ternaire ( $A_3$ ). Nous allons donner les coefficients tensoriels de chaque élément  $S^E$ ,  $\varepsilon$  et d dans le tableau suivant (Tab 1.2) :

**Tab1.2. Les coefficients tensoriels des composantes**

Coe ffici ent	Classe 6mm	Classe 3m
$S^E$	$\begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} & 0 & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{11} & S_{13} & 0 & 0 & 0 \\ S_{13} & S_{13} & S_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \left(\frac{S_{11}-S_{12}}{2}\right) \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} & S_{14} & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{11} & S_{13} & -S_{14} & 0 & 0 \\ S_{13} & S_{13} & S_{33} & 0 & 0 & 0 \\ S_{14} & -S_{14} & 0 & S_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} & S_{14} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & S_{14} & \left(\frac{S_{11}-S_{12}}{2}\right) \end{pmatrix}$
$\varepsilon$	$\begin{pmatrix} \varepsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{33} \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} \varepsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{33} \end{pmatrix}$
D	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$

La matrice de  $S^E$  est identique pour  $C^E$ ,  $C^D$ ,  $S^D$ .

# Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

La matrice  $d$  est la même pour les autres coefficients piézoélectriques telles que  $e$ ,  $g$  et  $h$ .

## 1.3.5 Coefficient de couplage électromécanique

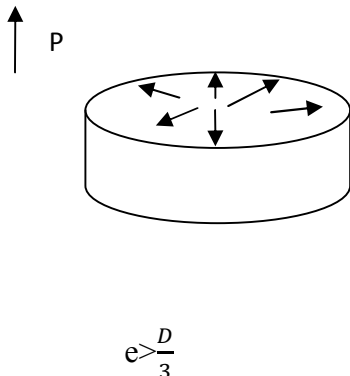
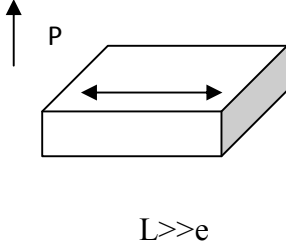
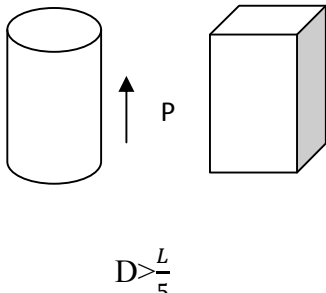
Le couplage électromécanique est mesuré par la capacité d'un matériau piézoélectrique à convertir l'énergie électrique emmagasinée en énergie mécanique ou vice versa.

## 1.3.6 Modes de vibration

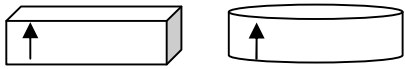
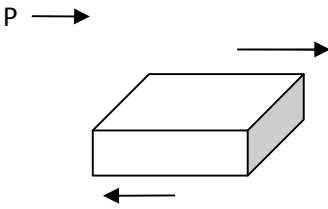
Il existe plusieurs modes de vibration dans les matériaux piézoélectriques. Cette dernière possède une fréquence élastique de vibration déterminée, en fonction de la forme géométrique, de la direction de polarisation et de la direction de la tension appliquée. Nous distinguons cinq modes de vibration qui correspondent à cinq formes de couplages électromécaniques différents.

Le tableau (Tab.3.) représente les différents modes de vibration ainsi que tout type d'échantillon piézoélectrique.

**Tab1.3. Différents modes de vibration [30]**

Mode de vibrations	La géométrie	Couplage électromécanique
Radial		$K_p = K_{31} \sqrt{\frac{2}{1 + \frac{S_{12}^E}{S_{12}^E}}}$
Transverse		$K_{31} = \frac{d_{31}}{\sqrt{S_{11}^E \epsilon_{33}^T}}$
Longitudinal		$K_{33} = \frac{d_{33}}{\sqrt{S_{33}^E}}$

# Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

Epaisseur	 <p style="text-align: center;"><math>D &gt; \frac{L}{5}</math></p>	$K_T = \frac{d_{33}}{\sqrt{c_{33}^D \epsilon_{33}^S}}$
Cisaillement	 <p style="text-align: center;"><math>L \gg 8e</math></p>	$K_{15} = \frac{d_{15}}{\sqrt{S_{55}^E \epsilon_{11}^T}}$

## 1.4 Interaction élasto-optique

### 1.4.1 Principaux cas d'interactions

Dans cette partie, nous allons décrire la relation entre les ondes élastiques et les ondes lumineuses selon trois cas d'interaction.

Un rayon lumineux passe à travers un solide isotrope sous la forme d'une tige, dans lequel un faisceau d'ondes élastiques se propage. Donc il existe trois cas principaux qui peuvent être distingués en :

Premier cas : la figure 1.6 montre qu'un faisceau lumineux de largeur inférieure à la longueur d'onde élastique, la variation lente de l'indice optique du milieu courbe seulement les rayons lumineux (effet de mirage).

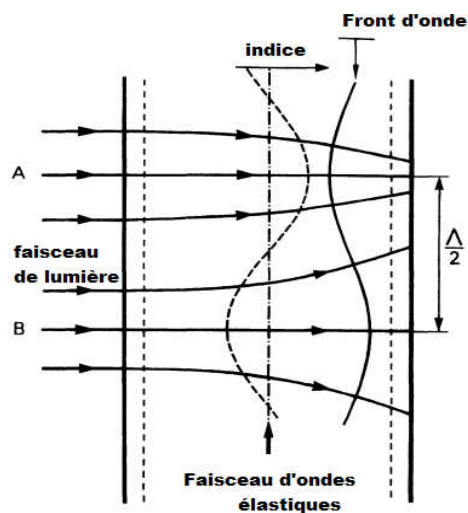


Figure 1.6. Effet de mirage

## Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

Deuxième cas : la variation périodique de l'indice crée des faisceaux d'intensités et des directions différentes lorsque la largeur du faisceau lumineux est grande devant la longueur d'ondes élastiques. Ceci peut s'expliquer en assumant que les foyers sont formés en courbant des rayons lumineux et que ces points de contact agissent alors comme sources. Les interférences des ondes issues de ces sources expliquent la division du faisceau en plusieurs faisceaux distincts (Effet de réseau). Ce phénomène peut également être analysé en considérant le déphasage des ondes lumineuses produites par l'onde progressive de variations d'indice. La figure 1.7 suivante montre l'effet de réseau.

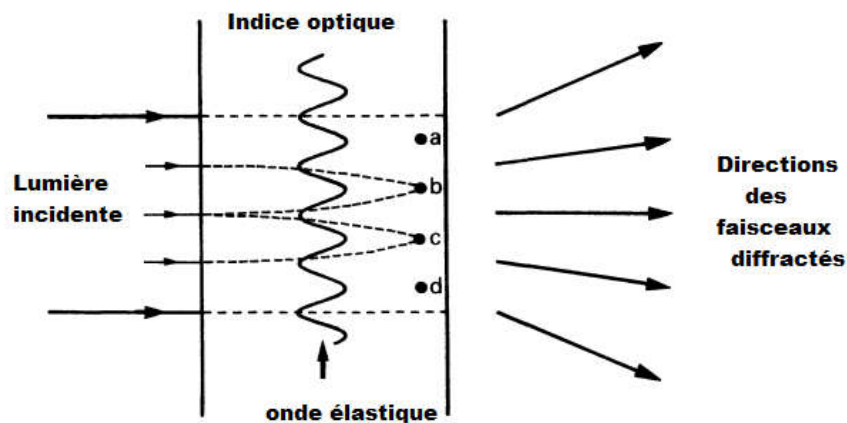


Figure 1.7. Figure de réseau

Troisième cas : la figure 1.8 montre l'effet de Bragg ce qui nous explique que l'angle entre le faisceau lumineux incident et le faisceau élastique soit incliné d'une façon pour obtenir un seul faisceau lumineux et les autres faisceaux se détruisent par interférences [31].

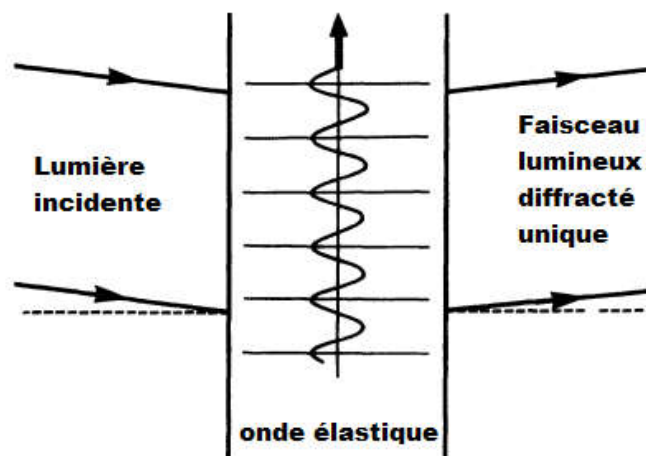


Figure 1.8. Effet de Bragg

# Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

L'interaction acousto-optique entre les ondes élastiques et les ondes lumineuses a été analysée en 1922 par Léon Brillouin [32]. Les premières expériences ont été effectuées par René Lucas et Pierre Biquard [33] en France en 1932, et par P. Debye et F.W Sears [34] aux Etats Unis. Puis, un peu plus tard, d'autres travaux ont été faits par C.V Raman et N.S.N Nath [35] en Inde. Cette interaction analysée sous différentes conditions, elle se pose en raison de changement dans la permittivité diélectrique d'un milieu en raison de l'onde élastique, qui cause alors des variations dans le champ électrique de l'onde lumineuse.

## Effet élasto-optique

En général, l'effet élasto-optique est basé sur le changement de l'indice de réfraction d'un milieu en raison de la présence d'ondes acoustiques dans ce milieu. Pour décrire cet effet, nous devons introduire le tenseur élasto-optique à partir de la théorie de Pockels.

Une onde élastique se propageant dans un milieu cristallin est généralement décrite par le tenseur de déformation (équation I). L'effet élasto-optique classique introduit par Pockels indique que le changement du tenseur d'imperméabilité  $\Delta B_{ij}$  est linéairement proportionnel au tenseur de déformation symétrique.

$$\Delta B_{ij} = p_{ijkl} S_{kl} \dots \dots \dots (6)$$

$p_{ijkl}$  est le tenseur élasto-optique

Nous allons étudier dans le paragraphe suivant les deux différents types de transformateurs utilisés pour application dans les MEMS.

### 1.5 Simulation des transformateurs piézoélectriques

Comme applications, nous allons étudier dans le 1<sup>er</sup> cas un transformateur piézoélectrique radial puis le simuler avec le matlab. Et dans le deuxième cas, nous allons réaliser et simuler un transformateur piézoélectrique de type Rosen par Comsol.

Le phénomène de miniaturisation des dispositifs électroniques embarqués au sein de matériels mobiles utilisés dans diverses applications tels que la téléphonie, la micro-informatique ou encore l'instrumentation nécessite de disposer de sources d'énergie électrique. Ces sources offrent également des performances en termes de rendement, de fiabilité, de compatibilité électromagnétique. Face à ces exigences, la technologie des transformateurs piézoélectriques apparait comme une solution alternative pouvant générer des perturbations électromagnétiques.

#### 1.5.1 Transformateur piézoélectrique en mode radial

Les transformateurs en mode radial sont réalisés dans des céramiques de forme cylindrique de hauteur plus faible que le rayon et polarisées selon leur épaisseur. Une structure est illustrée dans la figure I.9. ; séparée par un isolant rigide (la rigidité de l'isolant assure un meilleur couplage entre primaire et secondaire permettant de limiter les pertes), peuvent être constitués d'une ou plusieurs couches polarisées alternativement suivant

# Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

l'épaisseur d'un seul disque sur lequel les électrodes concentriques ont été déposées. Actuellement le transformateur piézoélectrique en mode radial est utilisé dans un ballast électronique pour LED (Light Emitting Diode), convertisseurs de puissance et adaptateurs.

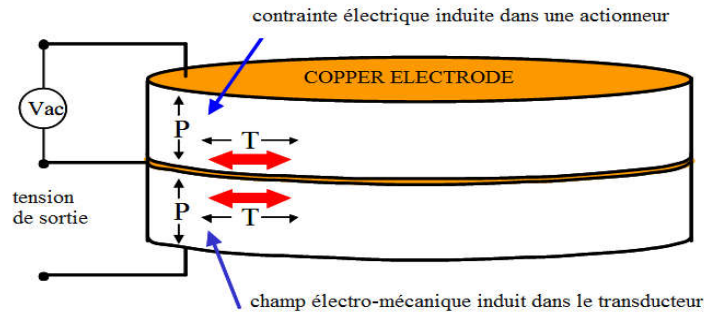


Figure 1.9. Transformateur en mode radial

## 1.5.1.1 Le circuit équivalent électrique

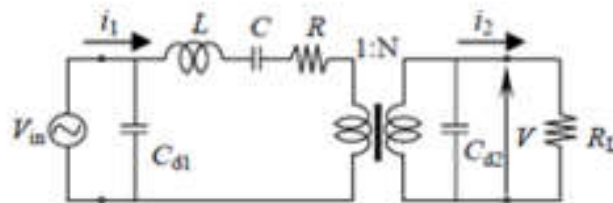


Figure 1.10. Schéma équivalent du transformateur piézoélectrique

Pour analyser le transformateur piézoélectrique en mode radial [10], il est utile d'appliquer le circuit équivalent électrique qui comprend une tension constante et une résistance de charge  $R_{charge}$ . La figure 1.10. montre le circuit équivalent multiniveaux avec  $C_{d1}$  et  $C_{d2}$  qui sont la capacité amortie d'entrée et de sortie, respectivement. Le circuit contient les  $R$ ,  $L$  et  $C$  qui sont la résistance mécanique équivalente, la masse équivalente et la capacité équivalente de l'entrée, respectivement. Tous ces paramètres sont développés sur [30].

Le gain en tension  $G$  est le rapport de la tension de sortie et la tension d'entrée qui est défini comme suit

## Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

$$G = \frac{1}{N \sqrt{\left(\frac{1}{N^2} + \frac{C_{d2}}{C} - w^2 L C_{d2} + \frac{R}{Rcharge}\right)^2 \left(w \left(RC_{D2} + \frac{L}{Rcharge}\right) - \frac{1}{wcRchare}\right)^2}}$$

$N$  : nombre de couche primaire sur secondaire

$C_{d2}$  : capacité amortie de sortie

$C$  : capacité équivalente de l'entrée

$w$  : pulsation

$R$  : résistance mécanique équivalente

$Rcharge$  : la résistance de charge

### 1.5.1.2 Simulation par Matlab

Dans cette partie, nous avons utilisé le Matlab/Simulink<sup>TM</sup> comme le simulateur pour tracer les gains en tension en fonction de la fréquence.

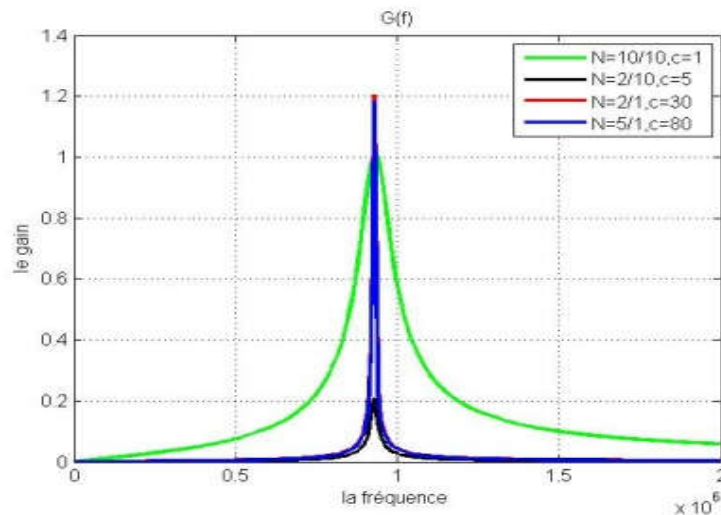
Nous allons décrire les valeurs des paramètres du matériau PKI 802 [30] pour tracer les gains en tension suivant le tableau Tab 5

**Tab1.4. Les paramètres du matériau PKI 802**

Paramètres	valeur
Densité	$\rho = 7.6 \text{ (g/cc)}$
Constante diélectrique relative	$\epsilon_{33}^T = 1000\epsilon_0$
Coefficient de poisson	$\sigma = 0.32$
Facteur de qualité mécanique	$Q_m = 900$
Coefficients de couplage	$k_{31} = 0.30$ $k_{33} = 0.61$
Coefficients piézoélectriques	$d_{31} = -100.10^{-12} \left(\frac{m}{V}\right)$ $d_{33} = 220.10^{-12} \left(\frac{m}{V}\right)$
Compliance élastique	$S_{11}^E = 10,4.10^{-12} \left(\frac{m^2}{N}\right)$ $S_{33}^E = 13,5.10^{-12} \left(\frac{m^2}{N}\right)$

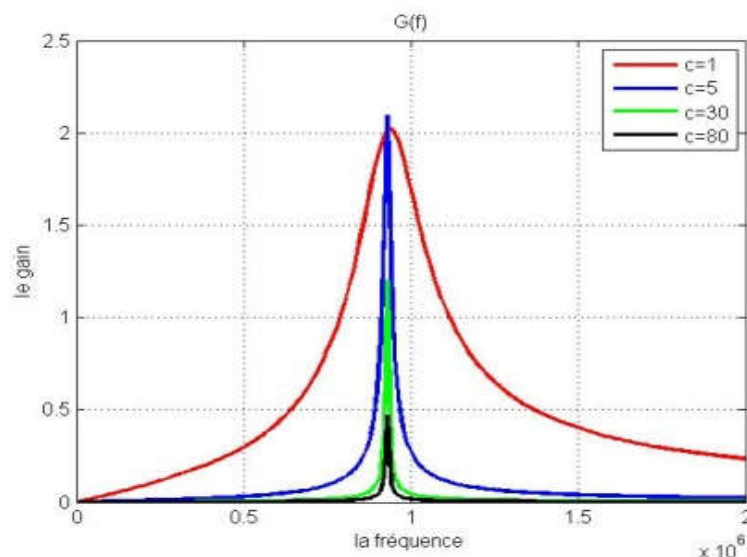
La figure 1.11 montre que le gain en tension à une fréquence de résonance a 950kHz.





**Figure 1.11. Gain en tension en fonction de la fréquence avec différents capacités et nombre de couches primaires et secondaires**

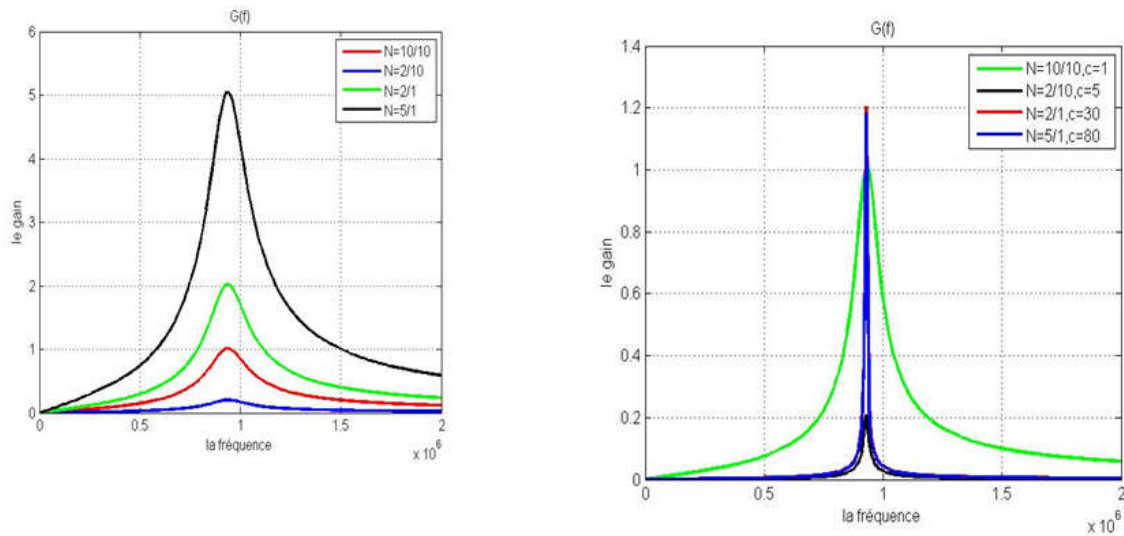
Lorsqu'on fait varier la valeur de capacité, la simulation montre qu'il existe une valeur optimum pour laquelle nous avons un gain maximum tout en conservant une bande passante très étroite (voir figure 1.12.).



**Figure 1.12. Gain en tension en fonction de la fréquence avec différentes capacités**

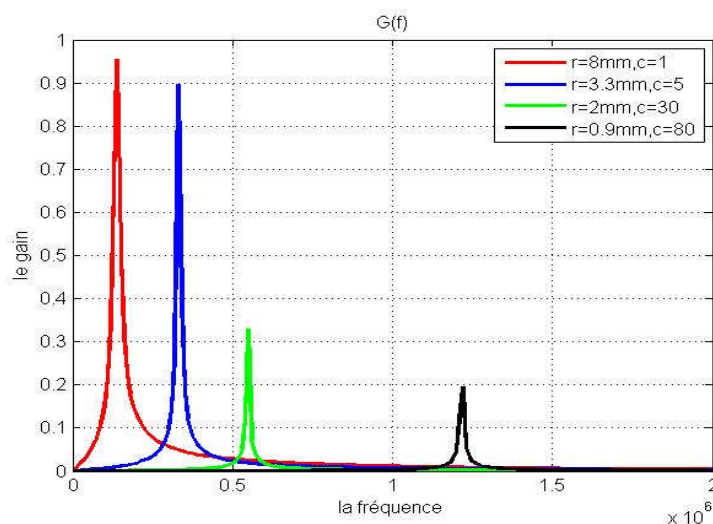
Nous avons simulé le gain en tension avec différentes capacités, nous avons constaté que les pics s'élargissent lorsque la fréquence de résonance est à 950KHz, c'est à dire, plus le nombre de la capacité augmente, plus la bande passante devient de plus en plus étroite.

Nous avons tracé le gain en fonction de la fréquence en changeant les valeurs de rayon du disque, et les valeurs de la capacité  $c$ .



**Figure 1.13. Gain en tension en fonction de la fréquence pour différents capacités et nombre de couches**

Dans le cas de différentes valeurs de c et N nombre de couche, la bande passante est large lorsque le nombre de couche primaire et secondaire est identique et la capacité est petite.



**Figure 1.14. Gain en tension en fonction de la fréquence pour différentes valeurs de rayon et capacités**

Nous observons clairement que la fréquence de résonance dépend des paramètres intrinsèques et des dimensions de la céramique, quand le rayon diminue et la capacité augmente, la fréquence de résonance et le gain en tension augmentent. La fréquence de résonance est

# Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

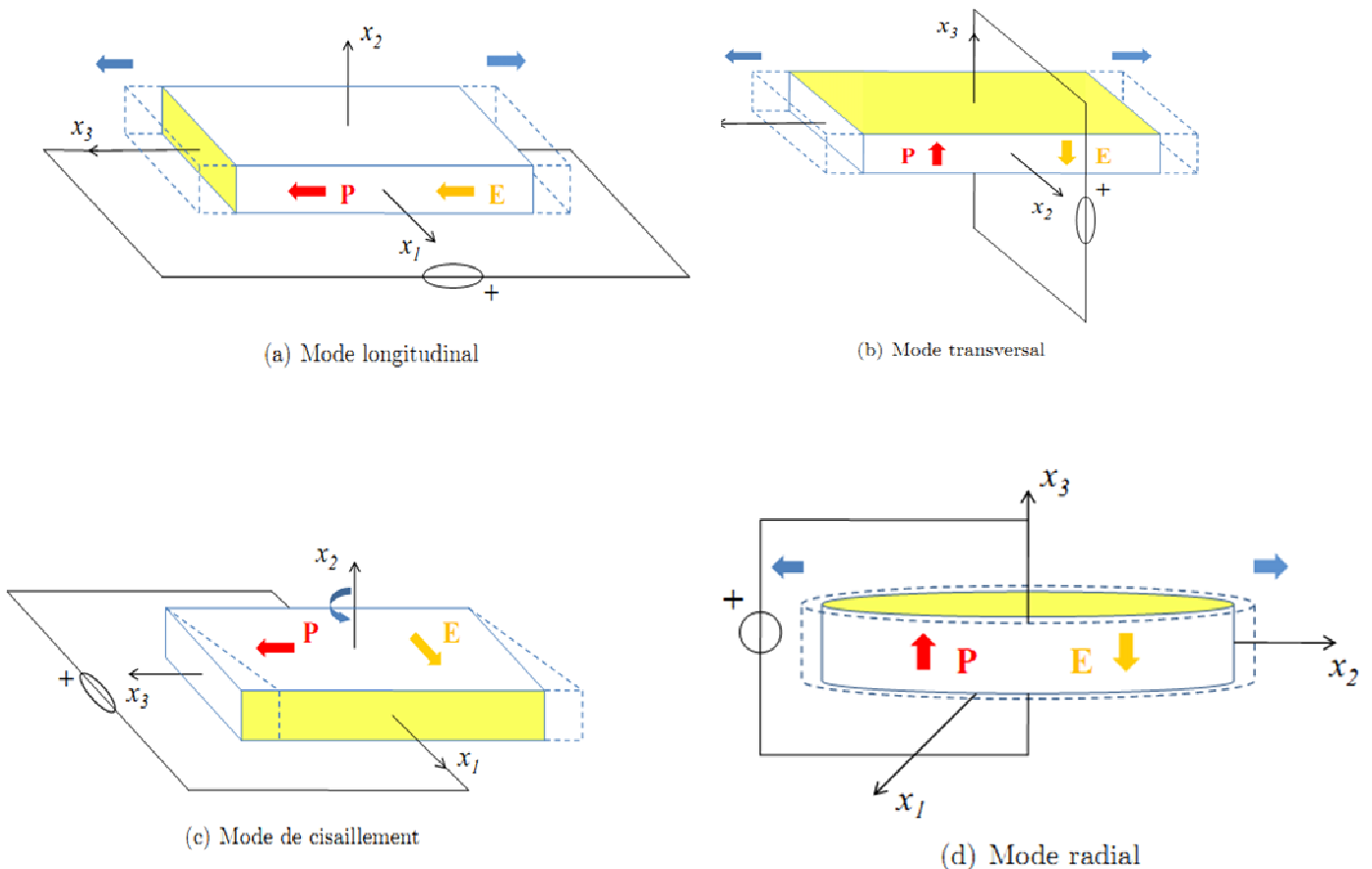
décalée vers les basses fréquences. Par contre, la bande passante diminue lorsque la fréquence augmente. (voir figure 1.14)

## 1.5.2 Transformateur piézoélectrique type Rosen

Un transformateur piézoélectrique est basé sur une double transformation électromécanique. Les limitations de ces transformateurs sont basées sur la faible résistance mécanique du matériau piézoélectrique, sur la concentration excessive de contraintes en certains points, les améliorations portent sur la mise en place de nouvelles géométries.

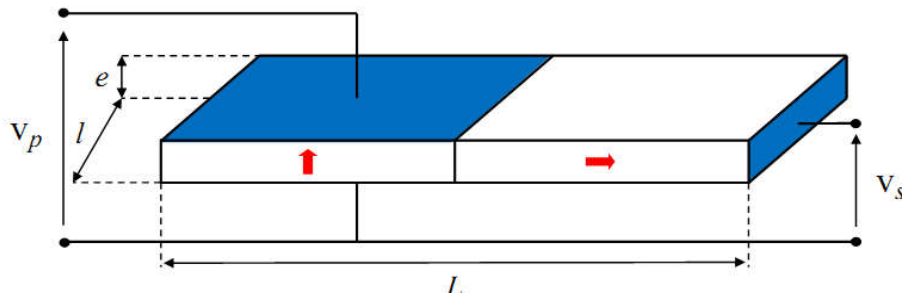
### 1.5.2.1 Modes de polarisation de transformateurs piézoélectriques:

Comme nous avons vu dans le paragraphe 1.3.1 les modes de vibrations, il existe plusieurs modes de transformateurs, nous allons les citer sans détailler leurs principes de fonctionnement.



**Figure 1.15 modes de polarisation des transformateurs piézoélectriques**

La figure 1.16. montre une présentation schématique d'un transformateur de type Rosen de longueur  $L$ , de largeur  $l$  et d'épaisseur  $e$ .



**Figure 1.16. Transformateur de type Rosen**

D'un point de vue mécanique, cette structure fonctionne suivant la résonance liée à la longueur du transformateur. Le primaire exploite le couplage transversal et la conversion mécano- électrique du secondaire se fait par le biais du couplage longitudinal. Les transformateurs de type Rosen ont deux inconvénients importants :

- \* ils ne bénéficient pas d'isolation galvanique naturelle et étant donnée la géométrie, il n'est pas évident de leur en donner.
- \* Cette structure nécessite deux cycles de polarisation distincts puisque la direction de polarisation n'est pas la même pour le primaire et le secondaire.

Le transformateur piézoélectrique de type Rosen est également considéré comme une HVPT (High Voltage Piezoelectric Transformer) en raison de son gain en tension élevé. Ce type de transformateur piézoélectrique est compatible avec une haute impédance de charge d'entrée et ses applications sont actuellement en électronique de ballast pour CCFL (Cold Cathode Fluorescent Lamp) et la source de haute tension.

### 1.5.2.2 Simulation avec le Comsol

Comsol multiphysics est utilisé comme un outil de simulation pour concevoir notre structure et extraire les paramètres de sortie qui sont le déplacement total et le gain en tension en fonction des entrées (fréquence et charge). Pour simuler le transformateur piézoélectrique Rosen avec le Comsol multiphysics, les appareils piézoélectriques et la physique des circuits électriques sous les mécanismes structurels sont utilisés. Le type d'étude requis pour un balayage de fréquence est le domaine fréquentiel. (Voir figure 1.17.)

# Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique

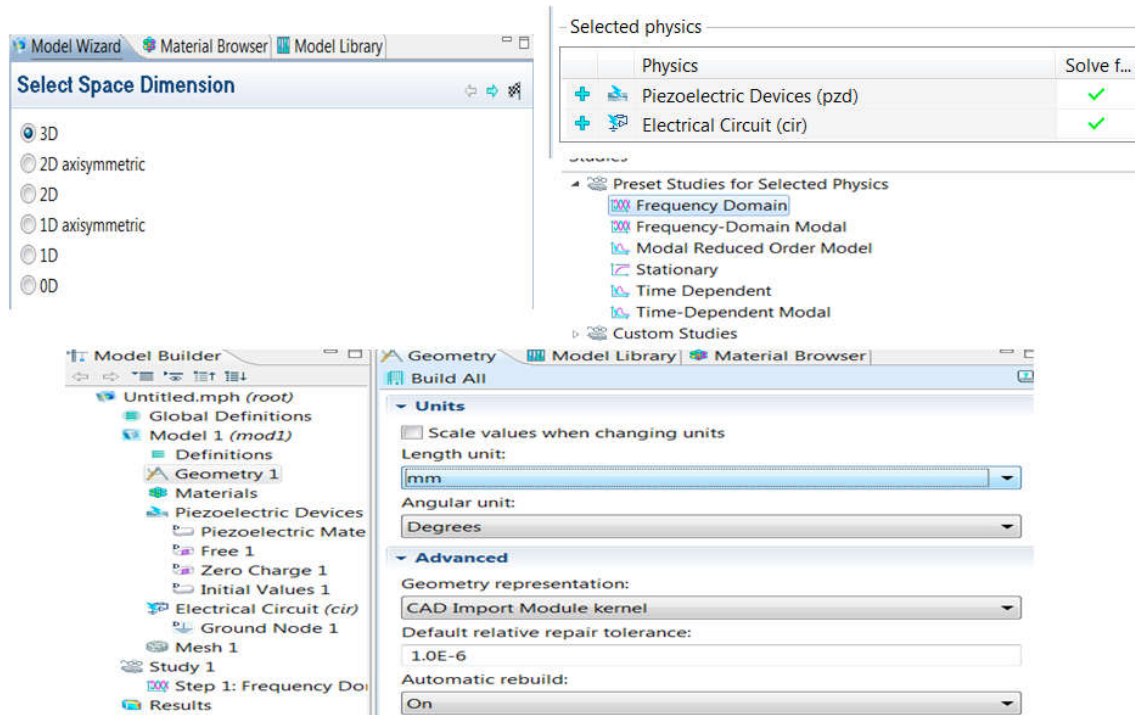


Figure 1.17. Les caractéristiques utilisées pour concevoir le transformateur

Après la conception, nous polarisons le piézoélectrique  $V=10\sin(\omega t)$  et la charge  $R_{charge} = 10^5 \text{ Ohm}$ .

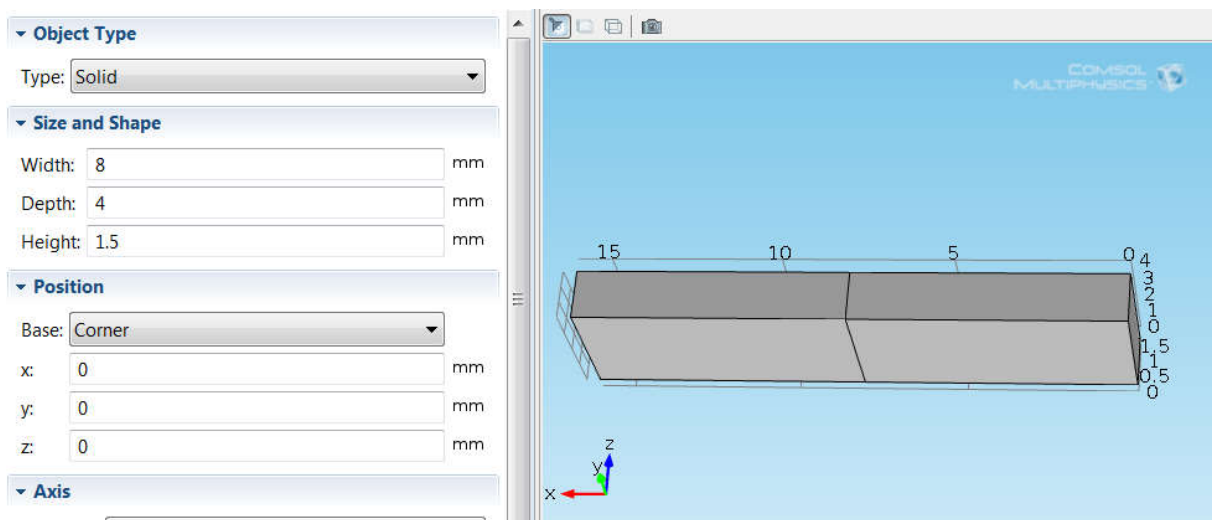
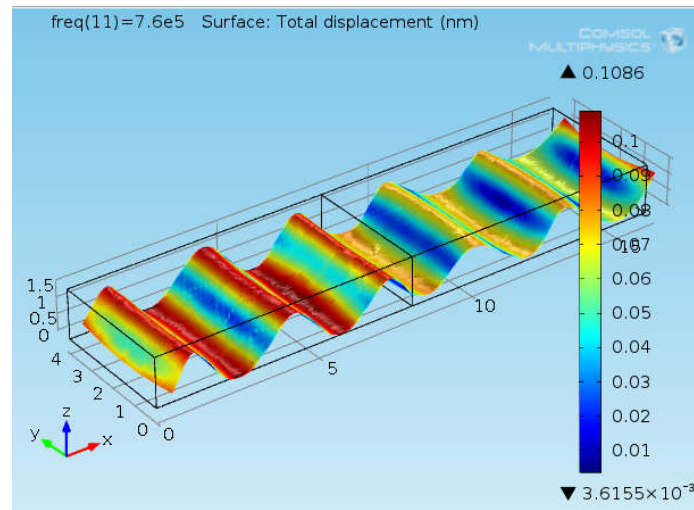


Figure 1.18. Architecture d'un transformateur utilisant le logiciel Comsol

Les matériaux sélectionnés sont : le Titanate de zirconate de plomb (PZT 5H), car il a un bon avantage surtout il offre une sensibilité élevée et une bonne réponse et le Niobate de lithium  $\text{LiNbO}_3$  [36].

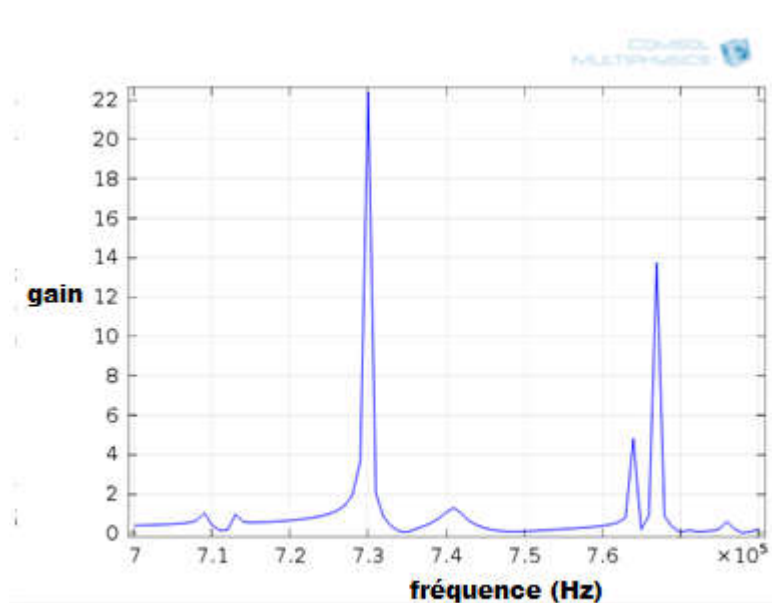
## Chapitre 1 : Etude de l'interaction élasto-optique



**Figure 1.19. Simulation en 3D du déplacement ( $f=7.6^e5$  Hz)**

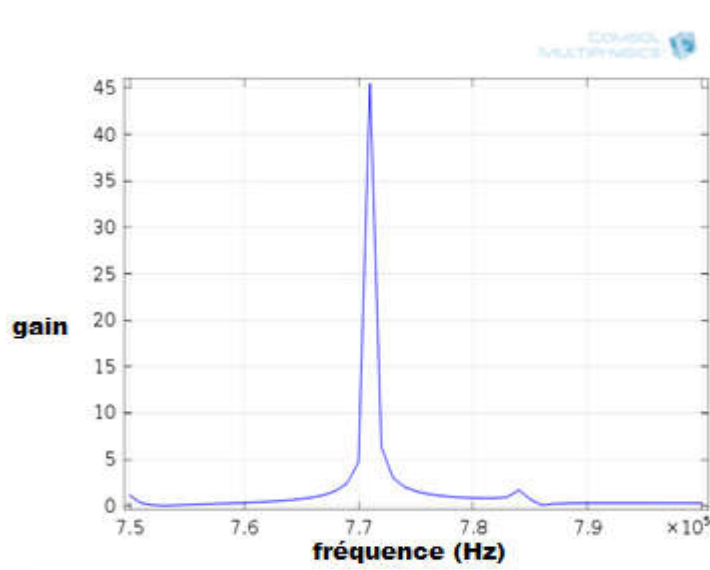
Lorsque nous avons appliqué la tension sur un transformateur piézoélectrique, il commence à être déformé comme une onde qui est représentée sur la figure 1.19.

Après une simulation, nous avons tracé le gain en fonction de la fréquence et sera présenté dans la figure suivante :



**Figure 1.20. Gain en tension dans le cas du transformateur en  $\text{LinbO}_3$**

Nous constatons dans le cas d'un transformateur piézoélectrique deux fréquences de résonance à la fréquence 730 kHz et 770 kHz.



**Figure 1.21. Gain en tension en fonction de la fréquence**

La figure 1.21. montre que le gain est très élevé lorsque la fréquence de résonance est de 770kHz par rapport au gain dans le cas d'un transformateur en  $\text{LiNbO}_3$ . Ce qui explique que le transformateur piézoélectrique change et varie grâce aux variables mécaniques et électriques. Le gain de tension obtenu a un nombre élevé, ce qui signifie que nous pouvons minimiser le transformateur piézoélectrique Rosen autant que possible selon sa fréquence élevée.

### **Conclusion**

Nous avons présenté dans ce chapitre, les différents types d'ondes ainsi que les ondes élastique dans les solides, puis nous avons détaillé la piézoélectricité en citant les matériaux piézoélectriques qui existent. Puis nous avons étudié l'interaction élasto-optique et enfin nous avons modélisé et simulé les transformateurs piézoélectriques de type Rosen et radial par Comsol et Matlab.

## **Chapitre 2**

### *Microscopie Brillouin et application dans les capteurs*



# Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

---

## Introduction

Il est nécessaire d'étudier d'abord la diffusion Brillouin dans tout système optique car cet effet non linéaire limite fortement la puissance qui peut potentiellement être transmise dans une fibre optique, dans un capteur à SAW, ou nanocomposites irradiés.

### 2.1 Diffusion Brillouin

La diffusion de la lumière est un phénomène résultant de l'interaction des photons avec la matière. Ce processus peut être classé comme étant de la nature élastique ou non élastique en fonction du transfert d'énergie pendant l'interaction. Ce chapitre donne une vue d'ensemble de la théorie de la diffusion de la lumière en particulier la diffusion inélastique de Brillouin.

L'effet Brillouin [37-38] a été prédit par Léon Brillouin en 1914, et confirmée expérimentalement dès 1930 par Gross. Krishnan observa pour la première fois de la diffusion dans un verre de silice par une expérience que l'on peut qualifier de spectroscopie Brillouin.

Pour déterminer les vitesses acoustiques à partir du spectre Brillouin, nous devons connaître la valeur et l'angle de diffusion dans le milieu considéré. Afin de définir l'angle de diffusion dans l'échantillon, nous devons tenir compte des chemins de la lumière incidente et diffusée en dehors de l'échantillon. Il faut donc connaître précisément les caractéristiques de l'échantillon de telle sorte que nous pouvons calculer l'angle de diffusion interne en appliquant la loi de Snell-Descartes. En fixant le trajet de la lumière extérieure et en connaissant l'indice de réfraction du milieu, nous pouvons déterminer la valeur du vecteur d'onde de la fluctuation de diffusion à partir de la mesure de sa fréquence et la vitesse de phase. La figure 2.2. montre un diagramme du spectre issu de la diffusion de la lumière par divers mécanismes. La diffusion de Rayleigh est le processus dominant élastique due à l'interaction de la lumière instantanée avec les fluctuations de densité non-propagés du milieu. La diffusion Brillouin et la diffusion Raman sont les deux processus de diffusion inélastique résultant du transfert d'énergie lors de l'interaction entre des photons incidents et les phonons acoustiques et optiques, respectivement.

Donc la diffusion Brillouin est causée par l'interaction de la lumière avec des ondes acoustiques (phonons acoustiques) qui se propagent dans le matériau. Elle entraîne un décalage fréquentiel (Effet Doppler) du spectre rétrodiffusé selon deux composantes Stokes et anti-stokes [39]

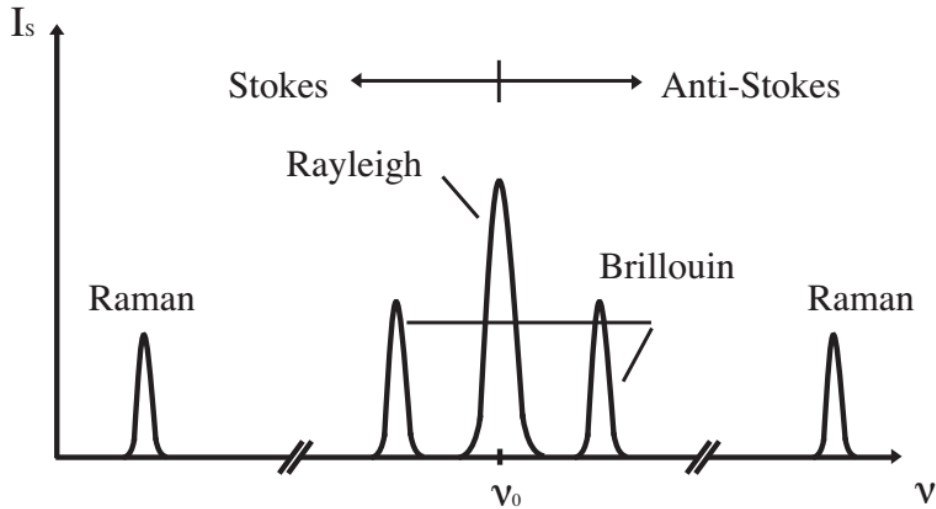


Figure 2.1. Spectre typique de la lumière diffusée

- Lorsqu'il y'a absorption des phonons, les photons diffusée peuvent gagner de l'énergie, dans ce cas, on l'appelle composante anti- Stokes. Cette composante est caractérisée par une diffusion à la fréquence  $\omega_{AS}$  et par l'équation des vecteurs d'ondes comme suit :

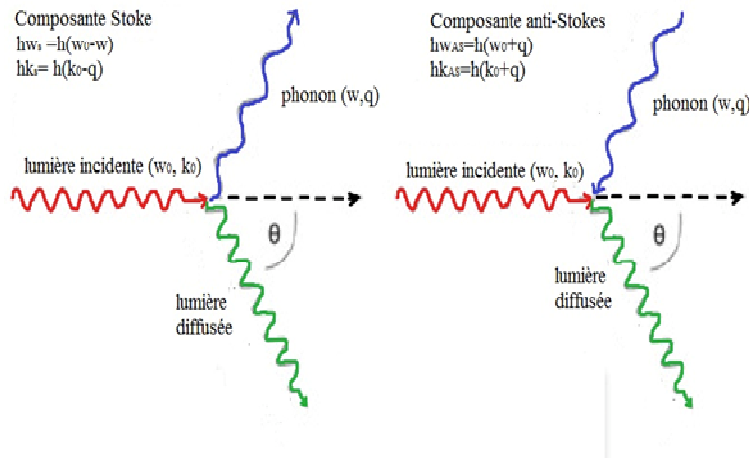
$$\omega_{AS} = \omega_0 + \omega \dots\dots\dots (1)$$

$$\vec{k}_{AS} = \vec{k}_0 + \vec{q} \dots\dots\dots(2)$$

- Lorsque il ya génération de phonons, i.e. les photons de la lumière diffusée ont perdu de l'énergie par rapport aux photons incidents, la composante du spectre qui est associée à cette interaction est nommée Stokes décrite par les deux équations suivantes (3) et (4) :

$$\omega_S = \omega_0 - \omega \dots\dots\dots (3)$$

$$\vec{k}_S = \vec{k}_0 - \vec{q} \dots\dots\dots(4)$$



**Figure 2.2. : Schéma de principe de la géométrie de la diffusion Brillouin**

Les fréquences de la lumière incidente et diffusée sont à peu près égales ( $k_s = k_i$ ) et basant sur la géométrie de diffusion (l'angle normale entre l'onde incidente et l'onde diffusée) que la composante de la transformée de Fourier de la fluctuation, participe à la diffusion. Son nombre d'onde est :

$$q = 2k_i \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \dots \dots \dots (6)$$

La fréquence Brillouin est définie par la relation suivante :

$$\nu_B = \frac{2nV}{\lambda} \sin \frac{\theta}{2} \dots \dots \dots (7)$$

Avec  $n$  : Indice de réfraction

$V$  : Vitesse des ondes acoustiques

$\lambda$ : Longueur d'onde de la lumière incidente

La fréquence de décalage Brillouin, qui dépend linéairement de la température  $\Delta T$  et de la déformation  $\epsilon$  dans le matériau, est donnée par :

$$\Delta \nu_B = C_T \Delta T + C_\epsilon \epsilon \dots \dots \dots (8)$$

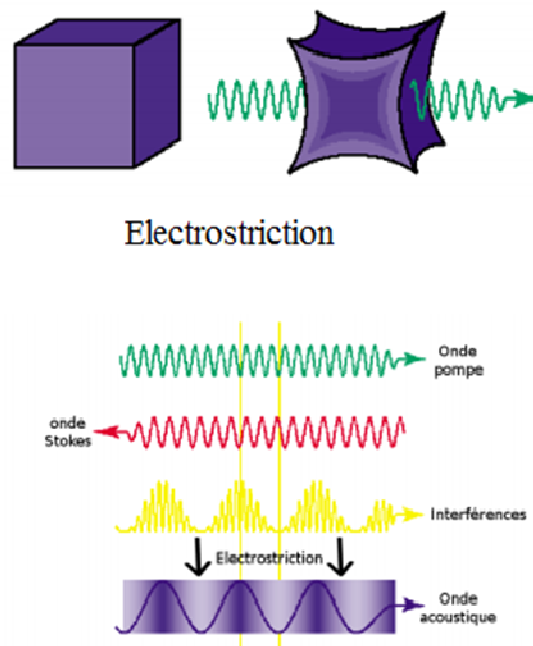
### 2.2 Diffusion de lumière spontanée et stimulée

#### 2.2.1 Diffusion spontanée:

La diffusion inélastique est un processus non linéaire qui peut se produire dans deux régimes différents en fonction de l'intensité de la lumière incidente. Pour une faible densité de photons, la diffusion est connue comme spontanée. Dans ce cas, la lumière diffusée est proportionnelle à l'intensité incidente, et le processus peut être décrit par une approche mécanique quantique.

#### 2.4.2 Diffusion Stimulée

Lorsque deux ondes optiques coexistent dans le matériau, elles introduisent par électrostriction une onde acoustique. Lorsque ces deux ondes sont simultanément présentes dans le matériau, elles forment un battement d'intensité électromagnétique lorsque celle-ci est égale à la fréquence Brillouin.

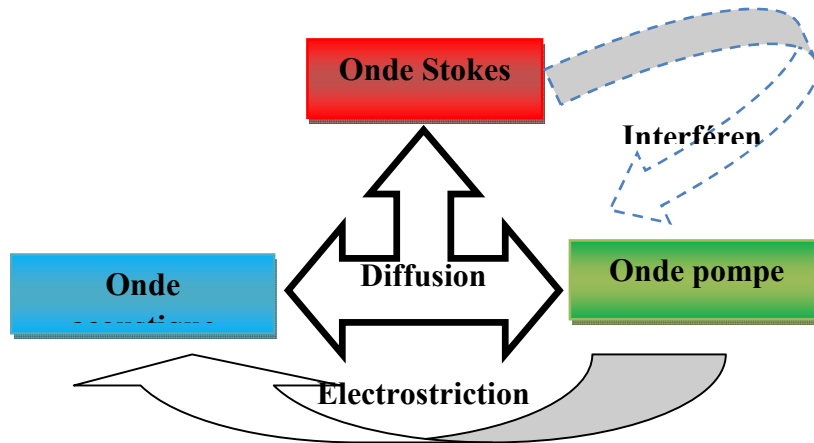


**Figure 2.3. Emission d'un phonon à partir de deux photons par Electrostriction**

Il existe dans le matériau un phénomène appelé électrostriction qui consiste en la déformation du matériau au passage d'une onde électromagnétique. Elles forment un battement d'intensités électromagnétiques. L'enveloppe de ces interférences vibre à la fréquence  $\nu_B$  et se propage à la vitesse  $v_A$  dans le sens de l'onde pompe. Par électrostriction, une nouvelle onde acoustique est créée, elle est donc en mesure de se coupler à l'onde pompe, pour former une

## Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

nouvelle onde Stokes et ainsi de suite. Ce processus peut être résumé schématiquement dans la figure suivante :



**Figure 2.4. Schéma explicatif du processus de génération de la diffusion Brillouin Stimulée**

La diffusion Brillouin stimulée a été largement étudiée dans les fibres optiques, ce qui peut conduire à des effets inadéquats tels que la distorsion de l'amplitude et une diminution du rapport signal / bruit. Ces effets secondaires représentent toujours l'une des principales limitations de la communication par fibre optique.

### 2.3 Microscopie Brillouin

La microscopie Brillouin est une technique qui nous permet de déterminer la fréquence des ondes acoustiques dans tous les matériaux. De par sa haute sensibilité, elle permet même la détection des phonons excités thermiquement [40]. De point de vue de la physique ondulatoire, la diffusion Brillouin est une interaction entre une onde électromagnétique et les ondes acoustiques (diffusion photon-phonon dans le formalisme de la mécanique quantique). Les mouvements thermiques des atomes dans un matériau (solide, liquide...) créent des variations de densité en déplacement qui diffusent la lumière incidente. Par conséquent cette diffusion est inélastique (Effet Doppler) ce qui signifie que l'énergie cinétique de la lumière incidente n'est pas conservée. Des mesures de diffusion Brillouin sont effectuées avec différents montages expérimentaux et utilisent différentes géométries de diffusion [41-44]. Cependant, les caractéristiques de base des expériences sont similaires.

## Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

Dans les paragraphes suivants, nous allons introduire les concepts de base des expériences de diffusion de Brillouin [45].

### 2.3.1. Dispositif expérimental de base

Le concept de base d'une expérience de diffusion de Brillouin est illustré sur la figure 2.5. La lumière monochromatique est focalisée par une lentille  $L_1$  sur l'échantillon, définissant ainsi un volume de dispersion  $V$  et un vecteur d'onde externe incidente  $k_i^*$ . La lumière diffusée dans une direction sélectionnée est recueillie par la lentille  $L_2$  qui définit le vecteur d'onde externe diffusée  $k_s^*$ , parallèle à la direction d'observation, l'angle de diffusion externe,  $\theta$  (ces quantités sont, en général, différentes de  $k_i$ ,  $k_s$  et  $\theta$  dans la diffusion du matériau), et un angle solide  $\delta\Omega$  autour de la direction d'observation ; la lumière collimatée de  $L_2$  [46].

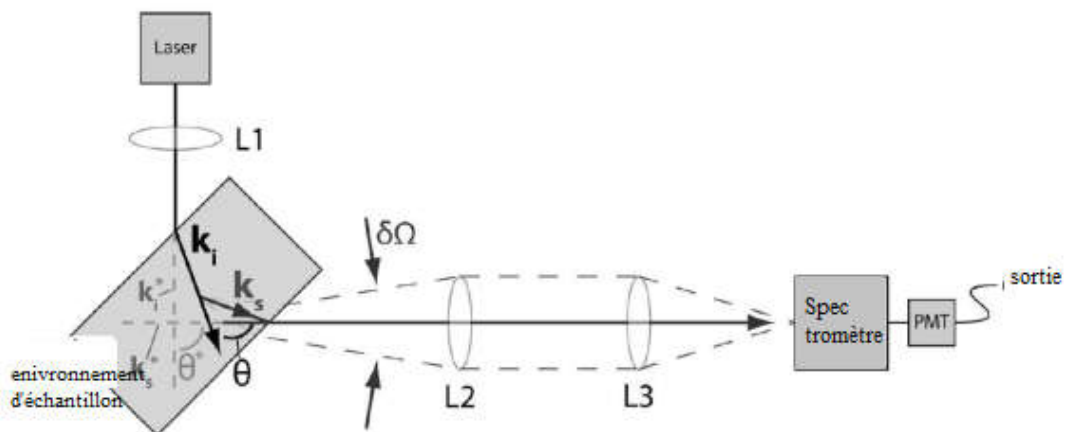


Figure 2.5. Schéma d'une expérience de diffusion de Brillouin.

Avec  $L$  : lentille ;

$\delta\Omega$  : angle solide autour de la direction d'observation déterminée par l'ouverture numérique de la lentille convergente ;

$k_i$  : vecteur d'onde incidente dans l'échantillon;

$k_s$ : vecteur d'onde dispersées dans l'échantillon ;

$\theta$  : angle de diffusion intérieur de l'échantillon ;

$k_i^*$  : vecteur d'onde incident en dehors de l'environnement de l'échantillon ;

## Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

---

$k_s^*$  : vecteur d'onde diffusée en dehors de l'environnement de l'échantillon ;

$\theta^*$  : angle de diffusion externe (déterminée par les directions de vecteurs d'ondes incidents et diffusées en dehors de l'environnement de l'échantillon) .

### 2.3.1.1 Source de lumière

La source lumineuse pour les expériences de diffusion Brillouin doit être strictement monochromatique (par exemple, monomode longitudinal, au moyen d'un étalon dans le résonateur laser) pour éviter les ambiguïtés dans le spectre qui les pourraient rendre impossible pour attribuer les pics observés. Les lasers à semi-conducteurs ou à gaz sont les deux utilisés couramment dans les conceptions de systèmes de la diffusion Brillouin actuelle. En raison de la dépendance de l'intensité de la lumière diffusée  $\lambda^{-4}$ , les lasers verts et bleus sont les plus couramment adoptés. Cependant, les systèmes conçus pour les semi-conducteurs opaques utilisent les sources lasers proche de l'infrarouge [46]. La puissance du rayonnement de la source dépasse rarement 100 mW sauf pour les expériences réalisées sur des échantillons dans des conditions extrêmes.

### 2.3.1.2 Géométrie de diffusion

Afin de déterminer les vitesses acoustiques du spectre Brillouin, nous devons connaître la valeur du vecteur d'onde de la diffusion et l'angle de diffusion dans le milieu. Afin de définir l'angle de diffusion au sein de l'échantillon, il faut tenir compte pour les chemins de la lumière incidente et diffusée en dehors de l'échantillon, et nous devons savoir avec précision les caractéristiques de l'échantillon telle que nous pouvons calculer l'angle de diffusion interne en appliquant la loi de Snell. En contraignant le chemin de la lumière externe et en connaissant l'indice de réfraction du milieu, nous pouvons déterminer la valeur du vecteur d'ondes de la fluctuation de diffusion, à partir de la mesure de sa fréquence, et déterminer également sa vitesse de phase.

La géométrie de la trajectoire de la lumière en dehors de l'échantillon peut être facilement ajustée à plus que  $10^{-2}$  degrés. Des niveaux de précision similaires peuvent être obtenus par un usinage et un polissage précis de la surface externe de l'échantillon (ou assemblage d'échantillons). La précision finale à laquelle la géométrie de diffusion interne peut être contrainte est limitée par l'incertitude dans l'indice de réfraction de l'échantillon. Cela devient le facteur limitant, en particulier dans les expériences à haute pression, où l'indice de réfraction des fenêtres diamantées fortement soulignées et celui de l'échantillon sous pression sont peu connus.

Différentes géométries de diffusion sont utilisées pour simplifier la détermination de l'angle de diffusion intérieure (figure 2.6.). Parmi les géométries les plus couramment utilisées, la géométrie normale dite 90N dans laquelle l'onde incidente et l'onde diffusée sont orientées perpendiculairement. Dans cette géométrie, l'effet de réfraction au niveau de la surface des échantillons est éliminé par la symétrie et le vecteur d'onde de la vibration de diffusion est à  $45^\circ$  de deux vecteurs d'ondes incidente et diffusée (figure 2.6.a).

## Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

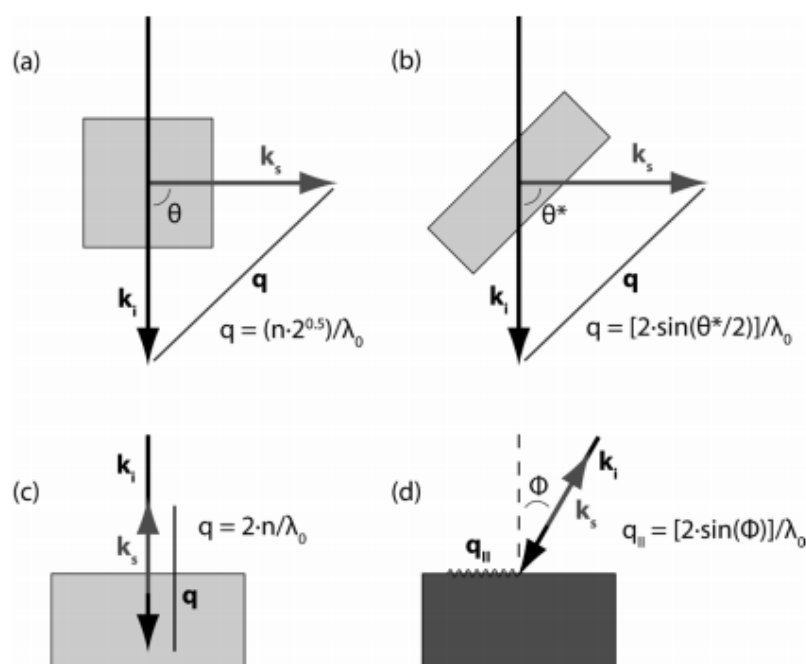
L'amplitude du vecteur d'onde de diffusion est :  $q = n(2)^{1/2}/\lambda_0$

où  $n$  est l'indice de réfraction et  $\lambda_0$  est la longueur d'onde de la lumière incidente dans le vide.

La géométrie de diffusion la plus utile pour les applications haute pression est la géométrie de la figure 2.6.b. Dans ce cas, les interfaces d'échantillons incidents et diffusés sont parallèles l'une à l'autre et perpendiculaires à la bissectrice de l'angle de diffusion externe fixé par l'agencement de focalisation et de collecte optique. Cette géométrie ne nécessite pas la connaissance de l'indice de réfraction de l'échantillon et permet de déterminer l'orientation du vecteur d'onde de diffusion si seulement un axe propre de l'échantillon est connu. Le vecteur d'onde de diffusion est :  $q = 2 \sin\left(\frac{\theta^*}{2}\right)/\lambda_0$ , où  $\theta^*$  est l'angle de diffusion externe tel que défini par les axes des lentilles de focalisation et de collecte.

Deux exemples supplémentaires de géométries de diffusion sont présentés à la figure 2.6 [47].

La géométrie  $180^\circ$  (rétrodiffusion) (figure 2.6.c) donne seulement des informations sur le mode quasi-longitudinale (Dans cette géométrie, le couplage élasto-optique avec les modes de cisaillement disparaît). Le vecteur d'onde de diffusion est  $q = 2 \cdot n/\lambda_0$



**Figure 2.6. Schéma des différentes géométries de diffusion utilisées dans la spectroscopie Brillouin.**



## Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

---

(a) la géométrie normale 90 °; (b) la géométrie symétrique) ; (c) la géométrie de rétrodiffusion 180 ° ; (d) la géométrie de rétrodiffusion inclinée pour des mesures de diffusion de Brillouin de surface.

La rétrodiffusion de géométrie inclinée (figure 2.6.d) est utilisée pour mesurer la diffusion Brillouin de surface de matériaux opaques. Dans ce cas, l'amplitude du vecteur d'onde de dispersion (de la vibration de la surface) est :  $q_{\parallel} = [2 \cdot \sin(\Phi)]/\lambda_0$

, où  $\Phi$  est l'angle entre le vecteur d'onde incident (et diffusé) et le surface normale.

Pour une longueur d'onde typique du laser sous vide, la longueur d'onde du phonon est  $\Lambda = 2\pi/q$  ; égale à quelques centaines de nanomètres et elle est donc du même ordre de grandeur que la longueur d'onde du laser. Ainsi, la diffusion élastique optique Rayleigh dans un échantillon hétérogène est dans la plupart des cas accompagnée de diffusion acoustique Rayleigh. Pour une atténuation hypersonique suffisamment petite, la vitesse de phase des modes acoustiques quasi longitudinale ( $q_L$ ) et quasi transversale ( $q_T$ ) dépend de la longueur d'onde des phonons  $\Lambda$  et de la fréquence  $f$  selon

$$v_{qL,qT} = \frac{\Omega_{qL,qT}}{q} = f_{qL,qT} \Lambda \dots\dots\dots (9)$$

En utilisant l'équation  $q = \frac{4\pi n \cdot \sin(\frac{\theta_i}{2})}{\lambda_0}$  dans l'équation (9), nous obtenons :

$$v_{qL,qT} = \frac{f_{qL,qT} \cdot \lambda_0}{2n \sin(\frac{\theta_i}{2})} \dots\dots\dots (10)$$

Lorsque nous connaissons la densité volumique de l'échantillon  $\rho$ , nous pouvons calculer le module élastique  $c$

$$c_{qL,qT} = \rho v_{qL,qT}^2 \dots\dots\dots (11)$$

Nous allons exprimer les valeurs de la longueur d'onde des phonons  $\Lambda$ , de la vitesse acoustique  $v_{qL,qT}$  pour différentes géométries de la diffusion pour les échantillons optiquement isotropes dans un tableau suivant (Tab 2.1)

## Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

**Tab 2.1 : expression des valeurs de  $\Lambda$  et  $v_{qL,qT}$**

La géométrie de diffusion utilisée	La longueur des phonons $\Lambda$	La vitesse acoustique $v$
90N	$\frac{\lambda_0}{\sqrt{2n}}$	$\frac{f_{qL,qT}^{90N} \lambda_0}{\sqrt{2n}}$
Backscattering	$\frac{\lambda_0}{2n}$	$\frac{f_{qL,qT}^{180} \lambda_0}{2n}$
$\theta A$	$\frac{\lambda_0}{2 \sin(\frac{\theta}{2})}$	$\frac{f_{qL,qT}^{\theta A} \lambda_0}{2 \sin(\frac{\theta}{2})}$
90A	$\frac{\lambda_0}{\sqrt{2}}$	$\frac{f_{qL,qT}^{90A} \lambda_0}{\sqrt{2}}$

### 2.3.2. Le spectromètre

En raison des décalages de fréquence très faibles des phonons acoustiques thermiques mesurés dans la diffusion Brillouin, les interféromètres Fabry-Pérot sont utilisés pour séparer les composantes spectrales de la lumière au lieu de d'un réseau de diffraction comme dans le cas des monochromateurs classiques utilisés par exemple pour la diffusion Raman. Les raies spectrales de Brillouin sont extrêmement proches de la fréquence de la source décalée (le décalage de fréquence  $\Delta\omega$  mesurée est généralement limitée à la gamme  $10^{-2} < \Delta\omega < 10 \text{ cm}^{-1}$ ) et la résolution spectrale requise pour de telles mesures est de l'ordre de  $10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ . Les spectromètres à réseaux de diffraction sont rarement capables d'atteindre des régions de fréquence près de  $10^2 \text{ cm}^{-1}$  à la fréquence de la source et de leur résolution est de l'ordre de  $10^{-1} \text{ cm}^{-1}$ .

Un interféromètre de Fabry- Pérot constitué de deux miroirs à faces parallèles séparées par une distance L. Un faisceau incident est soumis à de multiples réflexions à la surface des miroirs opposés. La lumière de longueur d'onde  $\lambda$  est transmise si elle satisfait la condition d'interférences:  $m\lambda = 2nL \cos \alpha$

Où m est un nombre entier, n est l'indice de réfraction du milieu entre les deux miroirs de l'interféromètre, L est l'espacement des miroirs et  $\alpha$  est l'angle d'incidence, le domaine spectral libre  $\Delta k$  de l'interféromètre est défini comme étant l'intervalle de fréquence correspondant à la différence entre deux longueurs d'onde qui sont simultanément transmis par les ordres d'interférence adjacentes :  $\Delta k = \frac{1}{\Delta\lambda} = \frac{1}{2nL}$  pour  $\lambda \ll L$

La fonction instrumentale d'un seul interféromètre de Fabry- Perot est déterminée par la convolution de trois facteurs qui dépendent de :

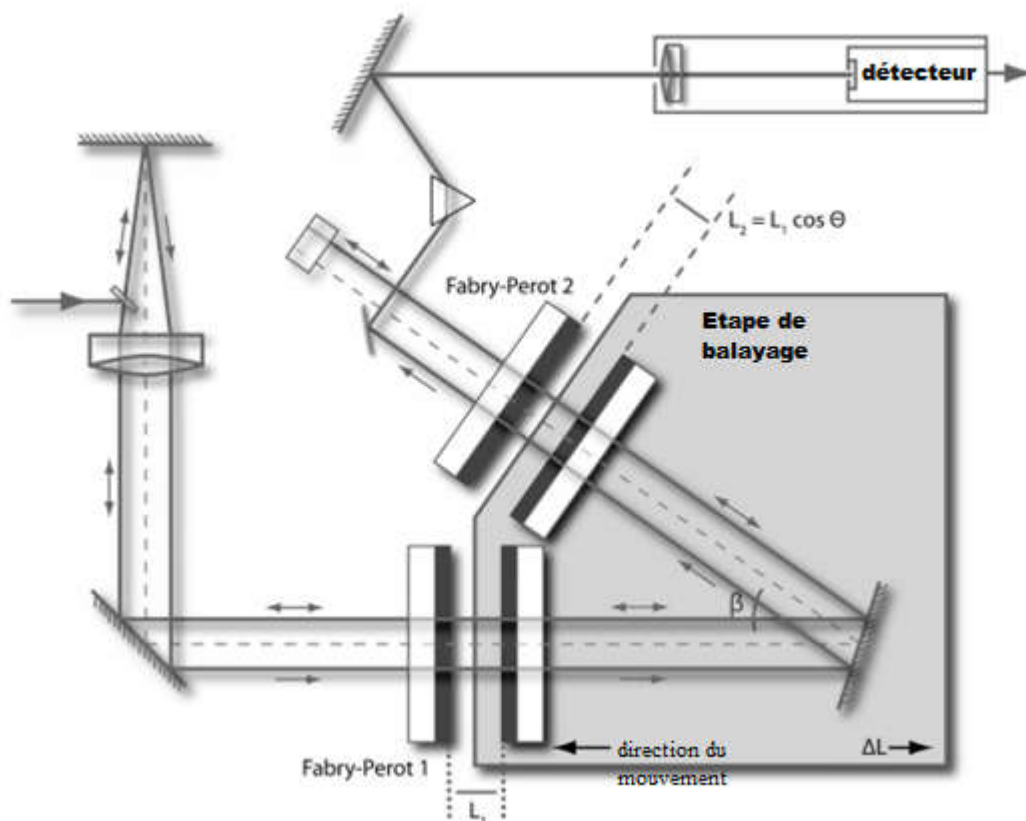
## Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

- (a) la réflectivité non - parfaite des miroirs,
- (b) leur parallélisme non - parfaite (et les imperfections de surface),
- (c) la gamme finie d'angles incidents sur le Fabry- Perot (qui provoque une largeur de bande de longueur d'onde finie transmise).

Dans l'expérience de diffusion de Brillouin standard, l'interféromètre de Fabry-Pérot est utilisé comme un filtre passe -bande variable par balayage de la plage spectrale libre sélectionnée. Ceci peut être effectué par l'une des deux méthodes principales:

- (a) en faisant varier l'indice de réfraction,  $n$ , du milieu entre les miroirs, ou
- (b) la séparation par balayage à miroir.

Les spectromètres pour diffusion de Brillouin, sont basés sur des systèmes qui entraînent le mouvement du miroir par des transducteurs piézoélectriques et d'atteindre des vitesses de balayage rapides et linéaires.



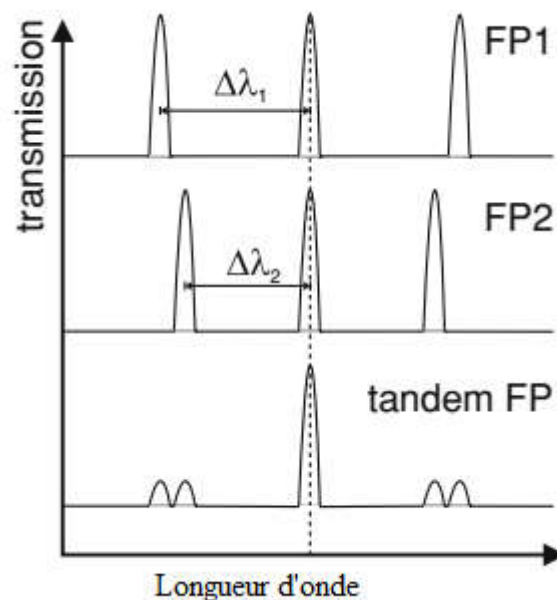
**Figure 2.7. Interféromètre Fabry - Perot Multi Passe dans le "tandem" mise en œuvre par Sandercock (1980)**

## Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

Alternativement, la gamme spectrale libre globale peut être étendue en combinant (en série) des interféromètres avec différents espacements de miroirs  $L_i$  (où l'indice  $i$  se réfère à l' $i$ ème interféromètre en série). Dans le cas d'un "tandem" conception et angle d'incidence  $\alpha=0$ , le premier interféromètre transmet des longueurs d'onde qui satisfont  $\lambda_1 = 2nL_1/m_1$ , le second interféromètre transmet des longueurs d'onde qui satisfont  $\lambda_2 = 2nL_2/m_2$ . Le système tandem transmettra uniquement lorsque les conditions sont simultanément satisfaites ( $\lambda_1 = \lambda_2$ ). Cette condition augmente efficacement la plage spectrale libre d'un facteur de quelques dizaines (figure 2.8.). Pour utiliser efficacement ces combinaisons d'interféromètres, leur balayage doit être synchronisé avec précision de telle sorte que les incréments des distances de miroirs pour le premier et deuxième interféromètre,  $\delta L_1$  et  $\delta L_2$ , satisfont la condition:

$$\frac{\delta L_1}{\delta L_2} = \frac{L_1}{L_2}$$

Atteindre à la fois la synchronisation et de l'accroissement constant des distances des miroirs est techniquement difficile quand les interféromètres sont étudiés séparément [48], une conception ingénieuse d'un interféromètre de plusieurs passe- tandem a été développé par Sandercock. Dans ce système, deux interféromètres Fabry –Pérot sont scannés en utilisant une seule étape actionnée par un transducteur piézo-électrique très linéaire. L'axe du deuxième interféromètre est orienté selon un angle  $\beta$  par rapport à la première. Un miroir fixe numérisé avec les deux interféromètres réfléchit la lumière transmise par le premier interféromètre pour le second. La distance du miroir du deuxième interféromètre est  $L_1=L_2\cos\beta$ .



**Figure 2.8.** Spectre de transmission (comme une fonction de la fréquence) des deux interféromètres et la transmission totale du système tandem de Fabry- Perot.

## Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

L'utilisation d'un deuxième interféromètre de Fabry- Perot en série avec le premier mais avec une distance de décalage miroir, il supprime le signal du premier interféromètre à n'importe quelle position lorsque la condition  $\frac{L_1}{L_2} = \frac{m_1}{m_2}$  n'est pas satisfaite.

### 2.3.2 Détecteurs

La sélection du détecteur pour un spectromètre de diffusion de Brillouin représente un compromis entre la haute efficacité dans la gamme de longueur d'onde étudiée et le bon rapport signal-bruit. Les composantes essentielles d'une installation pour la diffusion Brillouin à haute pression dans sont esquissées dans la figure 2.9. Cette configuration expérimentale permet de déterminer les vitesses acoustiques avec une précision d'environ 0,5 % et une précision supérieure à 1 % (mesuré sur des matériaux standards). La meilleure incertitude réalisable sur le monocristal récupéré des constantes élastiques est meilleure que 1% [47].

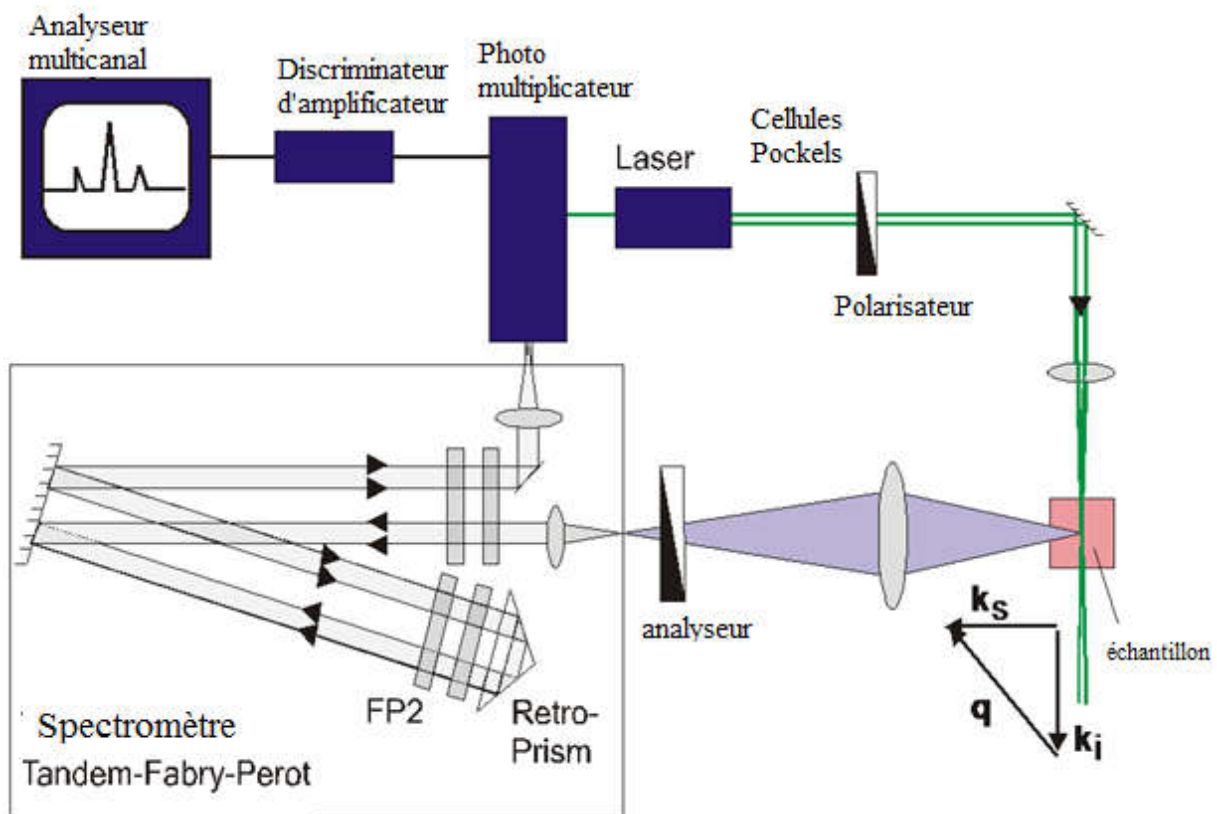


Figure 2.9. Schéma de la configuration de la diffusion Brillouin

### 2.4. Applications des capteurs à fibres optiques

#### 2.4.1 Capteurs à fibres optiques

Le capteur à fibre optique [48-52] est un appareil de mesure dans lequel la fibre optique joue le rôle de détecteur pour la surveillance d'infrastructures et son application en environnement difficile.

La fibre optique [53] est l'un des médias les plus performants pour le transport d'information. Elle permet de ne pas être soumis aux limitations des câbles à base de paires cuivre en termes de puissance, ou d'impédance. Elle possède de plus une très grande valeur de vitesse de transmission, une faible atténuation et une bande passante très large. Une fibre optique est un guide d'ondes optiques à symétrie cylindrique permettant le confinement d'une onde électromagnétique aux fréquences optiques par réflexion totale interne [54]. Le cœur de la fibre et la gaine optique sont composés d'oxyde de Silicium ( $\text{SiO}_2$ ) mais avec des concentrations de dopants (F, B, P,...) afin d'obtenir des profils d'indices de réfraction qui permettent le guidage dans le cœur de la fibre. Le cœur et la gaine de silice sont protégés par une gaine protectrice en polymère.

Dans notre travail, les fibres optiques sont composées des germanosilicates [55], elles sont dopées de Germanium (Ge) dans le cœur.

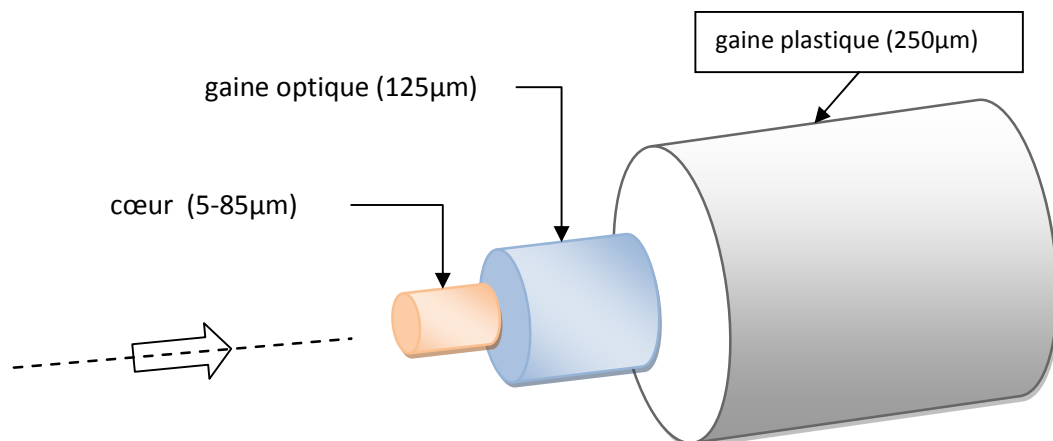


Figure 2.10. Schéma de principe d'une fibre optique

## Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

---

### a- Effets d'irradiation sur les fibres optiques :

Il existe plusieurs types d'irradiation [56] tels que rayonnements X , gamma , les protons , les neutrons ... Mais dans le dépôt de déchets nucléaires qui est un des environnements difficiles en raison de la présence de rayonnements gamma. Ce dernier est connu pour dégrader les propriétés optiques des fibres à travers trois phénomènes différents :

#### 1- Atténuation induite par irradiation (Radiation induced attenuation RIA) :

Cet effet du rayonnement [57] se traduit par une augmentation des pertes optiques linéiques par une augmentation de l'absorption due aux défauts induits par irradiation. Cette augmentation va diminuer l'efficacité de la transmission de la fibre et donc du capteur qui utilise la fibre comme élément sensible.

#### 2- Emission induite par irradiation (Radiation induced emission RIE) :

Après l'interaction du rayonnement avec les matériaux comme les verres, on observe une émission de la lumière. Cet effet est connu sous le nom «luminescence». Avec un rayonnement énergétique élevé, la partie principale de la lumière de luminescence est la lumière Cerenkov.

Les fibres optiques transmettent la fraction de la lumière qui est émise dans la direction de l'axe des fibres, dans un angle donné par leur ouverture numérique. Ce type de rayonnement (RIA) diminue le rapport entre le signal et le bruit.

#### 3- Compaction (Refractive index RI) :

Ce phénomène [58] se manifeste par une variation de l'indice de réfraction, il apparaît en particulier pour les hautes doses. Il peut notamment provenir de changements de densité ou de l'atténuation qui impliquent des modifications de l'indice de réfraction que l'on peut relier respectivement aux formules de Lorentz-Lorenz et Kramers-Kronig. Dans la théorie, l'effet de densité est également inclus dans cette dernière, mais dans la pratique, il est plus commode de séparer la contribution des centres colorés, responsables de l'atténuation induite par irradiation. Le compactage conduit à des modifications de densités du verre, et dépend du type de silice (cristalline ou amorphe) concerné.

Parmi ces différents phénomènes, la RIA est la plus utilisée dans les fibres optiques qui n'ont pas la même sensibilité face à un environnement donné. Plus particulièrement, les niveaux et les cinétiques de la RIA dépendent fortement de la composition de la matrice vitreuse constituant la fibre et des éléments incorporés dans le cœur ou la gaine optique.

## Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

---

### 2.5.2 Partie expérimentale

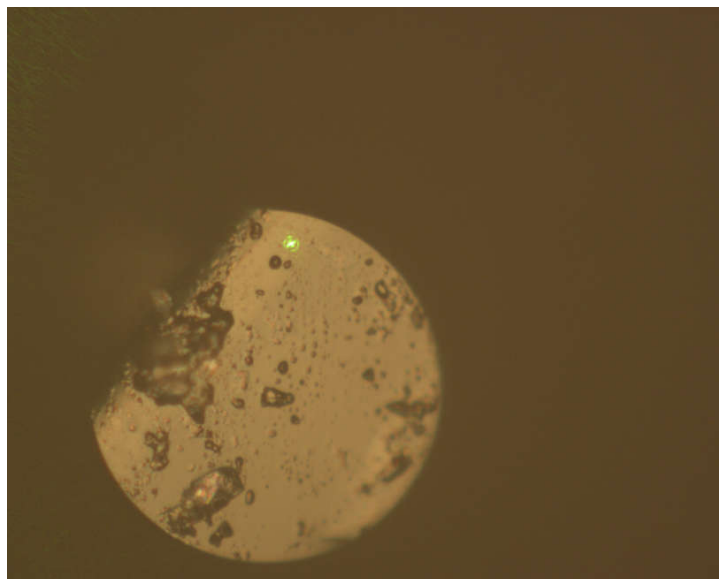
#### a- Echantillons préparés

Dans cette étude, nous avons utilisé quatre types de fibres optiques. Ces dernières sont des fibres Germanosilicates qui sont des fibres passives standard pour la transmission du signal. Il est connu que le dopage du Germanium augmente l'indice de réfraction de la silice, donc il est utilisé pour réaliser le cœur des fibres [59].

Les fibres germanosilicates fabriquées par iXFiber sont fournies par le laboratoire Hubert Curien de Saint Etienne. Nous avons étudié une fibre optique dopée après irradiation par différentes doses d'irradiation qui vont de 3 et 10MGy. Ces fibres multimodes sont nommées IXFiber GeD3. Nous avons une 4<sup>ème</sup> fibre avec la même concentration d'irradiation 10MGy dont la série est IXFiber GeD1.

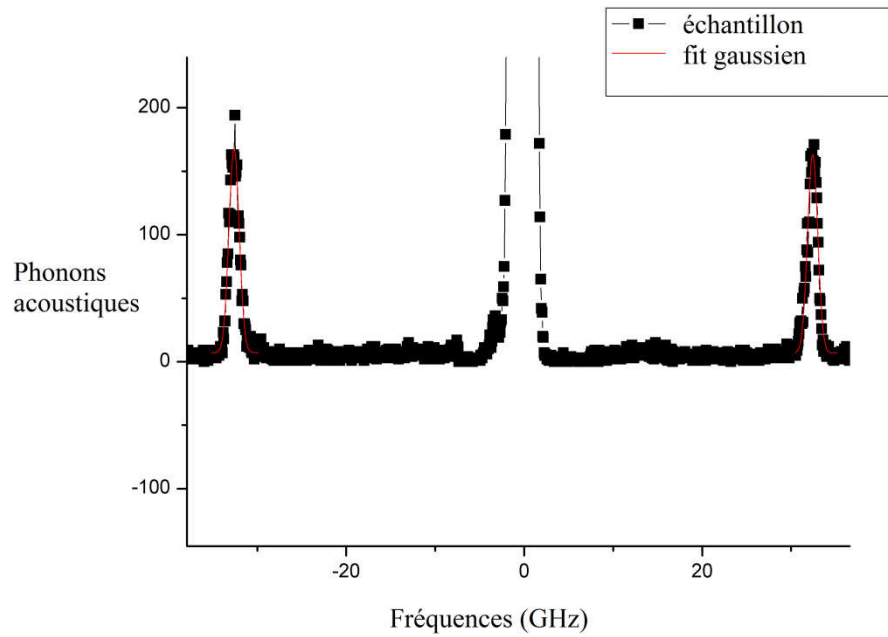
#### b- Résultats et Discussions :

Pour déterminer les fréquences des ondes acoustiques des modes longitudinaux des fibres optiques, nous les avons mesurées avec la microscopie Brillouin. Premièrement, nous avons placé ces fibres sur le microscope dont l'objectif est  $\times 50$ . Après le réglage du tandem Fabry Péroth avec une distance du miroir de 3 mm et quelques minutes (entre 5min et 10min) de scan, nous avons obtenu des courbes de l'acquisition de chaque point (20 points au total) dans la fibre.

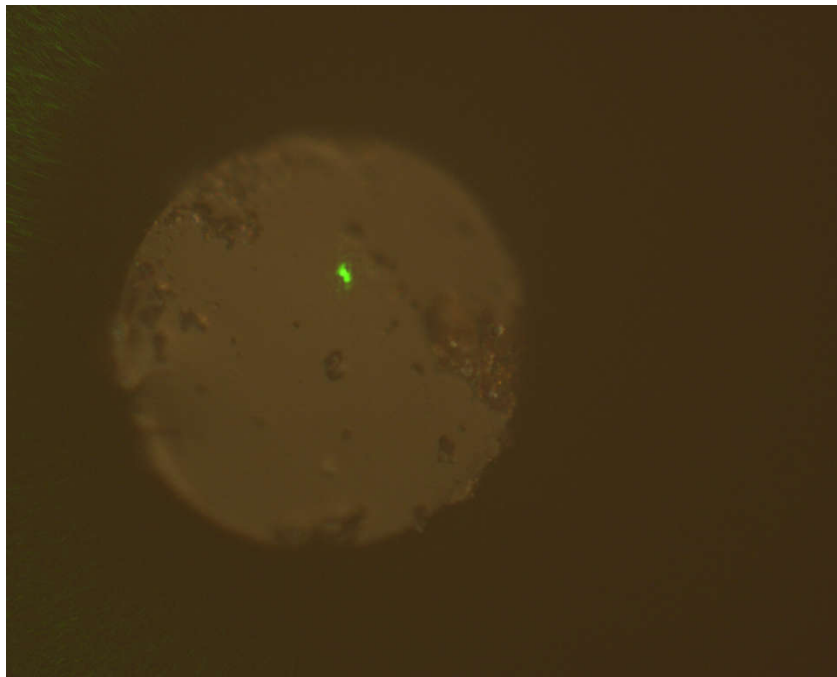


**Figure 2.11. Coupe d'une fibre optique de type 4A3 IXFiber GeD3 10MGy**



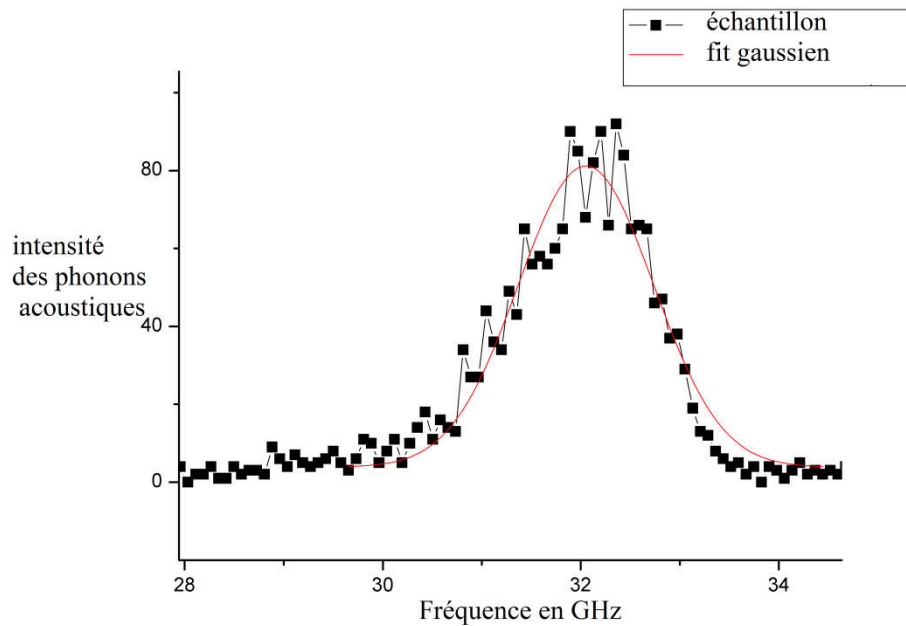


**Figure 2.12. Exemple de spectre Brillouin obtenu après quelques minutes de scan de la fibre 4A3 IXFiber GeD3 10MGY**



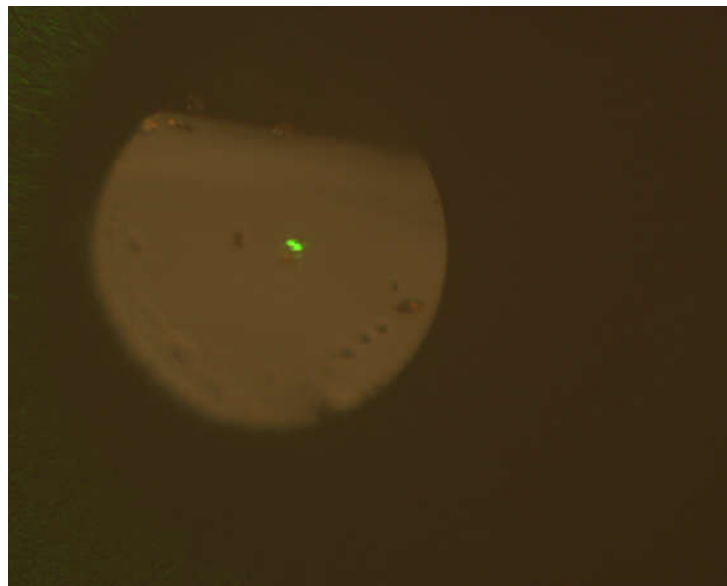
**Figure 2.13. Coupe d'une fibre optique de type 4B3 IXFiber GeD3 5.5MGy**

Après quelques minutes d'acquisition, nous avons obtenu un spectre Brillouin avec un fit gaussien qui est montré dans la figure suivante :



**Figure 2.14. Fit gaussien du scan d'une fibre optique 4B3 IXFiber GeD3 5.5MGy**

Une autre fibre a été mesurée avec les mêmes paramètres utilisés par la spectroscopie Brillouin qui est 4C3 IXFiber GeD3 avec une dose de concentration de 3MGy.



**Figure 2.15. Coupe d'une fibre 4C3 IXFiber GeD3 3MGy avec une focalisation d'un laser (532nm)**

La dernière fibre a été utilisée pour mesurer les fréquences longitudinales des phonons acoustiques. C'est une 4A1 IXFiber GeD1 avec une dose de 10MGy.

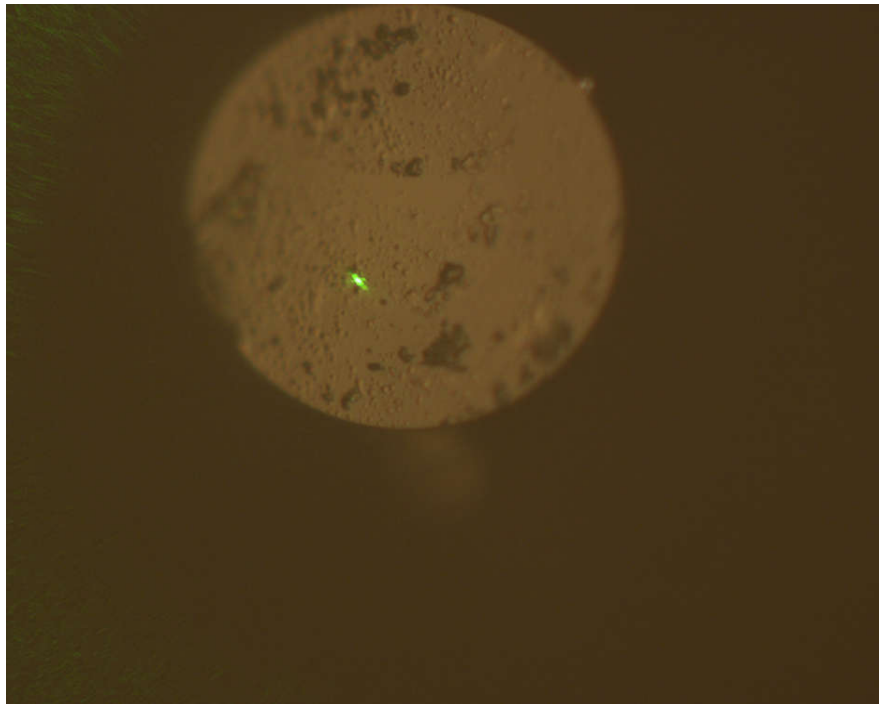


Figure 2.16. Coupe d'une fibre 4A1 IXFiber GeD1 10MGy

Après l'étape de la validation du modèle dans les quatre fibres standard, nous avons effectué les mesures sur ces fibres au cœur dopé au Germanium et à la gaine purement en silice.

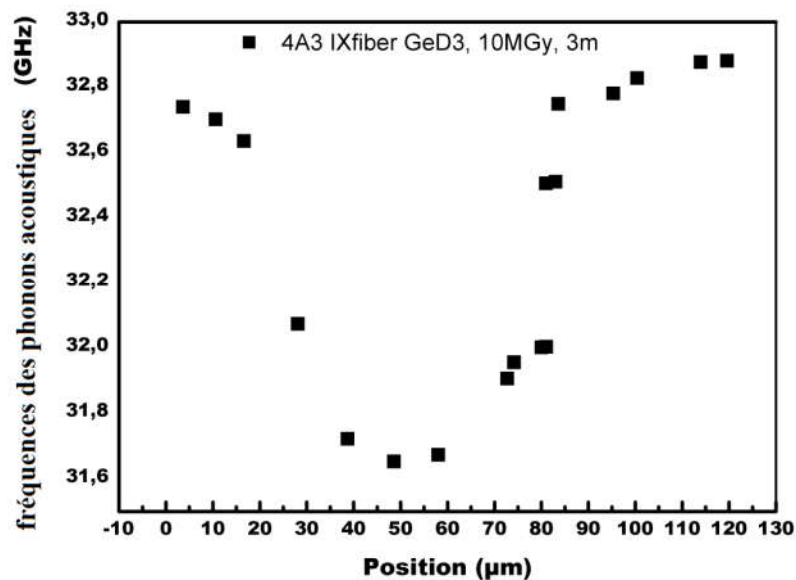


Figure 2.17. Variation des fréquences (mesurées par spectroscopie Brillouin) de l'onde acoustique longitudinale en fonction de la position sur le diamètre de la fibre optique 4A3 IXfiber GeD3, 10MGy

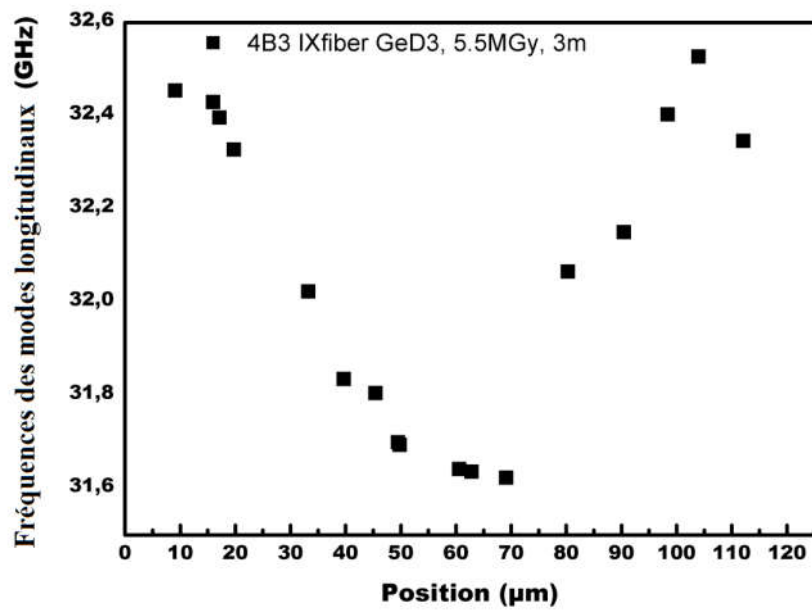
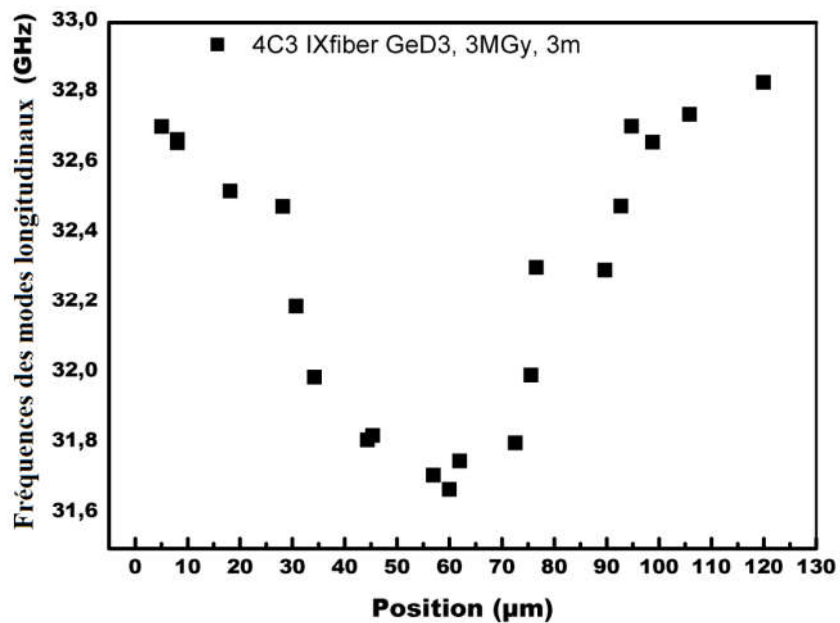
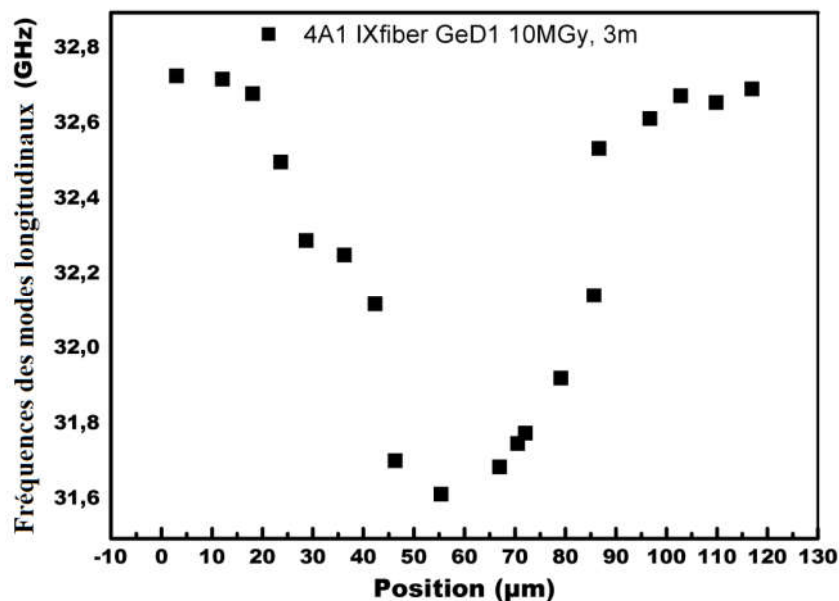


Figure 2.18. Variation des fréquences (mesurées par spectroscopie Brillouin) de l'onde acoustique longitudinale en fonction de la position sur le diamètre de la fibre optique 4B3 IXfiber GeD3, 5.5 MGy



**Figure 2.19. Variation des fréquences (mesurées par spectroscopie Brillouin) de l'onde acoustique longitudinale en fonction de la position sur le diamètre de la fibre optique 4C3 IXfiber GeD3, 3 MGy**



**Figure 2.20. Variation des fréquences (mesurées par spectroscopie Brillouin) de l'onde acoustique longitudinale en fonction de la position sur le diamètre de la fibre optique 4A3 IXfiber GeD1, 10 MGy**

Les figures 2.17, 2.18., 2.19. et 2.20. présentent pour différentes fibres dopées Germanium, des fréquences calculées de modes longitudinaux en fonction du diamètre des fibres optiques.

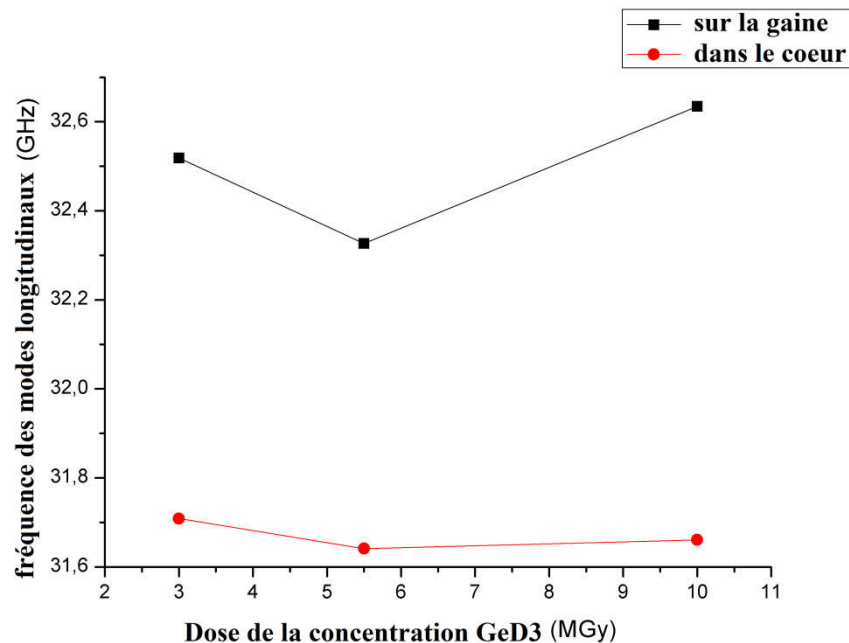
Nous constatons d'après les résultats que les fréquences des modes longitudinaux augmentent du cœur (intérieur de la fibre) vers la gaine optique (extérieur de la fibre).

Nous avons pu montrer que le profil des fréquences des modes longitudinaux suit parfaitement le profil de concentration en Ge pour les fibres quelle que soit la dose d'irradiations appliquée aux fibres. Les fréquences varient d'environ 1Ghz entre le cœur et la gaine des fibres. Ces fréquences, comme l'indique l'équation (1), sont en fonction de la vitesse de propagation acoustique et de l'indice de réfraction de la zone sondée avec le laser.

Si nous voulons mesurer un effet de la dose d'irradiation il faut donc comparer les fréquences sur des zones identiques pour chaque fibre. Nous choisissons deux zones aux propriétés très différentes : la gaine optique et le centre du cœur de la fibre.

## Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

Nous constatons que la fréquence des phonons acoustiques des modes longitudinaux varie fortement avec la dose pour la gaine optique (0.4 GHz environ.) mais très peu (moins de 0.1GHz) en revanche dans le cœur de la fibre, voir figure 2.28.



**Figure 2.21. Variation de la fréquence des phonons acoustiques des modes longitudinaux en fonction de la dose d'irradiation (Gamma).**

L'évolution de la fréquence des modes longitudinaux (mesurée par spectroscopie Brillouin) associé à chaque pic de résonance de la fibre IXFiber GeD3, en fonction de la dose de concentration d'irradiation est présentée dans la figure suivante :

- Les fréquences Brillouin des modes longitudinaux des trois pics de résonance mesurées par spectroscopie Brillouin montrent une variation vraisemblablement non linéaire (difficile à conclure car nous n'avons que trois points pour trois doses différentes) avec la dose.
- La variation est beaucoup plus importante pour la dose de 5.5MGy quel que soit la zone sondée.

La différence intrinsèque entre la gaine et le cœur de la fibre est liée à la composition de la fibre, et notamment la concentration en Germanium, mais également à la qualité de la silice utilisée. La zone de propagation classique dans une fibre optique est le cœur de celle-ci d'où l'utilisation d'une silice de plus haute qualité que pour la gaine (composition chimique, pureté, phase...). Il est par conséquent aisé de déduire que la concentration en Germanium joue un grand rôle dans la « résistance » aux irradiations.

## Chapitre 2 Microscopie Brillouin et application dans les capteurs

---

La deuxième hypothèse que nous pouvons faire est relative aux propriétés qui sont affectées par l'irradiation. Nous savons en effet (équation (1)) que la fréquence des phonons est proportionnelle à l'indice de réfraction et à la vitesse de propagation acoustique. Or le fait que cette fréquence commence tout d'abord à diminuer en fonction de l'irradiation puisqu'elle réaugmente peut être le signe de l'influence de deux phénomènes antagonistes. Nous pourrions supposer par exemple que :

- L'indice de réfraction diminue avec l'irradiation. Ceci a déjà été observé dans d'autres matériaux notamment des nanocomposites par l'équipe 405 de l'IJL. Les propriétés optiques sont très sensibles aux irradiations, nous avons tous en tête des polymères qui changent de couleur lorsqu'ils sont soumis aux rayonnements du soleil et plus spécifiquement aux UV (création de centres colorés, augmentation de l'absorption etc...).
- La vitesse de propagation acoustique augmente avec l'irradiation ; ce qui a été observé dans de nombreux autres matériaux. Les irradiations ayant tendance à « recuire » le matériau et donc à le durcir.

Si l'on prend comme hypothèses ces deux phénomènes dont les effets sur la fréquence des modes longitudinaux sont antagonistes, alors on peut imaginer que jusqu'à la dose de 5.5 MGy c'est le premier effet qui est prépondérant et qui provoque la baisse de la fréquence puis que c'est le deuxième effet qui devient majoritaire entraînant la hausse de la fréquence jusqu'à 10 MGy. Si cette hypothèse est vérifiée (d'autres expériences complémentaires devront être effectuées sur la mesure de l'indice de réfraction par exemple ou sur les propriétés mécaniques par nano indentation par exemple) alors cela voudrait dire que le Germanium protège des effets de durcissement mais pas de ceux liés à la variation d'indice de réfraction. La présence de Germanium pourrait tout simplement aider à l'augmentation de la résistance de la silice aux irradiations en augmentant la conductivité du matériau ce qui est essentiel pour la résistance aux rayonnements Gamma.

### **Conclusion :**

Nous avons réalisé des mesures par spectroscopie Brillouin sur quatre différentes fibres optiques multi modes dopées Germanium selon leur position, sur la fréquence des ondes acoustiques des modes longitudinaux, et sur la largeur à mi hauteur. Cette observation confirme une variation des propriétés extrinsèques dans le cœur, qui sont fortement liées à la méthode de fabrication des fibres et sur la concentration des dopants

## **Chapitre 3**

### *Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés*



# Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

---

## Introduction :

Pour fabriquer le capteur et acteur piézoélectrique, le P(VDF-TrFE) est un matériau qui suscite notamment l'intérêt d'agences spatiales gouvernementales pour son aptitude à être utilisé dans les satellites ou les sondes. Ses propriétés piézoélectriques en font un candidat potentiellement intéressant comme actionneur dans l'optique adaptative (déflexion de miroir) ou comme détecteur d'impact de poussières. L'avantage en terme de poids d'un matériau à base polymère sur les matériaux céramiques classiques est indéniable.

Cependant lorsque ce matériau est soumis aux irradiations lors de ses applications spatiales (ou nucléaires), l'évolution de ses propriétés reste peu connue. Le vieillissement connu des polymères soumis aux rayonnements laisse présager qu'il sera difficile d'obtenir un matériau résistant aux irradiations.

Dans la suite de l'étude nous avons utilisé l'interaction élasto-optique de la diffusion Brillouin pour étudier les effets de l'irradiation dans ce polymère piézoélectrique, aux propriétés renforcées avec des nanoparticules. La matrice organique choisie dans ce travail est le copolymère piézoélectrique de fluorure de vinylidène et trifluoroéthylène, ou P(VDF-TrFE). Les nano-objets introduits sont des nanoparticules non-piézoélectriques d'oxyde d'aluminium ( $Al_2O_3$ ), des nanoparticules piézoélectriques d'oxyde de zinc (ZnO).

## 3.1 Copolymère P(VDF-TrFE)

Le pionier Kawai a découvert en 1969 que le polymère poly(fluorure de vinylidène) PVDF a un effet piézoélectrique très fort. Deux ans plus tard, la pyroélectricité a été découverte dans le même polymère par Bergman et Al et par Nakamura et Wada en 1971. Après, la ferroélectricité a été confirmée sans ambiguïté dans la famille des polymères PVDF. Et enfin, la science et la technologie des polymères piézoélectriques ont été dominées par des polymères de la famille du PVDF, en particulier les copolymères de fluorure de vinylidène et de trifluoroéthylène P(VDF-TrFE) [60].

Le PVDF est un polymère semi cristallin, très répandu dans le commerce pour sa résistance aux produits chimiques, sa transparence aux ultraviolets, à l'isolation de câbles électriques et comme émulsifiant pour les peintures et cela dès les années 1950. C'est seulement dans les années 70 que l'on découvre qu'une fois orienté, les chaînes de ce polymère possèdent une polarisation rémanente à l'origine du phénomène piézoélectrique.

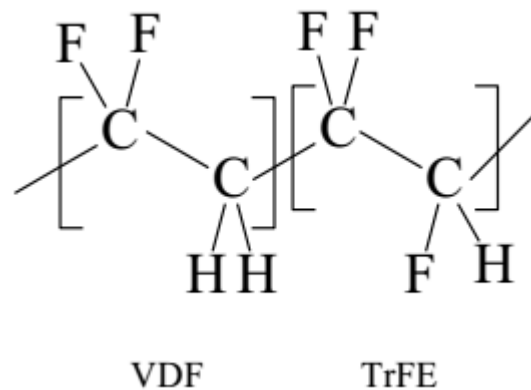
Nous découvrons ensuite que ce polymère possède de nombreuses qualités : il a des bonnes propriétés mécaniques (résistance à la traction) et chimique (résistance à la corrosion) tout en ayant de bonnes propriétés physiques. De plus, les films de PVDF sont très maniables (souplesse et légèreté). Nous pouvons constituer des films de grandes dimensions (étirement possible jusqu'à six fois la taille d'origine), de fine épaisseur, d'une faible impédance acoustique qui a la propriété d'être sensible sur une large gamme de fréquence. Les

## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

applications du PVDF sont diverses et variés, Nous les retrouvons principalement dans la fabrication de transducteurs.

Dans les années 80, le P(VDF-TrFE) fut découvert : il a les mêmes propriétés que le PVDF mais son coefficient piézoélectrique est encore plus intéressant. Ces propriétés mécaniques sont aussi meilleures. Le copolymère se compose d'un assemblage statistique du polymère de fluorure de vinylidène, PVDF, avec des motifs (-CH<sub>2</sub>-CF<sub>2</sub>-) et du polymère de trifluoroéthylène, TrFE, qui est formé de motifs (-CHF-CF<sub>2</sub>-).

La formule chimique du copolymère est présentée dans la figure 3.1.



**Figure 3.1. formule chimique du copolymère P(VDF-TrFE)**

### 3.2 Les nanoparticules :

Pour renforcer les propriétés mécaniques des films de copolymère, les nanoparticules ont été incorporées. Leur taux de charge varie de 1 à 10%, car si nous dépassons un certain pourcentage, les films deviennent très opaques. C'est pour cela nous souhaitons garder la transparence de ces matériaux. Dans notre travail, deux types de nanoparticules ont été choisies : l'Alumine (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) et l'Oxyde de Zinc ( ZnO) car elles possèdent des propriétés non piézoélectriques et piézoélectriques et ferroélectriques

#### 3.2.1 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

L'Alumine est une nanoparticule possédant les propriétés non piézoélectriques. Les nanoparticules d'alumine sont très intéressantes en raison de leur haute dureté, de leur haute résistance et de leur bonne résistance à l'usure [61].

#### 3.2.2 ZnO

L'oxyde de Zinc [62-65] présente aussi les propriétés piézoélectriques et l'optique non linéaire ONL. L'oxyde de zinc est un semi conducteur à large bande interdite directe avec de nombreuses propriétés prometteuses pour le domaine du bleu et de l'UV en optoélectronique, les dispositifs spintroniques et les applications de capteur. Le ZnO a été couramment utilisé sous sa forme polycristalline depuis plus

## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

---

de cent ans dans de nombreuses applications: les médicaments, les catalyseurs, les additifs pour lubrifiants, la pigmentation de la peinture, les transducteurs piézoélectriques et les électrodes conductrices transparentes. Depuis les années 1970, ZnO a été employé dans les dispositifs à couches minces piézoélectriques. Ses applications comprennent des résonateurs, des filtres et des capteurs à ondes acoustiques de volume (BAW), onde acoustique de surface (SAW) et des micro et nano systèmes électromécaniques (MEMS et NEMS) [66,67]. Des nanoparticules de ZnO sont également utilisées pour renforcer les propriétés optiques [68] et photocatalytiques [69] de nanocomposites à base des polymères. Le ZnO sous forme nanométrique peut être synthétisé en une variété de morphologies [70], y compris des nanofils, nanotiges, tétrapodes, nano-fleurs, nanoparticules [60,71,72].

### 3.3 Les nanocomposites

Les nanocomposites sont l'association d'un polymère et de nanoparticules. Les intérêts de ce couplage sont multiples : cela renforce en particulier les propriétés mécaniques des films minces. L'ajout de nanoparticules aux plastiques ou à la matrice polymère peut les rendre plus forts, plus légers et plus durables, il en résulte un comportement de défaillance différent selon la taille et la concentration des particules, la force de liaison interfaciale et la matrice relative. Différents matériaux à l'échelle nanométrique peuvent être utilisés dans des films minces pour les rendre anti réfléchissants, ultraviolets ou résistant aux rayons infrarouges, résistant aux rayures ou électriquement conducteurs. En tant que nanofilms, les nanocomposites sont utilisés maintenant sur des lunettes, des écrans d'ordinateur et des caméras pour protéger ou traiter les surfaces. L'effet de la taille des particules sur les propriétés mécaniques du composite est lié à la surface spécifique des particules. Une grande surface spécifique de petites particules augmente la liaison avec la matrice et améliore l'effet de renforcement.

### 3.4 Comportement des polymères sous irradiation

#### 3.4.1 Interaction rayonnement -matière

Un rayonnement peut être défini comme la propagation de l'énergie sous forme d'onde électromagnétique ou de particule, dans le vide ou dans un matériau. Dans ce dernier cas, le rayonnement cède de l'énergie au matériau. Il en résulte des modifications chimiques dépendant de l'énergie du rayonnement incident et de la structure du matériau.

Dans les polymères, et la matière organique en général, les rayonnements ionisants, comme ceux utilisés dans le cadre de cette thèse, induisent des ionisations et des excitations qui conduisent à la création de défauts dans les chaînes polymériques d'une part et sous forme de gaz d'autre part. Le gaz majoritairement soumis à des rayonnements ionisants en atmosphère inerte est l'hydrogène moléculaire, H<sub>2</sub>. La création de H<sub>2</sub> résulte de la formation de réticulations et d'insaturations de type *trans*-vinylène dans les chaînes de polymère. L'émission de H<sub>2</sub> décroît lorsque la dose d'irradiation augmente. L'interaction d'un rayonnement avec la matière peut se faire suivant différents processus,

## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

---

dépendant de la nature du rayonnement et de son énergie d'une part, et de la composante de la cible (noyaux, électrons) impliquée dans l'interaction d'autre part.

La dose d'irradiation, est l'énergie déposée par unité de masse de la cible. Elle s'exprime en Gray (Gy). Elle est directement reliée la fluence (en  $\text{cm}^{-2}$ ) par le pouvoir d'arrêt massique de l'ion (en  $\text{MeV}\cdot\text{cm}^2\cdot\text{mg}^{-1}$ ).

Le débit de dose correspond à la dose déposée par unité de temps. Il s'exprime en  $\text{Gy}\cdot\text{s}^{-1}$  et est relié au flux (en  $\text{cm}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$ ) par le pouvoir d'arrêt massique.

### 3.4.2 Interactions électrons-matière

Lorsqu'un électron interagit avec la matière, il peut perdre de l'énergie selon différents modes d'interaction dépendant du partenaire de la collision. Il peut ainsi :

- Entrer en collision inélastique avec les électrons du nuage électronique des atomes de la cible, provoquant ainsi l'ionisation et/ou l'excitation de ces atomes ;
- Entrer en collision élastique avec les noyaux des atomes ;
- Etre ralenti par la cible et produire un rayonnement de freinage (Bremsstrahlung) ou générer un rayonnement dit « Cerenkov ». Ce type d'interaction n'est toutefois observé que pour des électrons incidents très énergétiques.

#### **a) Collisions inélastiques avec les électrons des atomes de la cible**

Lorsque les électrons incidents ont une énergie inférieure à 2 MeV, les collisions inélastiques entre les électrons incidents et les électrons des atomes de la cible sont prédominantes dans la perte d'énergie des électrons incidents le long de leur parcours. Lorsqu'un électron incident entre en collision avec un électron de la cible au cours de ce processus, l'électron incident est dévié de sa trajectoire après chaque choc. Le devenir de l'électron cible dépend de l'énergie transférée par l'électron incident. L'électron de la cible peut passer sur une orbitale de plus haute énergie : c'est une excitation. Si l'électron incident transfère suffisamment d'énergie à l'électron de la cible, ce dernier peut être éjecté de l'atome qui devient alors un cation : c'est une ionisation. L'électron éjecté est un électron secondaire qui peut à son tour induire des ionisations le long de son parcours dans le matériau. Au fur et à mesure des différents chocs, les électrons primaires et secondaires seront ralentis jusqu'à la thermalisation. La Figure 3.2. schématise la distribution des sites d'ionisations le long du parcours d'un électron incident et des électrons secondaires. Ces sites s'apparentent à des grappes d'ionisations dont la forme et les dimensions géométriques dépendent de l'énergie des électrons secondaires émis. Lorsque l'énergie déposée est inférieure à 100 eV, le lobe ne contient que quelques sites d'ionisations. La forme de ce lobe (« spur » en anglais) reste approximativement sphérique et son rayon ne dépasse pas 2 nm.

## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

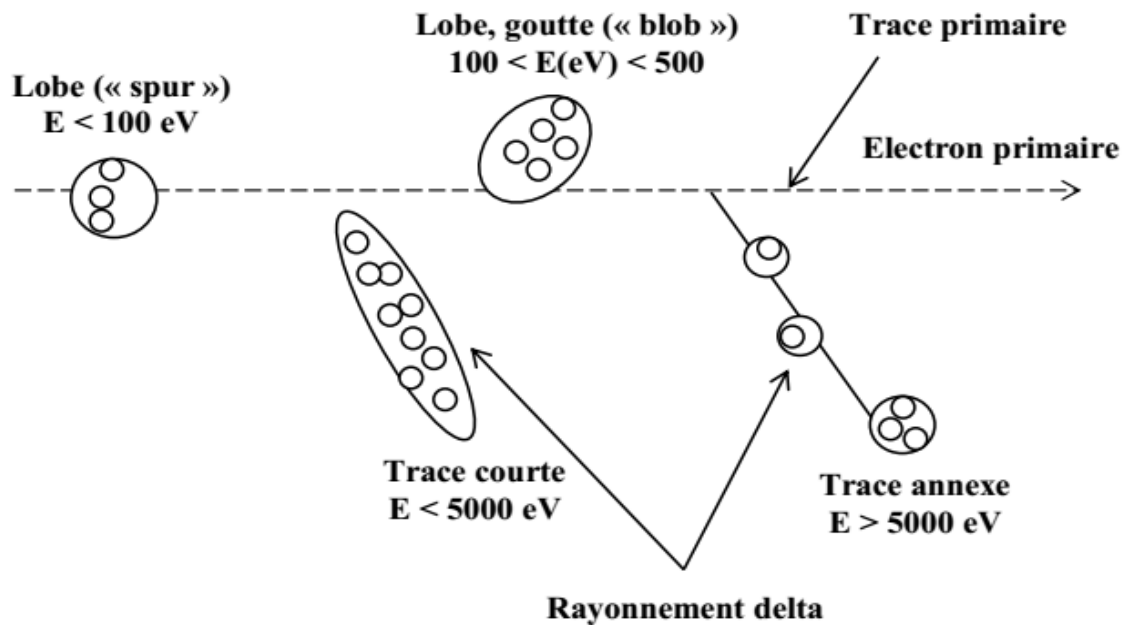


Figure 3.2. Distribution de sites d'ionisation

### b) Collisions nucléaires

Les collisions nucléaires (électrons incidents-noyaux des atomes cibles) contribuent très peu à la perte d'énergie de l'électron incident car, la masse de l'électron étant très faible devant celle des noyaux, celui-ci cède très peu d'énergie. Cependant, les interactions coulombiennes créées par ces noyaux sont responsables d'importantes déviations de l'électron le long de sa trajectoire. Ces déviations sont d'autant plus marquées que l'électron est lent. Pour exprimer le parcours de l'électron dans le matériau jusqu'à son point d'arrêt, il est plus adéquat de considérer le parcours projeté, que le parcours réel. Tant que l'énergie de l'électron est supérieure à environ 10 keV, le parcours projeté vaut approximativement 0.7 [68].

### c) Rayonnement de freinage (Bremsstrahlung)

Lorsqu'un électron incident est ralenti au cours d'interactions électromagnétiques avec un atome de la cible, l'énergie cinétique perdue est transformée en rayonnement électromagnétique X ou  $\gamma$ . C'est le rayonnement de freinage, « Bremsstrahlung » en allemand.

Les résultats précédents indiquent que l'incorporation de nanoparticules de ZnO dans une matrice polymère peut transmettre des améliorations significatives sur la résistance à la photo-dégradation de polymère à l'irradiation. Et l'ajout de nanoparticules ZnO dans la matrice, l'intensité de ces bandes d'absorption de carbonyle était réduit en fonction de l'augmentation de la nanoparticule. Les nanocomposites restent ductiles, avec un allongement à la rupture. Cela indique que la présence des nanoparticules ZnO dans les nanocomposites peuvent aider à réduire les étendue de la photo-oxydation.

# Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

## d) Rayonnement Cerenkov

Lorsqu'une particule chargée pénètre dans un matériau avec une vitesse supérieure à celle de la lumière dans ce même matériau, ( $v > c/n$ ), il se crée une « onde de choc » électromagnétique. Cette onde de choc se traduit par l'émission d'un cône de rayonnement électromagnétique détectable : c'est le cône de Cerenkov. Dans le cas de l'irradiation des polymères, l'émission par rayonnement Cerenkov est négligeable devant tous les autres modes d'interaction des électrons incidents avec la cible car ce mécanisme conduit à un dépôt d'énergie extrêmement faible.

### 3.4.3 Comportement des polymères sous rayonnement

Lorsqu'une particule accélérée pénètre dans un matériau, elle cède progressivement son énergie au matériau cible, soit par interaction avec les noyaux de la cible, soit par interaction avec les électrons. Dans le cas des rayonnements ionisants hautement énergétiques, l'excitation est très majoritairement électronique. L'interaction des rayonnements ionisants avec les polymères engendre des excitations et des ionisations qui évoluent vers la création de radicaux. Ces derniers, qui sont dans la majorité des cas des espèces très réactives, conduisent à des groupements chimiques stables appelés défauts, soit dans la chaîne macromoléculaire, soit sous forme de gaz. La nature et la concentration des défauts d'irradiation macromoléculaires dépendent, de la structure du polymère d'une part, et de l'environnement d'irradiation et de la dose d'autre part. Les polymères ou copolymères d'une façon générale, se forment après l'irradiation des doubles liaisons  $\langle C=C \rangle$ , des réticulations et/ ou des scissions de chaînes.

Lorsque les copolymères sont irradiés des rayons X, il en résulte la diminution de l'intensité maximale et l'élargissement du pic avec une augmentation des temps d'irradiation des rayons X, la diminution du degré de la cristallinité. La transition Ferro-Paraélectrique se produit. Le copolymère non irradié, à température ambiante, montre la coexistence de deux phases ferroélectriques, qui se fusionnent après 1 heure d'irradiation. L'amélioration de la scission de chaîne et la réticulation intermoléculaire avec le temps d'irradiation.

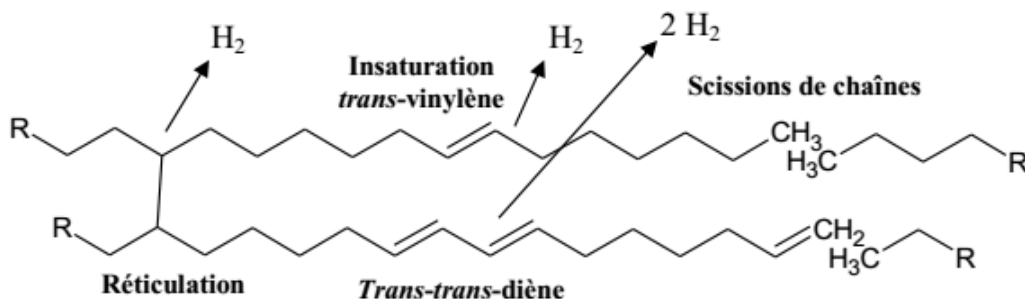


Figure 3.3 Exemple d'un polymère PP[72] : principaux défauts chimiques sous rayonnement

# Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

## 3.4.3.1 Les défauts macromoléculaires

Dans le polymère soumis aux rayonnements ionisants en atmosphère inerte et à température ambiante, les défauts créés dans le squelette sont des scissions de chaîne, des réticulations et des insaturations.

### i. Scissions de chaînes et réticulations

Les scissions de chaîne dans le polyéthylène irradié avec des faisceaux d'électrons ou des rayons  $\gamma$  sont faibles. Les valeurs des rendements radiochimiques de scission de chaîne, par exemple, dans le polyéthylène (PE) irradié avec des rayonnements gamma sont comprises entre 0 et  $0,26 \cdot 10^{-7} \text{ mol.J}^{-1}$ . La valeur de à 35 °C donnée par Kang *et al.* [30] est de  $0,19 \cdot 10^{-7} \text{ mol.J}^{-1}$  à 35 °C. A notre connaissance, les rendements de scissions de chaîne dans les PE irradiés avec des ions lourds ne sont pas connus.

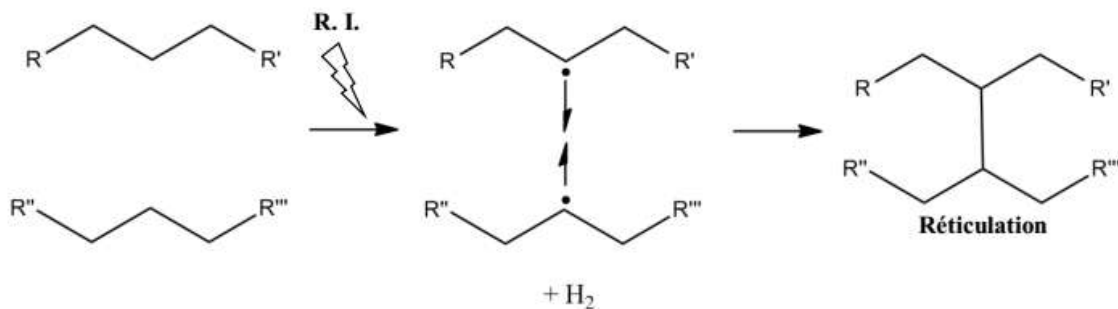


Figure 3.4. Mécanisme de formation de réticulation

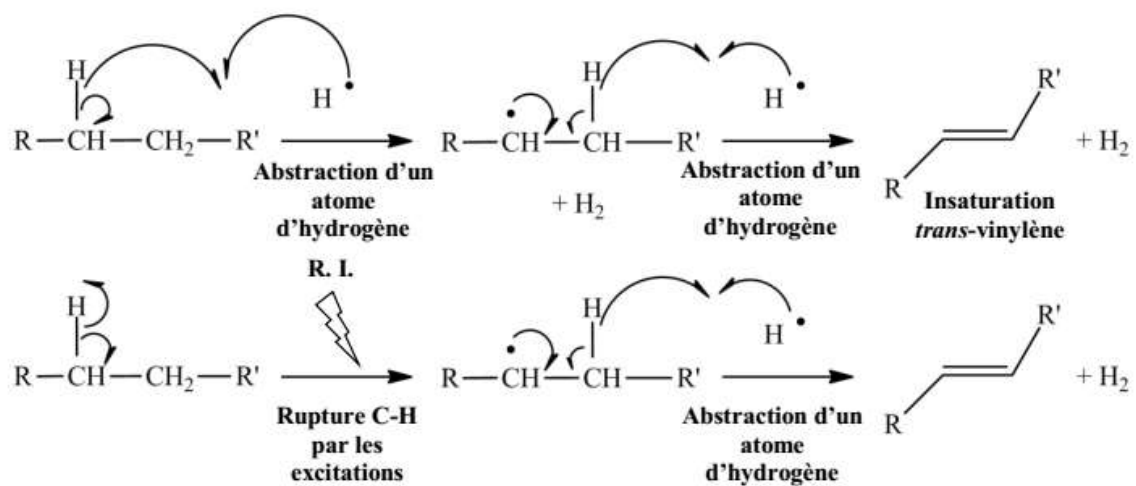
Les réticulations sont prépondérantes dans le PE irradié en milieu inerte. Elles peuvent être intrachânes (cyclisation) ou interchânes (pontage de deux chaînes). Elles sont formées dans la phase amorphe et dépendent donc du taux de cristallinité du matériau étudié. Le mécanisme de formation des réticulations communément admis est présenté sur la Figure 3.4.

### ii. Insaturations

Les insaturations créées dans le polyéthylène irradié sous atmosphère inerte sont de type alcènes ( $R_1R_2C=CR_3R_4$ ). Trois types d'alcènes sont rencontrés dans les polyéthylènes soumis aux rayonnements ionisants : les *trans*-vinylènes, les vinyles et les *trans-trans*-diènes. Les insaturations *trans*-vinylènes sont formées à partir des radicaux résultant de la rupture homolytique des liaisons C-H. D'après ce mécanisme, la formation d'une C=C *trans*-vinylène à partir d'un radical alkyle s'accompagne de l'émission d'une molécule de  $H_2$ . Ils sont formés autant dans la phase amorphe que dans la phase cristalline

## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

---



**Figure 3.5** mécanismes de formation d'insaturation

Nous allons résumer tous les articles [72-84] sous forme d'un tableau bibliographique



Ref	matrix	ceramique	%	Types de rayonnement	Dose (influence taux de dose d'énergie)	NRJ	Tmp irradi	Techniques D'analyse	Résultats					
									Observations				Conclusions	
									d°c ris	Tc ↘	Tm ↘	Autres ↘		
<a href="#">70</a>	P(VDF-TrFE) (70 /30) -films (60µm) -plaques de verre (20µm)	na	na	Rayons X	160kGy/h		0-8h	- diffraction X - calorimètre différentielle DSC - thermogravimétrie -spectre IR -spectre Raman -spectre UV/vis	↘			mas se	Nouvelles espèces chimiques :C=C, diène, triène et chromophores	Changement physique et chimique qui consiste à diminuer le taux de cristallinité et donc la phase ferroélectriques et formation des nouvelles structures
<a href="#">71</a>	P(VDF-TrFE) (70 /30) Films (5-20µm) plaques	na	na	électron		100k eV 3Me V		Spectroscopie R-X Analyse UV DSC				Création des nouvelles bandes double C=C	L'effet de la taille des cristallites a une importance mineure, l'effet de la pression interne décrit de manière satisfaisante l'abaissement des températures Tc et Tm Pour Tc, l'effet principal est la diminution de l'énergie polaire Donc → Création de défauts dans la phase cristalline	

72	-PVDF polarisé (30+2)µm P(VDF-TrFE) 70-30 (28+2)µm PVDF n polar	na	na	VUV (115-300 nm)  gamma	Press :30 mTorr 24h 0.40kGy /h		1.2.3 ans	Analyse Sol gel  DSC  Spectroscopie UV/vis Spectroscopie NMR  Caractérisation piézoélectrique	-diminution dans la masse des molécules des 2 polymères après irradiation VUV - les deux films étaient décolorés( jaune) et enroulés (vers le coté le + de UV) → formation de conjugués, des chromophores non saturés ou des radicaux piégés - déterminer la formation de réseaux dans les films traités des VUV La = entre gamma et VUV est la profondeur de penetration ; photons gamma ont une énergie suffisante pour pénétrer complètement à travers polymères et tandis que les photons UV sont habituellement absorbés dans une couche mince de surface -morphologie et changement physique Mesurer le coefficient piézoélectrique d33 et la boucle d'hystérésis D-E	Les polymères doivent être résistants à l'environnement spatial et donc aux rayonnements Le taux de réticulation est identique pour les deux polymères après l'irradiation gamma Par contre, la réponse de chaque polymère à UV était différente. (le taux de réticulation)
----	---	----	----	----------------------------------	--------------------------------------	--	-----------	--	--	---

73	PVDF Plaques (500 et 100µm) 20*20*5 mm 20*20*1 mm	na	na	Proton (p+)	10 <sup>15</sup> 2.10 <sup>15</sup> protons /cm <sup>2</sup>	1Me V 5Me V	2h après recuit	Analyse thermomécanique TMA Spectre ESR Logiciel ERPtool( calcul théorique)	-évolution de plus de 10 types de produits gazeux à des taux différents et en quantités différentes - la chaîne carbonée des macromolécules PVDF est très résistant à l'impact de protons accélérés -formation des PMC's ( centres paramagnétiques de rendement chimique de rayonnement)	L'irradiation de PVDF avec différentes doses sans changer le caractère de pseudo-réseau de son bloc de matrice amorphe a entraîné une forte réduction de la teneur en masse de chaînes interjection dans le bloc et un motif non monotone de changements dans leur mobilité, la masse moléculaire et polydisperse -L'impact de l'énergie des protons de PVDF détruit les liaisons dans sa structure, les remplace par des cristallites de trois structures différentes avec des taux de fusion et les températures, les masses moléculaires des chaînes cristallisées, et des fractions volumiques - Une augmentation de l'énergie des protons bombardant PVDF a donné lieu à un motif monotone non de changement dans le nombre? Valeur moyenne de bloc par bloc en moyenne de poids moléculaire, ce qui indique le même changement dans le degré de dispersion de blocs cristallins à l'intérieur de chacune de ses macromolécules, en moyenne. Le même comportement non monotone est observé pour le changement de la température de début d'écoulement moléculaire, qui
----	---	----	----	----------------	---	----------------------	-----------------------	--	---	--

										semble être lié. Les valeurs de la masse moléculaire moyenne du polymère réduisent considérablement sous l'influence de cette énergie à une augmentation de la dose, indiquant la dégradation de macromolécules
74	Copolymère Films minces P(VDF-TrFE) 56/44mol% Incorporé sur Si En utilisant 13wt% du MEK, e=2.2µm Recuit 120°C pour 2h pour obtenir une cristallinité élevée	Na	na	Proton H+	0 20 30 50Mrad	3Me V		Interféromètre laser à balayage	Mesurer les coefficients electrostrictifs M33 A f=10kHz ; pour les échantillons en vrac (en volume)M33, pour les films sur Si Meff33 et pour les films au centre de la membrane du Si suspendu	Les résultats donnent une estimation de la proportion de la diminution dus aux effets de serrage (clumbing effect) -Ceci est important pour donner une idée de concevoir des dispositifs à membrane pour une application particulière -M33eff<M33 à cause de clumbing du substrat La fréquence de résonance de la membrane dépend de la taille et de l'épaisseur .
75	P(VDF-TrFE) 70/30 mol% Composites	PMN 0.9 PT 0.1	0-3	Proton	Fraction volumique (0.05-	3Me V		-XRD (cristallinité -microscopie à balayage électronique	Avant l'irradiation, la permittivité relative et le perte dielectrique augmente avec la fraction volumique du	Fabrication d'un composite à 0-3 de 0.9PMN-0.1PT/ P(VDF-TrFE) irradié par Proton Avec cette combinaison des deux

	avec $\epsilon=30\mu\text{M}$ après recuit pour 2h				0.40) 3.57*10 <sup>^13</sup> (60 Mrad) 4.76*10 <sup>^13</sup> (80Mrad) 5.96*10 <sup>^13</sup> (100Mr)			(distribution des poudres de la céramique dans la matrice copolymère)	céramique Après l'irradiation, les pics dielectriques elargissent et la temperature de transition décale et abaisse la température ( de 75° a 35°C)	phases des permittivités relatives élevés, les propriétés diélectriques du composite est possible d'améliorer considérablement Après l'irradiation, les pics diélectriques élargissent et la température de transition change et diminue
76	Copolymère P(VDF-TrFE) 80/20 mol%			Gamm a 60 C source	Débit de la dose 0.24Mrad/h 2,5,10,20,30,40,80,100 et 120Mrad			-diffraction X-ray -Analyse thermique -Chromatographie d'exclusion stérique (déterminer la masse moléculaire de la fraction soluble de l'échantillon irradié) -Gel content analysis (en utilisant les contenus résiduels d'échantillons irradiés) -spectre IR( examiner les changements de conformation avant et après irradiation)	Etude des changement structurels des copolymères irradiés sera utile pour clarifier le mécanisme microscopique et aussi améliorer les propriétés électromécaniques → solidité (toughness) des films copolymères étudiés diminue avec l'augmentation des doses d'irradiation ( associé à l'appartition de la réticulation dans les régions amorphes ( besoin d'une haute mobilité de la chaîne) pendant l'irradiation étant donné que l'énergie de la chaîne de polymère absorbé induit des réactions chimiques) → la fraction insoluble des polymères augmentent en fonction de la dose	Les films irradiés présentent une diminution régulière de sa solidité(toughness) lorsqu'on augmente la dose. L'analyse indique que l'irradiation résulte la réticulation dans la zone amorphe en raison de la déshydrofluoration -l'apparition des C=C -Tm et Tc diminuent -la taille des cristaux diminue avec l'augmentation de la dose d'irradiation -l'espace du réseau étendue avec l'irradiation -on pense que les régions cristallines avec la taille réduite provoquent le comportement ferroélectrique relaxeur observée dans le copolymère irradié

									<p>→ la masse Mn(masse moléculaire moyenne en nombre) et la masse Mw (masse moléculaire moyenne en poids) diminuent en augmentant la dose d'irradiation. (le principal scission de chaîne a été induite par irradiation gamma dans la région cristalline du copolymère autres que la réticulation dans la région amorphe)</p> <p>→ le spectre IR dans {400-4000cm<sup>-1</sup>} ne présentait pas des modifications importantes dans les bandes d'absorption avec l'irradiation. Cependant, une petite nouvelle bande autour de 1730 cm est apparue dans les échantillons irradiés. L'amplitude de ce pic d'absorption augmente avec l'augmentation de la dose d'irradiation qui peut être attribuée une double liaison C=C</p>	
77	P(VDF-TrFE) 70/30 Disque	Ba0.6 5 Sr0.3 5		prot on	FV=0.1 à0.5 D= 40,60,80	3Me V		-XRD (cristallinité) -SEM (distribution de la poudre de la céramique dans la	La densité de courant maximale est 0.95nA/cm <sup>2</sup> pour éviter le chauffage des échantillons	Les composites se compose de cristalline fine et uniformément des particules de céramique dispersées et la permittivité relative des

	O=30mm e=40µm après recuit 2h	TiO3			,100Mrad Les doses ont été sélectionnés pour optimiser le E		matrice polymère - Analyse d'impédances (mesurer les propriétés diélectriques du composite) Les mesures de la polarisation de champ électrique (PE) de la boucle d'hystérésis ont été effectuées en utilisant un circuit Sawyer Tour modifiée à une fréquence de 10 Hz	-tracer les courbes de permittivité relative en fonction de la fraction volumique du céramique et de la fréquence avant et après l'irradiation ce qui nous résulte la ε basse et la tangente de perte très élevée pour les fréquences très grandes en MHz -pour les fréquences basses, une augmentation significative de la constante diélectrique peut être observé dans les composites irradiés -tracer les courbes de ε en fonction de la température avec une fraction volumique définie (0.5) et dans diverses fréquences → Les pics diélectriques dépendent de la fréquence et déplacent à une T↑ Ce sont les propriétés caractéristiques des matériaux ferroélectriques relaxeurs qui sont similaires à qui a été rapporté dans les copolymères irradiés electron -tracer la polarisation en fonction du champ électrique pour deux différentes fractions	matériaux composites augmente avec l'augmentation de la fraction volumique -En raison de l'irradiation de protons, le composite transforme de matériau ferroélectrique au ferroélectrique relaxeur et ce comportement est dominé par la matrice de copolymère irradié - Avec l'augmentation de la dose de protons, le pic diélectrique élargit et déplace vers les basses températures. Par conséquent, une permittivité relative élevée peut être observée à certaine plage de température par rapport à des composites non irradiés. Les boucles 'hystérésis des composites irradiés dépendent fortement de la fraction volumique de céramique Sous la même dose de protons, composite avec des fraction volumique de céramique inférieure, montrent une diminution significative de la polarisation rémanente et champ coercitif que celui du composite avec une fraction élevée du volume de céramique. Par conséquent, le comportement relaxeur ferroélectrique et les propriétés diélectriques des
--	--	------	--	--	--	--	--	--	--

									<p>volumiques 0.2 et 0.5 avant et après l'irradiation → les polymère irradiés en proton montrent une boucle d'hystérésis mince avec une réduction au niveau de polarisation et du champ coercitif qui peut se produire en raison de l'augmentation de la phase amorphe dans le polymère. Par contre les composites irradiés, les niveaux de polarisation ont une influence significative de la fraction volumique de la céramique en poudre.</p>	<p>matériaux composites peuvent être optimisées en contrôlant le dosage et la fraction volumique de la céramique en poudre.</p>
78	<p>PVDF graines 5g dans 100ml de DMF sur agitateur magnétique à 60°C pendant 6h</p>	ZnO	1-9 wt %					<p>-Spectre EDX → justifier le PVDF vierge (pristine) et la formation de nanocomposite PVDF-ZnO</p>	<p>Etudier les propriétés optique comme l'indice de refraction, bangap optique et l'énergie d'activation optique -présence de zinc, de l'oxygène, de l'or, du carbone, du potassium, du fluor et du chlore. Les éléments ont été identifiés comme carbone et de fluor provenant de la structure de PVDF et le zinc (Zn) et de l'oxyde (O) provenant du ZnO et la présence de chlore est considéré comme une impureté lors de la préparation de l'échantillon. L'or est utilisé</p>	<p>La dépendance des propriétés optiques des nanocomposites de ZnO a été étudiée Les résultats ont montré que les nanocomposites auraient les propriétés optiques les plus optimaux, à savoir. La transparence à la lumière visible élevée et à l'efficacité de protection UV. La composition de nanoparticules de ZnO en PVDF augmente l'absorbance de la lumière UV, par conséquent, l'efficacité de protection contre le rayonnement UV est dû à la capacité d'absorption d'UV de nanoparticules de ZnO incorporé</p>



							<p>-spectroscopie d'absorption UV-IR et de la transmission → déterminer la composition des films préparés</p> <p>-Spectroscopie Raman → propriétés structurelles des nanocomposites</p>	<p>comme formation de dépôts pour les échantillons. Le bord d'absorption était d'environ 204 nm pour le PVDF (la nature semi-cristalline). Le film de PVDF a une absorbance UV très limitée, et il est amélioré grâce à l'ajout de ZnO en raison de son gap de haute énergie. Après l'incorporation de ZnO, l'intensité de l'absorption augmente et sa position devient légèrement décalé vers la longueur d'onde plus élevée / fréquence inférieure -fournit plus d'informations sur la structure conjugué et le squelette de la chaîne de polymères et donne aussi des bandes de nombre d'onde inférieure aussi facilement que des bandes de nombre d'onde supérieur Ainsi, les données Raman fournissent des informations spectroscopiques qui ne peut être assurée par la seule analyse IR. Le pic d'intensité est devenu fort et la FWHM diminue avec</p>	<p>dans le PVDF. L'augmentation de l'absorption dans la région UV du spectre est due aux excitations des électrons au niveau des donneurs à la bande de conduction de ces énergies. Le gap optique pour les transitions directes et indirectes diminue lorsque la quantité ZnO augmente → ce comportement peut être associé à des changements structurels qui se produisent après l'ajout de nanoparticules de ZnO l'énergie d'activation optique de nanocomposites diminue La diminution du gap optique peut être mise en corrélation avec une diminution du désordre dans le réseau indiqué par l'énergie d'activation optique. Les spectres Raman montrent la formation d'un réseau de couches minces des nanocomposites PVDF-ZnO</p>
--	--	--	--	--	--	--	---	--	--

									l'augmentation de la quantité de ZnO, qui est attribuée à l'amélioration de la nature cristalline du PVDF	
79	Polypropylene PP Plaques 200*80*3mm	ZnO	0 1.5 3 5 wt %	UV I=0.65 W/ m <sup>2</sup> T=65			600h	<p>-Analyse de la transformée du Fourier IR</p> <p>-DSC → étudier la cristallisation et le comportement de fusion des nanocomposites avant et après l'irradiation</p> <p>- diffraction X-ray → étudier la structure cristalline</p> <p>-DMA → obtenir le stockage et le module de perte des nanocomposites avant et après le traitement d'irradiation UV</p> <p>-TEM → les nanoparticules de ZnO et de leur dispersion dans la matrice PP</p>	<p>Mesurer <math>\Delta H_f</math>, <math>\Delta H_c</math>, <math>T_m</math>, <math>T_c</math> et <math>X_c</math></p> <p>-les produits de dégradation induisent l'évolution des pics d'absorption dans les gammes de nombre d'onde de 3200-3600 et 1600-1800 <math>\text{cm}^{-1}</math></p> <p>-la température de cristallisation a tendance à décaler vers des valeurs plus élevées avec l'augmentation du contenu des nanoparticules ZnO</p> <p>-des nanoparticules sont à l'échelle nanométrique et sont pour la plupart de forme allongée → la plupart des nanoparticules sont</p>	<p>l'incorporation de nanoparticules de ZnO dans la matrice PP peut donner des améliorations significatives sur la résistance photo-dégradation de la PP aux rayonnements UV.</p> <p>D'après l'analyse FTIR, on a observé que de fortes bandes d'absorption sont formées dans le PP non chargé après avoir soumis à un traitement par irradiation UV</p> <p>Après l'addition de nanoparticules de ZnO dans la matrice PP, l'intensité de ces bandes d'absorption a été réduite en fonction de l'augmentation de la quantité des nanoparticules.</p> <p>Les mesures ont indiqué que les nanocomposites ZnO/PP sont restés ductiles avec des allongement pour les valeurs de rupture plus de 500%, même après l'incorporation de plus de 5%wt de ZnO.</p> <p>Après le traitement par UV, les fissures surfaciques ont été formées sur la surface de tous les échantillons étudiés.</p> <p>Après le MEB, la taille et la densité de la fissuration sont réduites dans</p>

								SEM → observer les surfaces de rupture après des essais de traction OM → observer les fissurations surfaciques pour les échantillons irradiés -analyseur thermogravimétrique TGA → caractériser la stabilité thermique des échantillons avant et après irradiation UV	uniformément dispersées dans la matrice PP. la présence du traitement de surface organique sur les particules de ZnO qui change les propriétés de surface d'inorganique en organique, réduit la tension de surface de la particule.	les ZnO/PP d'après l'analyse TGA, les mesures sur le PP non chargé et les nanocomposites PP/ZnO ont été montré que, après l'irradiation, les nanocomposites peuvent maintenir une meilleure stabilité thermique.
80	Nanocomposites : PDMS  PDMS PDMS	DND S ZnO SWN Ts	1% wt	Proton	10(13) 10(15)/c m <sup>2</sup>	2MeV		-Spectroscopie Raman -Spectroscopie IR à transformée de Fourier → la dynamique de vibration des nanocomposites PMDS	-une réduction globale de l'intensité de la bande de vibration caractéristique des échantillons irradiés -la plus grande résistance aux rayonnements a été démontrée pour des échantillons PDMS-ZnO	puisque le bénéfice est réalisé avec une faible charge, le coût du nanocomposite peut être maintenue faible et que le polymère conserve les autres propriétés avantageuses qui les rendent attrayants
81	Copolymère electrostrictive P(VDF-TrFE)	na	na	electron		2.55 1.2 1.0 MeV		-interféromètre à faisceau unique → pour avoir une réponse de la déformation	Mesurer le champ électrique en fonction des contraintes longitudinales et et transversales	Les films de copolymères (50/50, 65/35, et 68/32 mol%) irradiés par les électrons à haute d'énergie ont une réponse de contrainte du champ électrique induit. par rapport aux

	50/50 65/35 68/32%mol Epaisseur {15,30 $\mu$ m}							longitudinale à haute fréquence		autres matériaux électro-actifs, un grand avantage pour les copolymères irradiés est que le matériau qui a une contrainte de volume très élevé, rend le matériau très adapté pour les applications hydrostatiques. es coefficients piézo-électriques apparents peuvent être transformés dans une large gamme à travers le champ électrique externe. En outre, le matériau présente également une réaction à haute tension à haute fréquence. La réponse des contraintes des matériaux sous des conditions différentes montre que les copolymères irradiés ont une capacité de charge très élevée.
--	---	--	--	--	--	--	--	------------------------------------	--	---

## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

D'après le tableau bibliographique, nous avons appris que quelque soit le type de rayonnement, nous voyons des modifications structurels dans les matériaux qui sont dus aux défauts énergétiques ou aux défauts d'ionisation. Parmi tous les types de techniques d'analyse cités dans le tableau, il ne parle pas des effets élasto-optiques. Nous allons utiliser ces derniers avec la spectroscopie Brillouin.

### 3.5 Dispositif expérimental

Dans cette étude, le copolymère ferroélectrique utilisé comme matrice qui était P (VDF-TrFE) et les deux matériaux nanocharges sont des nanoparticules : Oxyde de zinc (ZnO) et alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). La méthode d'élaboration des nanocomposites ont été extensivement décrit dans [56]. L'homogénéité de ces composites est indiqué dans [85].

Pour étudier les défauts créés par les déplacements atomiques ou d'ionisation, nous caractérisons deux séries d'échantillons:

- a- Le premier a été irradié par des rayons X de 10 keV, l'irradiation a été réalisée à l'aide d'une machine d'Aracor avec des différentes doses: 5krad ( $\text{SiO}_2$ ), 5 Mrad et 50 Mrad.
- b- Le second a été irradié par des neutrons de fission avec des doses d'énergie de 0.8MeV avec une fluence de  $5 \times 10^{14}$  neutrons /  $\text{cm}^2$ .

Et pour terminer nous avons réalisé des mesures avec de la spectroscopie Brillouin à l'Institut Jean Lamour à Nancy, France.

La figure 3.1 illustre l'utilisation expérimentale de la spectroscopie Brillouin (voir le détail dans le chapitre 2)

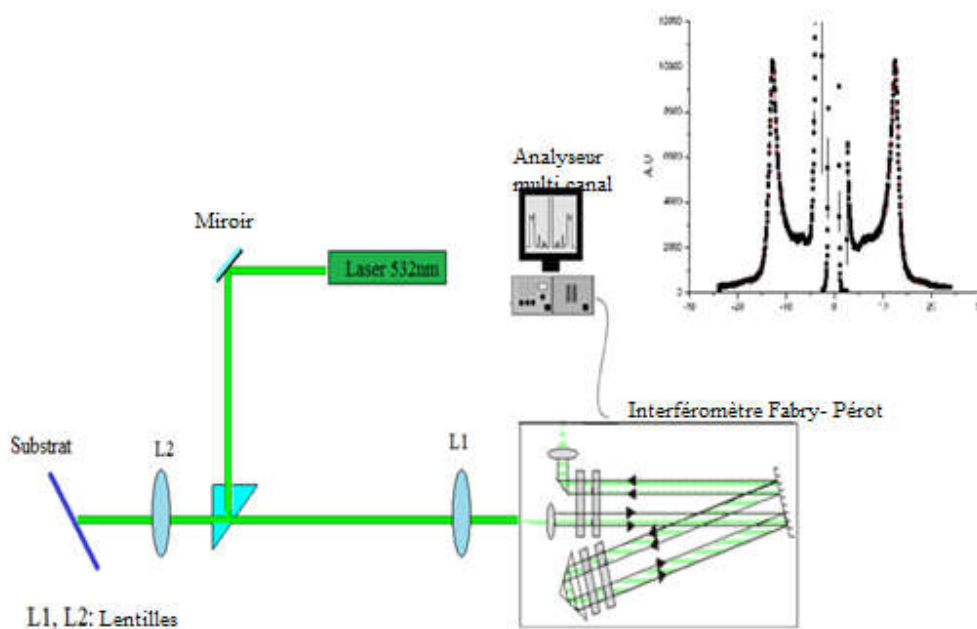
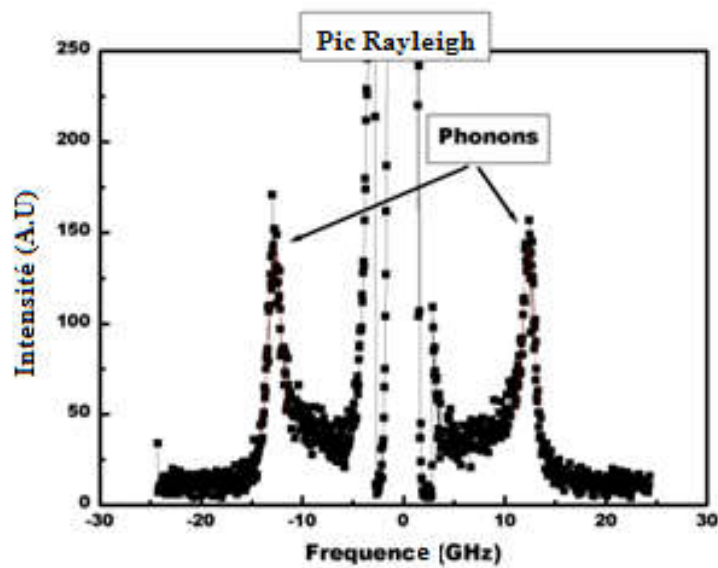


Figure 3.6 : Mise en place expérimentale de la spectroscopie Brillouin

## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

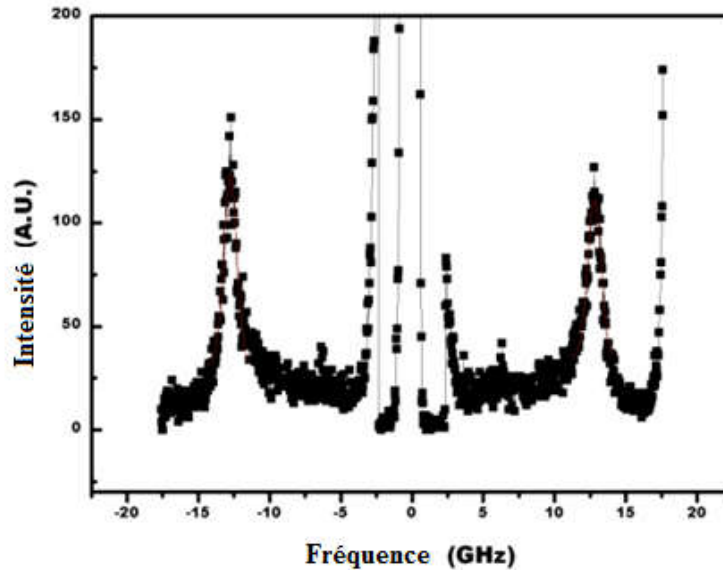
Comme le spectromètre est un tandem 6-pass Fabry-Perot conçu par Sandercock et la lumière est acquise par le photomultiplicateur à faible bruit et par un système multicanal de l'analyseur. La distance entre les miroirs est fixée à 5 mm et la longueur d'onde incidente du laser est de 532 nm. Avec ces paramètres, nous pouvons détecter les ondes acoustiques de volume longitudinales. Et nous avons choisi la géométrie 180°.

La figure 3.7 et 3.8 donnent un exemple du spectre Brillouin en réalisant sur les deux types d'échantillons remplis avec les deux nanoparticules et qui sont irradiés avec deux types d'irradiations.



**Figure 3.7. Exemple du spectre obtenu sur le copolymère P(VDF-TrFE)/wt1% of  $\text{Al}_2\text{O}_3$  irradié avec le neutron.**

## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés



**Figure 3.8. Exemple du spectre Brillouin obtenu sur le P(VDF-TrFE)/wt5% of ZnO irradié avec les rayons X**

Nous avons vu dans le chapitre 2 la constante élastique en fonction de la fréquence des phonons acoustiques qui est :  $C_{11} = \rho v^2$

Nous allons calculer la constante élasto-optique  $P_{12}$  à partir de la relation suivante

$$I = I_0 V 4\pi \frac{k_B T C_{11}}{\lambda_0^2 \epsilon^4 P_{12}^2}$$

Quand  $V$  est le volume de la diffusion,  $k_B T$  est l'énergie cinétique,  $I_0$  et l'intensité du faisceau laser incident et  $I$  est l'intensité Brillouin.

Dans les Figures 3.7. et 3.8. l'intensité de la lumière diffusée est tracée en fonction du décalage de la fréquence entre les photons diffusés et incidents. Au milieu de la fenêtre du spectre, le pic de diffusion élastique est lié à la diffusion Rayleigh. Ce pic a une très grande intensité par rapport à ceux des pics inélastiques. Des deux côtés ; les deux pics sont liés aux interactions inélastiques entre les photons entrants et les phonons acoustiques. Le décalage de la fréquence de ces pics nous donnera la vitesse acoustique tandis que la largeur est en corrélation avec l'atténuation et, enfin, l'intensité (aire du pic) représente la probabilité d'interaction entre les photons incidents et les phonons acoustiques.

Dans le premier lieu, lorsque les échantillons sont irradiés avec différentes doses de rayons X, les figures 3.9 et 3.10 montrent la variation de la constante élastique  $C_{11}$  de nos nanocomposites à base de la matrice P(VDF-TrFE) remplie de nanoparticules d'alumine et d'oxyde de zinc pour trois doses différentes de rayons X.

## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

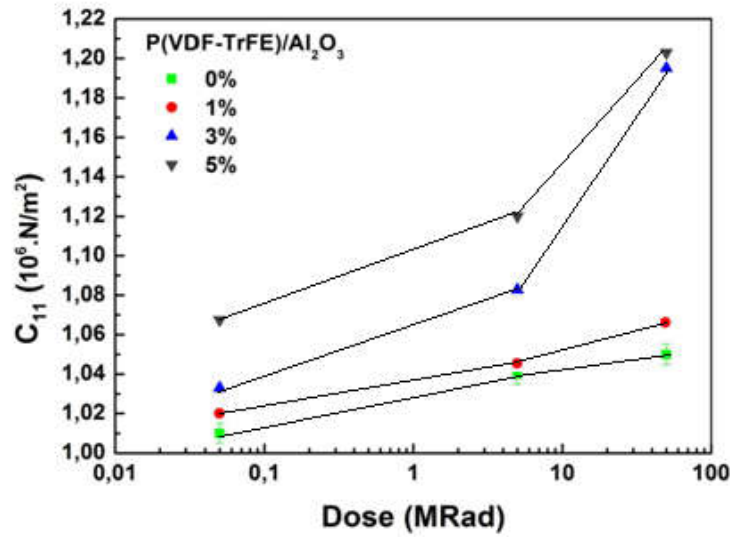


Figure 3.9. Variation de la constante élastique  $C_{11}$  des nanocomposites  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{P(VDF-TrFE)}$  en fonction de la dose

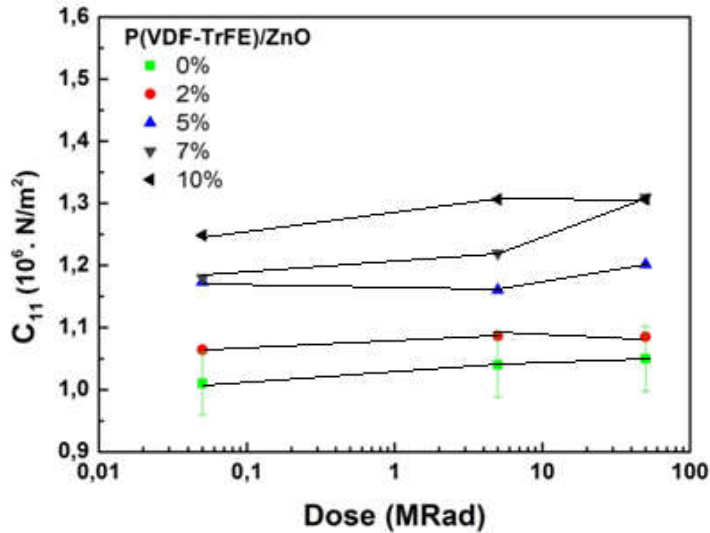


Figure 3.10. Variation de la constante élastique  $C_{11}$  des nanocomposites  $\text{ZnO/P(VDF-TrFE)}$  en fonction de la dose



## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

En regardant les courbes dans les figures 3.9. et 3.10., nous voyons qu'il y a une augmentation de la constante élastique  $C_{11}$  lorsque la concentration en nanoparticules augmente et ceci pour les deux types de nanoparticules. Ces premiers résultats étaient réalisés à partir des expériences précédentes [64]. Cet effet est dû au renforcement mécanique de la matrice en ajoutant des nanocharges. Notre objectif est d'obtenir des matériaux ayant des propriétés mécaniques élevées mais minimisés modifiés par des rayonnements. Par conséquent, le paramètre d'intérêt est la stabilité de la propriété mécanique par rapport aux doses de rayonnement. Le renforcement mécanique avec des charges ne doit pas être considéré comme une dégradation de la matrice comme c'est le cas pour les doses de rayonnement

Cependant, pour les nanoparticules  $Al_2O_3$ , nous pouvons voir que l'influence de la dose sur la constante  $C_{11}$  est plus grande que pour les nanocharges ZnO. Par exemple, la variation des constantes élastiques  $C_{11}$  augmente avec la quantité de nanoparticules d'alumine. D'autre part, avec des nanoparticules d'oxyde de zinc, la variation de  $C_{11}$  est comprise entre 0% et 10% reste fixe plutôt identique quelle que soit la dose. De plus, nous observons que la constante élastique du polymère de nanocomposites est renforcée et nous suggérons que cet effet est lié à la modification de la cristallinité de la matrice de copolymère.

En opposition aux mesures des constantes élastiques  $C_{11}$ , Nous observons pour le coefficient élasto optique  $P_{12}$  dont l'ajout de nanocharges ZnO rend les nanocomposites plus sensibles aux radiations que l'incorporation de nanoparticules  $Al_2O_3$ .

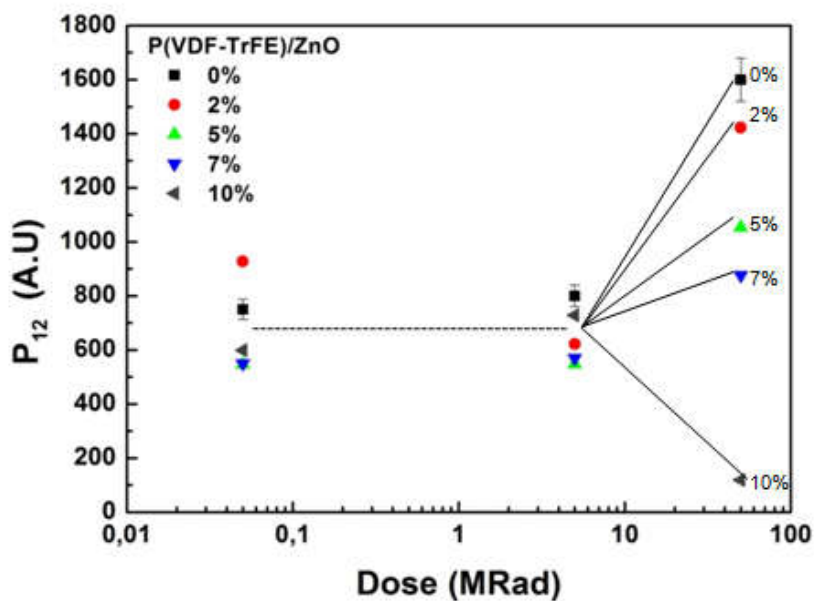


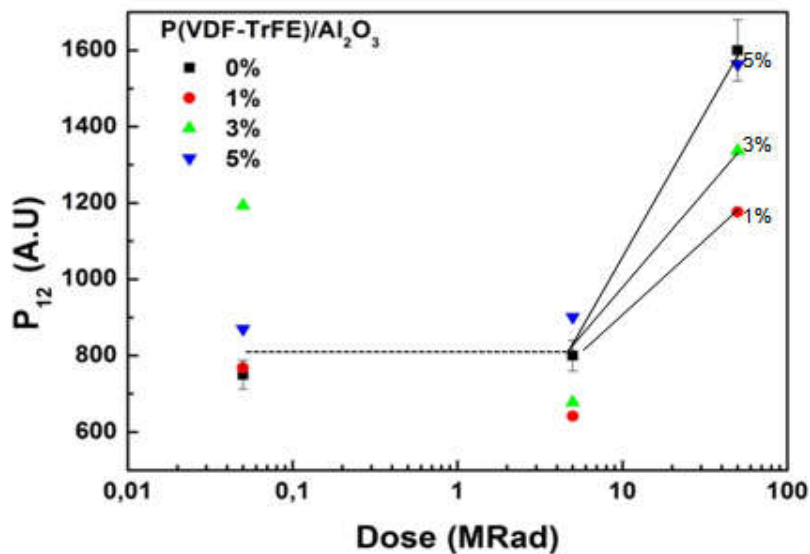
Figure 3.11. Variation du coefficient élasto-optique  $P_{12}$  des nanocomposites ZnO/P(VDF-TrFE) en fonction de la dose

## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

Nous savons que la constante élasto-optique est proportionnelle à la racine de la constante élastique  $C_{11}$  et inversement proportionnelle à l'intensité de Brillouin. C'est pourquoi il y a un changement de la constante lorsque le nombre de nanoparticules augmente dans diverses doses.

Dans la figure 3.11, il est montré que la dose des rayons X influence fortement la polarisabilité du ZnO-nanocomposite. L'impact est plus faible pour les nanocomposites remplis de nanoparticules  $Al_2O_3$  (voir figure 3.12).

Les nanoparticules ZnO sont connues pour être un détecteur efficace de rayons X [81]. Le ZnO semble également utile pour la protection du matériel contre l'irradiation aux rayons X dans la matrice d'intérêt P(VDF-TrFE). Nous pouvons alors supposer que par absorption des photons de rayons X, puis en protégeant l'élasticité de la matrice polymère des défauts induits par irradiation, les nanoparticules de ZnO va entraîner la création d'un défaut ou d'ionisation des électrons libres qui augmentera la polarisabilité.



**Figure 3.12. Variation du coefficient élasto-optique  $P_{12}$  des nanocomposites ZnO/P(VDF-TrFE) en fonction de la dose**

Lorsqu'un polymère est soumis à une irradiation X, la voie principale conduisant au changement induit par le rayonnement est par l'intermédiaire d'électrons éjectés à partir de photons entrants et de diffusion des phonons. L'interaction des rayonnements ionisants avec les polymères génère des excitations et des ionisations qui évoluent vers la création de radicaux. La nature et la concentration des défauts d'irradiation macromoléculaire dépendent d'une part, de la structure du polymère et d'autre part de l'environnement de rayonnement et de la dose. Après irradiation, il peut être attribué une double liaison  $\langle C=C \rangle$ . ces défauts

## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

microscopiques produits dans le P(VDF-TrFE) au cours de l'irradiation sont essentiellement reliés à la réaction de déshydrofluoration.

Pour expliquer l'augmentation de la constante élastique  $C_{11}$  avec la dose, nous devons garder à l'esprit que les particules sont principalement situées dans la phase amorphe. Avec notre hypothèse de la création libre et/ou la création de défaut énergétique des électrons par rayons X, celles-ci vont induire des scissions en chaîne dans la phase cristalline et / ou de la réticulation intermoléculaire dans la phase amorphe qui pourraient être une explication du comportement de  $C_{11}$ .

Dans la deuxième étape de notre étude, nous avons irradié une nouvelle série d'échantillons avec des neutrons à 0,8 MeV avec une fluence de  $5.10^{14}$  neutrons /  $cm^2$ . L'idée était de confirmer notre première hypothèse sur les processus impliqués dans les propriétés physiques (variations ionisation et / ou des défauts énergétiques).

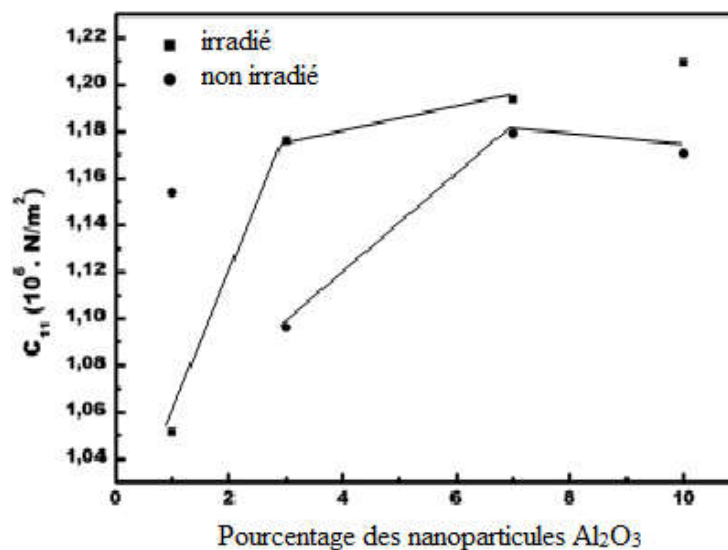
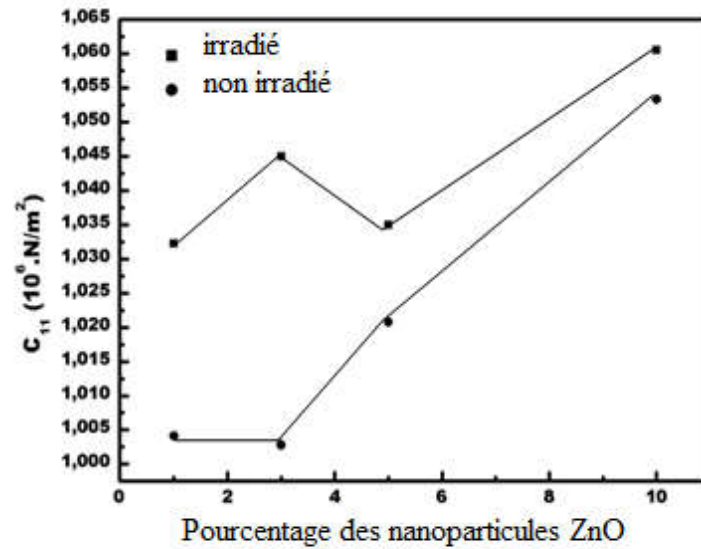


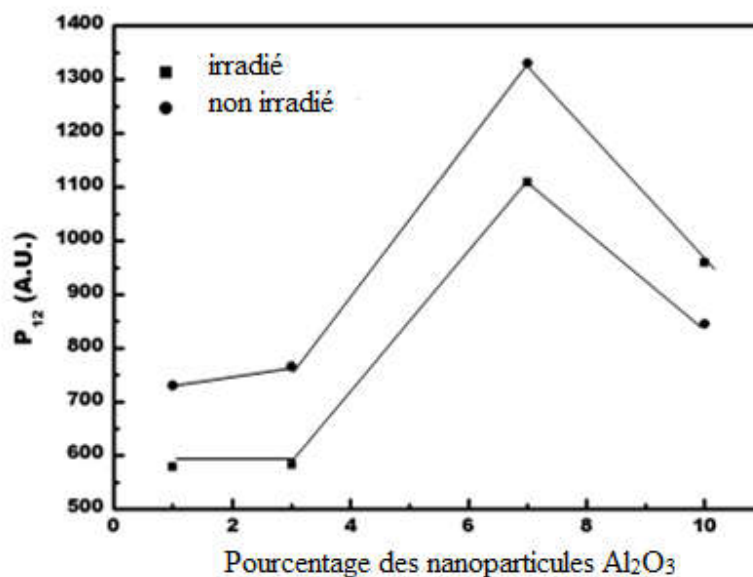
Figure 3.13. Evolution de la constant élastique  $C_{11}$  en fonction du pourcentage des nanoparticules  $Al_2O_3$

## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés



**Figure 3.14. Evolution de la constante élastique  $C_{11}$  en fonction du pourcentage des nanoparticules de ZnO**

Dans les figures 3.13 et 3.14, la constante élastique  $C_{11}$  est tracée en fonction de la concentration en alumine et de nanoparticules de ZnO. Nous pouvons voir qu'en augmentant la quantité de nanoparticules, l'influence du rayonnement semble à la fois diminuer. Une explication pourrait être que les dommages du déplacement seront plus situés dans les nanoparticules de ZnO ou  $\text{Al}_2\text{O}_3$  que dans la matrice polymère.



## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

Figure 3.15. Variation du coefficient élasto-optique  $P_{12}$  du nanocomposites en fonction de la concentration des nanoparticules  $Al_2O_3$

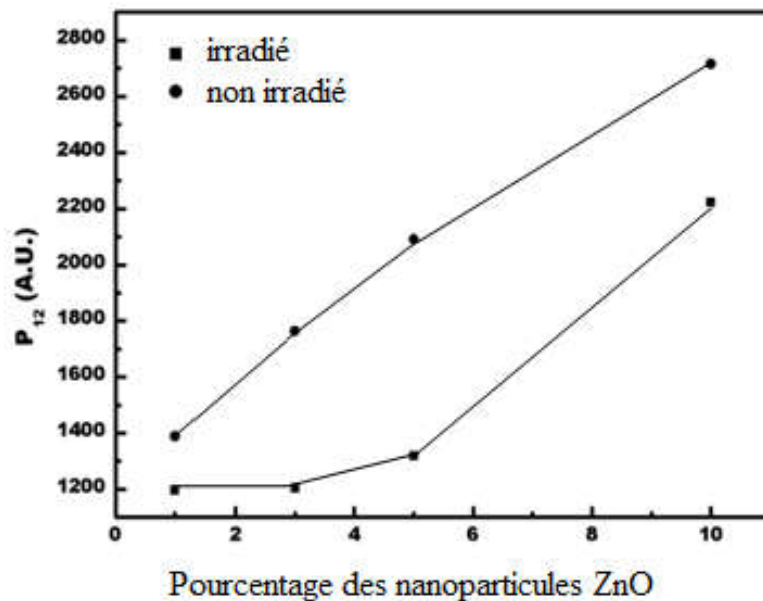


Figure 3.16. Variation of du coefficient élasto-optique  $P_{12}$  du nanocomposites en fonction de la concentration des nanoparticules ZnO

Cependant, nous observons que les polymères des nanocomposites étaient colorés après irradiation, ce qui est cohérent avec les études antérieures [85]. La coloration des polymères durant la radiothérapie est bien connu de venir à la formation de conjugués, des chromophores insaturés ou des radicaux piégés. Ces observations sont confirmées par le coefficient élasto-optique calculé (déduite de l'intensité de la lumière diffusée et  $C_{11}$ ) tracées dans les figures suivantes 3.15 et 3.16

Comme pour rayons X, nous pouvons voir que la présence de nanocharges ZnO rend la matrice de polymère plus sensible en termes de coefficient élasto-optique. La polarisabilité de ZnO / nanocomposite est renforcée après irradiations neutroniques. Ce point peut être expliqué par une section transversale plus élevé d'interaction entre les neutrons et ZnO par rapport à celle des neutrons avec  $Al_2O_3$ . Nous pourrions aussi en déduire à la fois des neutrons et des irradiations de rayons X étude que les défauts énergétiques peuvent être la source prédominante de la variation des propriétés physiques.

### Conclusion

En conclusion, les expériences réalisées dans cette étude indiquent que la spectroscopie Brillouin est une technique puissante pour évaluer l'impact des différents types d'irradiations. Sous les rayons X, les nanoparticules ZnO libèrent des électrons qui sont capables d'induire les différents défauts tels que « ionisation ou énergétiques », « radicaux libres et

## Chapitre 3 Etude de l'interaction élasto-optique dans les nanocomposites irradiés

---

insaturations ». Chacun d'entre eux participeront à l'augmentation de la polarisabilité du milieu. D'après la loi de Clausius Mosotti [86], il y aura une augmentation de l'indice de réfraction. Tous ces changements sont impliqués dans la diminution du coefficient élasto-optique  $P_{12}$ .

Si l'on prend en considération les résultats de rayonnement neutronique, pour lesquels le même comportement est observé, nous pouvons faire l'hypothèse que les défauts énergétiques sont les principales sources de la sensibilité de notre polymère irradié.

Dernièrement, cette étude prouve que la spectroscopie Brillouin est une voie prometteuse pour étudier les différents dommages (déplacement atomique, ionisation, défauts énergétiques) causés par l'interaction des radiations avec des matériaux utilisés par exemple dans l'industrie des MEMs.

# **Conclusion générale**

## Conclusion générale.

Nous avons dans un premier temps décrit les ondes élastiques dans les solides, leurs propriétés élastiques, la piézoélectricité et l'interaction élasto-optique. Puis Nous avons simulé deux types de transformateurs piézoélectriques, comme exemple de capteurs et actionneurs piézoélectriques.

Quant au deuxième chapitre, nous avons étudié la microscopie Brillouin basé sur le principe d'interféromètre de Fabry Pérot, et puis nous l'avons appliqué sur les capteurs à fibres optiques en mesurant la fréquence des phonons acoustiques des modes longitudinaux par microscopie Brillouin, ce qui nous a permis de montrer une variation vraisemblablement non linéaire. La variation est beaucoup plus importante pour la dose de 5.5GHz quel que soit la zone sondée. La différence intrinsèque entre la gaine et le cœur de la fibre est liée à la composition de la fibre, et notamment à la concentration en Germanium, mais également à la qualité de la silice utilisée. Il est par conséquent aisé de déduire que la concentration en Germanium joue un grand rôle dans la « résistance » aux irradiations. L'indice de réfraction diminue avec l'irradiation. Ceci a déjà été observé dans d'autres matériaux notamment des nanocomposites par l'équipe 405 de l'IJL. Les propriétés optiques sont très sensibles aux irradiations, nous avons tous en tête des polymères qui changent de couleur lorsqu'ils sont soumis aux rayonnements du soleil et plus spécifiquement aux UV (création de centres colorés, augmentation de l'absorption etc...). Une première étude de formation sur la spectroscopie Brillouin, nous a conduit à mettre en évidence le durcissement de fibre optique par implantation ionique.

Le troisième et dernier chapitre concerne l'étude des effets d'irradiation des copolymères P(VDF-TrFE) remplis des nanoparticules d'Oxyde de Zinc (ZnO) et d'Alumine ( $Al_2O_3$ ) . nous avons étudié la capacité de ces matériaux à supporter des environnements de rayonnement tels que rencontrés dans les centrales nucléaires. Nous avons présenté un état de l'art sur ces nanocomposites en décrivant le comportement de polymères sous rayonnement ionisant, la combinaison des propriétés mécaniques, électriques ou optiques. Enfin ce chapitre présente l'étude et la mesure de la constante élasto-optique en utilisant la microscopie Brillouin. Donc les expériences réalisées dans cette étude indiquent que la spectroscopie Brillouin est une technique puissante pour évaluer l'impact des différents types d'irradiations. Sous les rayons X, les nanoparticules ZnO libèrent des électrons qui sont capables d'induire les différents défauts tels que « ionisation ou énergétiques », « radicaux libres et insaturations ». Chacun d'entre eux participeront à l'augmentation de la polarisabilité du milieu.

Tous ces changements sont impliqués dans la diminution du coefficient élasto-optique  $P_{12}$ . Cette étude prouve que la spectroscopie Brillouin est une voie prometteuse pour étudier les différents dommages (déplacement atomique, ionisation, défauts énergétiques) causés par l'interaction des radiations avec des matériaux utilisés par exemple dans l'industrie des MEMs.



Les premières études sur les nanocomposites, suggèrent que la mesure combinée des propriétés élastiques et optiques permettra à terme d'identifier la nature des défauts induits par irradiation parmi les trois natures possibles identifiées : ionisation, déplacement atomique et énergétique. Elles soulignent que la spectroscopie Brillouin peut apporter un bon diagnostic des modifications chimiques et structurelles induites par les radiations.

L'interaction élasto-optique de la diffusion Brillouin nous a enfin permis de mettre en évidence un effet de protection voire d'auto-guérison du polymère piézoélectrique irradié grâce à la présence des nanoparticules de ZnO dans la matrice polymère. Ceci ouvre des champs d'application de ces matériaux comme capteur et actionneurs ou transformateur piézoélectrique notamment dans le domaine spatial.

# Liste des figures

## Liste des figures

Figure 1.1. Ondes de volume

Figure 1.2. Différents types des ondes de surface

Figure 1.3. Déformation d'un matériau solide

Figure 1.4. Définition de la piézoélectricité

Figure 1.5. Hiérarchie des classes cristallines

Figure 1.6. Effet de mirage

Figure 1.7. Effet de réseau

Figure 1.8. Effet de Bragg

Figure 1.9. Transformateur en mode radial

Figure 1.10. Schéma équivalent du transformateur piézoélectrique

Figure 1.11. Gain en tension en fonction de la fréquence avec différents capacités et nombre de couches primaires et secondaires

Figure 1.12. Gain en tension en fonction de la fréquence avec différentes capacités

Figure 1.13. Gain en tension en fonction de la fréquence pour différents capacités et nombre de couches

Figure 1.14. Gain en tension en fonction de la fréquence pour différentes valeurs de rayon et capacités

Figure 1.15 modes de polarisation des transformateurs piézoélectriques

Figure 1.16. Transformateur de type Rosen

Figure 1.17. Les caractéristiques utilisées pour concevoir le transformateur

Figure 1.18. Architecture d'un transformateur utilisant le logiciel Comsol

Figure 1.19. Simulation en 3D du déplacement ( $f=7.6^{\circ}5$  Hz)

Figure 1.20. Gain en tension dans le cas du transformateur en  $\text{LiNbO}_3$

Figure 1.21. Gain en tension en fonction de la fréquence

Figure 2.1. Spectre typique de la lumière diffusée

Figure 2.2. : Schéma de principe de la géométrie de la diffusion Brillouin

Figure 2.3. Emission d'un phonon à partir de deux photons par Electrostriction

Figure 2.4. Schéma explicatif du processus de génération de la diffusion Brillouin Stimulée

Figure 2.5. Schéma d'une expérience de diffusion de Brillouin

Figure 2.6. Schéma des différentes géométries de diffusion utilisées dans la spectroscopie Brillouin.

Figure 2.7. Interféromètre Fabry - Perot Multi Passe dans le "tandem" mise en œuvre par Sandercock (1980)

Figure 2.8. Spectre de transmission

Figure 2.9. Schéma de la configuration de la diffusion Brillouin

Figure 2.10. Schéma de principe d'une fibre optique

Figure 2.11. Coupe d'une fibre optique de type 4A3 IXFiber GeD3 10MGy

Figure 2.12. Exemple de spectre Brillouin obtenu après quelques minutes de scan de la fibre 4A3 IXFiber GeD3 10MGY

Figure 2.13. Coupe d'une fibre optique de type 4B3 IXFiber GeD3 5.5MGy

Figure 2.14. Fit gaussien du scan d'une fibre optique 4B3 IXFiber GeD3 5.5MGy

Figure 2.15. Coupe d'une fibre 4C3 IXFiber GeD3 3MGy avec une focalisation d'un laser (532nm)

Figure 2.16. Coupe d'une fibre 4A1 IXFiber GeD1 10MGy

Figure 2.17. Variation des fréquences (mesurées par spectroscopie Brillouin) de l'onde acoustique longitudinale en fonction de la position sur le diamètre de la fibre optique 4A3 IXfiber GeD3, 10MGy

Figure 2.18. Variation des fréquences (mesurées par spectroscopie Brillouin) de l'onde acoustique longitudinale en fonction de la position sur le diamètre de la fibre optique 4B3 IXfiber GeD3, 5.5 MGy

Figure 2.19. Variation des fréquences (mesurées par spectroscopie Brillouin) de l'onde acoustique longitudinale en fonction de la position sur le diamètre de la fibre optique 4C3 IXfiber GeD3, 3 MGy

Figure 2.20. Variation des fréquences (mesurées par spectroscopie Brillouin) de l'onde acoustique longitudinale en fonction de la position sur le diamètre de la fibre optique 4A3 IXfiber GeD1, 10 MGy

Figure 2.21. Variation de la fréquence des phonons acoustiques des modes longitudinaux en fonction de la dose d'irradiation (Gamma).

Figure 3.1. formule chimique du copolymère P(VDF-TrFE)

Figure 3.2. Distribution de sites d'ionisation

Figure 3.3 Exemple d'un polymère PP[re] : principaux défauts chimiques sous rayonnement

Figure 3.4. Mécanisme de formation de réticulation

Figure 3.5 mécanismes de formation d'insaturation

Figure 3.6 : Mise en place expérimentale de la spectroscopie Brillouin

Figure 3.7. Exemple du spectre obtenu sur le copolymère P(VDF-TrFE)/wt1% of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> irradié avec le neutron.

Figure 3.8. Exemple du spectre Brillouin obtenu sur le P(VDF-TrFE)/wt5% of ZnO irradié avec les rayons X

Figure 3.9. Variation de la constante élastique C<sub>11</sub> des nanocomposites Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/P(VDF-TrFE) en fonction de la dose

Figure 3.10. Variation de la constante élastique C<sub>11</sub> des nanocomposites ZnO/P(VDF-TrFE) en fonction de la dose

Figure 3.11. Variation du coefficient élasto-optique P<sub>12</sub> des nanocomposites ZnO/P(VDF-TrFE) en fonction de la dose

Figure 3.12. Variation du coefficient élasto-optique P<sub>12</sub> des nanocomposites ZnO/P(VDF-TrFE) en fonction de la dose

Figure 3.13. Evolution de la constant élastique C<sub>11</sub> en fonction du pourcentage des nanoparticules Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Figure 3.14. Evolution de la constant élastique C<sub>11</sub> en fonction du pourcentage des nanoparticules de ZnO

Figure 3.15. Variation du coefficient élasto-optique P<sub>12</sub> du nanocomposites en fonction de la concentration des nanoparticules Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Figure 3.16. Variation of du coefficient élasto-optique P<sub>12</sub> du nanocomposites en fonction de la concentration des nanoparticules ZnO

# Liste de tableaux

## Liste de tableaux

Tab1.1 Glossaire des grandeurs électriques, mécaniques et piézoélectriques

Tab1.2. Les coefficients tensoriels des composantes

Tab1.3. Différents modes de vibration

Tab1.4. Les paramètres du matériau PKI 802

Tab 2.1 : Expression des valeurs de  $\Lambda$  et  $\nu_{qL,qT}$

# Références bibliographiques



## Références bibliographiques

- [1] G. Rajan, Optical fiber Sensors, Advanced Techniques and applications, CRC Press, Taylor and Francis Group, Canada,2015.
- [2] J. Jerphagnon, The optics and photonics market, Industrial Processes, Optics Valley, 2004.
- [3] <http://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/materiaux-th11/ceramiques-42578210/materiaux-piezoelectriques-les-ceramiques-oxydes-a-base-de-metaux-de-transition-k740/>
- [4] S. Pissadakis and S. Selleri, Optofluidics, Sensors and Actuators in Microstructured Optical Fiber, Woodhead Publishing Series in Electronic and Optical Materials, Num 79, 2015.
- [5] X.Bao and L.Chen, Recent Progress in Distributed Fiber Optic Sensors, Sensors 2012, 12, 8601-8639; doi:10.3390/s120708601.
- [6] J.C.FESTINGER, Optical fiber sensors. Presentation, CND: surface methods, [www.techniques-ingenieur.fr](http://www.techniques-ingenieur.fr)
- [7] <http://www.andra.fr>
- [8] <https://www.andra.fr/andra-meusehautemarne/pages/fr/menu18/le-projet-cigeo-6875.html>
- [9] D. Rouxel, J. Eschbach, B. Vincent, R. Kouitat, Nanocomposites PMMA/SiO<sub>2</sub>: Brillouin scattering and tribological study, Int. J. Surface Science and Engineering, Vol. 4, Nos. 4/5/6, (2010) 322-336
- [10] Thomas Dehous, Génération et détection par couplage élasto-optique tridimensionnel de champs acoustiques picosecondes diffractés, thèse, université Bordeaux 1, 2007.
- [11] <http://www.larousse.fr/dictionnaires/francais/onde/56010>
- [12] <http://www.futura-sciences.com/sciences/definitions/physique-onde-electromagnetique-15066/>
- [13] [maxicours.com/onde mécanique](http://maxicours.com/onde_mecanique)
- [14] Eugène Dieulesaint, Daniel Royer, Ondes élastiques dans les solides. Tome 1, propagation libre et guidée,enseignement de la physique, MASSON,1996
- [15] [http://physique.chimie.pagesperso-orange.fr/TS\\_Physique/Physique\\_3\\_LES\\_ONDES\\_MECANIQUES\\_PROGRESSIVES.htm](http://physique.chimie.pagesperso-orange.fr/TS_Physique/Physique_3_LES_ONDES_MECANIQUES_PROGRESSIVES.htm)

- [16] Luiz Poffo, interaction acousto-optique en optique intégrée sur verre et applications, thèse, université Joseph Fourier Grenoble, 2007
- [17] onde de surface.com
- [18] JM Conoir, P.Rembert, Etude théorique et expérimentale de l'onde de Rayleigh, journal de physique II, colloque C5, supplément au journal de physique III, volume 4, mai 1994
- [19] <http://terminalf.scicog.fr/cfm/fich1.php?IDChercher=10077&numtable=&NomBase=etude-seismes.mdb>
- [20] T.MONNIER, Ondes de lamb dans les milieux stratifiées, thèse, université Pierre et Marie curie Paris, 2001
- [21] G.CAMBON, G.SAGNES, M.ROUZEYRE, amplification de l'onde de Bleustein-Gulyaev dans le cds photoconducteur, journal de physique, colloque 6, supplément au n° 11-12, tome 33, page 206, 1972
- [22] H.Djelouah, ondes élastiques dans les solides cours chapitre 8, 2011
- [23] [www.ipgp.fr/~cogne/pub/polys/pdf\\_Tecto/SVT7\\_Contraintes\\_et\\_rheologie.pdf](http://www.ipgp.fr/~cogne/pub/polys/pdf_Tecto/SVT7_Contraintes_et_rheologie.pdf)
- [24] O.Mareschal, étude d'un résonateur piézoélectrique à ondes acoustiques de volume en technologie film mince, thèse, université paris Est, 2011.
- [25] [orleans-tours.udppc.asso.fr/OT/wp.../Piezo-histoire-et-applications-Guy-Feuillard.pdf](http://orleans-tours.udppc.asso.fr/OT/wp.../Piezo-histoire-et-applications-Guy-Feuillard.pdf)
- [26] Y. N. Korkishko, V.A. Fedorov, Ion exchange in single crystals for integrated optics and optoelectronics, Cambridge International Science Publishing Press, 1999.
- [27] Mandzy N, Grulke E, and Druffel T. Powder Technology 2005;160(2):121-126.
- [28] T. Richard, « Diminution du coefficient de transmission acoustique d'une paroi à l'aide d'amortisseurs piézoélectriques semi-passifs », thèse de doctorat de laboratoire de Génie Electrique et Ferroélectricité de l'INSA, 2007
- [29] A.Parent, Apport des nouveaux matériaux piézoélectriques dans le domaine des micro-gyromètres vibrant, these, université Paris Sud, 2008.

- [30] A. Chérif, Optimisation du transformateur piézoélectrique. Application : contrôle semi-passive des vibrations, thèse, université Farhat Abbas Sétif , 2012
- [31] D.Royer, E.Dieulesaint, S.N.Lyle, Elastic waves in solids 2, Springer, tome 2, 2000
- [32] Léon Brillouin, A la Croisée des Ondes , R. Mosseri, Belin, 1998
- [33] R. Lucas,... Élasticité optique électromagnétique, Édition : Paris, C. Hermant , (1955).
- [34] P. Debye and F. W. Sears, On the Scattering of Light by Supersonic Waves, Proc Natl Acad Sci U S A. 1932 Jun; 18(6): 409–414.
- [35] R.Singh, C.V Raman and the American scientist, Indian journal of history science, 38.2, 153-175, 2003.
- [36] Sinocera. Typical values of standard piezoelectric ceramic materials. On [http://www.sinocera.net/en/piezo\\_material.asp](http://www.sinocera.net/en/piezo_material.asp).
- [37] S. Speziale and H. Marquardt, Brillouin Scattering and its application in Geosciences, Review in Mineralogy and Geochemistry, vol.78 pp.543-603, 2014.
- [38] Y. Sikali-Mamdem, “Mesures réparties par fibre optique. Séparation de l'influence température et déformations sur la diffusion Brillouin », Thèse de doctorat, Université Telecom Paris Tech, 10/09/2012.
- [39] B. Vigolo, B.Vincent, J. Eschbach, P. Bourson, J.F. Mareche, E. Mc Rae, A. Muller, A. Soldatov, J.M. Hiver, A. Dahoun, D. Rouxel, Journal of Physical Chemistry C 113 (41), 17648-17654 (4.2), (2009)
- [40] Nizzoli F, Sandercock JR (1990). Surface Brillouin scattering from phonons. In: Dynamical Properties of Solids. Horton GK, Maradudin AA (eds) North-Holland, Amsterdam, p 281-335
- [41]: J.K. Krüger et al. “Mechanical Interphases In Epoxies As Seen By Non-Destructive High Performance Brillouin Microscopy”, in Adhesion - Current Research and Applications, ed. by Wulff Possart, WileyVerlag, Weinheim (2005) 125-142
- [42]: L. Le Brizoual et al. “Mapping of microwave-induced phonons by  $\mu$ -Brillouin spectroscopy : Hypersons in ZnO on silicon”, J. Phys. D: Appl. Phys. 41 (10) (2008) 105502.
- [43]: G. Maurice et al., “Investigation of Elastic Constants of Polymer/Nanoparticles Composites using the Brillouin Spectroscopy and the Mechanical Homogenization Modeling”, Polymer Engineering and Science, 13 DEC 2012. DOI: 10.1002/pen.23397.
- [44]: B. Vincent et al. “Imaging of Microwave-Induced Acoustic Fields in LiNbO3 by High-Performance Brillouin Microscopy”, J. of Phys. D: Appl. Phys., 38 2026-2030 (2005)

- [45] Gehrsitz S, Sigg H, Siegwart H, Krieger M, Heine C, Morf R, Reinhart FK, Martin W, Rudigier H (1997) Tandem triple-pass Fabry-Perot interferometer for applications in the near infrared. *ApplOpt* 36:5355- 5361
- [46] Durvasula LN, Gammon RW (1978) Pressure-scanned three-pass Fabry-Perot interferometer. *ApplOptics* 17:3298-3303
- [47] Speziale S, Duffy TS (2002) Single-crystal elastic constants of fluorite (CaF<sub>2</sub>) to 9.3 GPa. *PhysChem Miner* 29:465-472
- [48] U.Melashvili, G.Lagundaridze, M.Tsikarishvili, Controlled structures with Electromechanical and fiber optical Sensors, nova science publishers 2009
- [49] Z.Fng, K.K.Chin, R. Qu, H. Cai, Fundamentals of optical Fibers Sensors, First edition, John Wiley and Sons publisher, 2012
- [50] Ginu Rajan, Optical fiber sensors, CRC Press, Taylor and Francis Group 2009
- [51] S. Pissadakis, S.Selleri, Optofluids, sensors and actuators optical fibers, Woodhead publishing, number 79, 2015
- [52]: J.BLANC, Fiber Optic Measurement, [http://www.giacintec.com/cariboost\\_files/Mesures\\_20par\\_20fibres\\_20optiques.pdf](http://www.giacintec.com/cariboost_files/Mesures_20par_20fibres_20optiques.pdf)
- [53]: R. Sporcken, Optical Fiber, Physics Remote transmissions, 2004
- [54]: D. Di Francesca and al, X-Ray irradiation effects on fluorine-doped germanosilicate optical fibers, 2014 Optical Society of America.
- [55]: S. Girard and al, Contrôle des effets des radiations dans les fibres optiques phosphosilicates, Chocs avancées 2010.
- [56] : S. Girard, et al., “Radiation Effects on Silica-based Optical Fibers: Recent Advances and Future Challenges”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol.60, n°3, pp. 2015 - 2036, 2013.
- [57] S. Delepine-Lesoille, et al., “Industrial Qualification Process for Optical Fibers Distributed Strain and Temperature Sensing in Nuclear Waste Repositories,” *Journal of Sensors*, vol. 2012, Article ID 369375, 9 pages, 2012.
- [58]: H. Henschel and al, Fiber optic radiation Sensing systems for TESLa, Tesla report No.200-26, 2000.
- [59] : G. Rajan, Optical fiber Sensors, Advanced Techniques and applications, CRC Press, Taylor and Francis Group, Canada, 2015
- [60] V.S.Nguyen, Elaboration de films nanocomposites hybrides P(VDF-TrFE)/nanocristaux, et intégration dans des dispositifs microstructurés, thèse, université de Lorraine, 2012

- [61] Nguyen VS, Hadji R, Vincent B, Rouxel D, Sarry F, and Bauer F. P(VDF-TrFE)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> piezoelectric nanocomposite thin films. 2010 IEEE International Symposium on the applications of Ferroelectrics (ISAF) Edinburgh, United Kingdom, 2010. pp. 1-4.
- [62] Jagadish, C. and S.J. Pearton, Zinc oxide bulk, thin films and nanostructures: processing, properties and applications 2006: Elsevier.
- [63] Klingshirn, C., ZnO: Material, Physics and Applications. ChemPhysChem, 2007. 8(6): p. 782-803.
- [64] R. Hadji, V.S. Nguyen, B.Vincent, D.Rouxel, iee transactions on ultrasonics ferroelectrics and frequency control, p163-167 (2012)
- [65] V.S.Nguyen, D.Rouxel, B.Vincent, L.Badie, F.Domingues Dos Santos, E.Lamouroux, Y.Fort, Influence of size and surface functionalization of ZnO nanoparticles on the morphology and properties of P(VDF-TrFE) nanocomposites films, extrait d'une these, 2012
- [66] Lu, Y., N.W. Emanetoglu, and Y. Chen, ZnO Piezoelectric Devices, in Zinc Oxide Bulk, Thin Films and Nanostructures, J. Chennupati and P. Stephen, Editors. 2006, Elsevier Science Ltd: Oxford. p. 443-489.
- [67] Morkoç, H. and Ü. Özgür, Zinc Oxide: Fundamentals, Materials and Device Technology, 2009.
- [68] Anzlovar, A., Z.C. Orel, and M. Zigon, SUB MICROMETER AND NANO ZnO AS FILLER IN PMMA MATERIALS. Materiali in Tehnologije, 2011. 45(3): p. 269-274.
- [69] Yang, C.J., et al., Solid-Phase Photocatalytic Degradation of Waste Plastics. Progress in Chemistry, 2011. 23(5): p. 874-879.
- [70] Loh, K.J. and D. Chang, Zinc oxide nanoparticle-polymeric thin films for dynamic strain sensing. Journal of Materials Science, 2010. 46(1): p. 228-237
- [71] Ozgur,U, and Al, A comprehensive review of ZnO materials and devices. Journal of Applied Physics, 2005. 98(4): p. 041301-041301.
- [72] Loh, K.J. and D. Chang, Zinc oxide nanoparticle-polymeric thin films for dynamic strain sensing. Journal of Materials Science, 2010. 46(1): p. 228-237.
- [73] Hector A. C. Gil, Roberto M. Fariab and Yoshio Kawano, Structural modifications of vinylidene fluoridetrifluoroethylene (70-30) copolymer induced by X-ray irradiation, Polymer Degradation and Stability 61,265-273, 1998
- [74] B. Daudin, J. F. Legrand, and F. Macchi, Microscopic and macroscopic effects of electron irradiation on ferroelectric poly(vinylidene fluoride-Trfe) copolymers, Published by the AIP Publishing LLC, J. Appl. Phys. 70, 4037, 1991

- [75] : Tim R. Dargaville, Julie M. Elliott and Mathew Celina, Evaluation of Piezoelectric PVDF Polymers for Use in Space Environments. III. Comparison of the Effects of Vacuum UV and Gamma Radiation, *Journal of Polymer Science: Part B: Polymer Physics*, Vol. 44, 3253–3264 (2006)
- [76] : S. R. Allayarov, Yu. A. Ol'khov, I. N. Shtefan, K. I. Muntele, D. Ila, and D. A. Dixon, Effect of Accelerated Protons on the Molecular Topological Structure and Thermal Stability of Poly(vinylidene fluoride), *High Energy Chemistry*, Vol. 46, No. 2, pp. 84–90 Pleiades Publishing, Ltd., 2012
- [77] : T. Y. Lam, S. T. Lau, C. Chao, H. L. Chan, C. L. Choy et al, Characterization of proton irradiated copolymer thin films for microelectromechanical system applications, *Appl. Phys. Lett.* 90, 043511, 2007
- [78] : K. H. Lam', H. L. W. Chan', C. L. Choy', E. Z. Luo' and I. H. Wilson, Studies of Proton Irradiated 0.9PMN-0.1PT/P(VDF-TrFE) 0-3 Composites, 0-7803-7414-2/02/\$17.00 0 IEEE, 2002
- [79] : Yiwen Tang, Dahai Wang, Shishang Guo, Xing-Zhong Zhao, Effect of  $\gamma$ -ray radiation on structure of P(VDF/TrFE) 80/20 mol% copolymers, *European Polymer Journal* 37 471-474, 2001
- [80] : S.U. Adikary, H.L.W. Chan, C.L. Choy, B. Sundaravel, I.H. Wilson, Characterisation of proton irradiated Ba<sub>0.65</sub>Sr<sub>0.35</sub>TiO<sub>3</sub>/P(VDF-TrFE) ceramic-polymer composites, *Composites Science and Technology* 62,2161–2167, 2002
- [81] : Ajay Pal Indoli a and M. S. Gaur, Optical properties of solution grown PVDF-ZnO nanocomposite thin films, Springer Science+Business Media Dordrecht, 2012
- [82] : Hongxia Zhao and Robert K.Y. Li, A study on the photo-degradation of zinc oxide (ZnO) filled polypropylene nanocomposites, *Polymer* 47 3207–3217, 2006
- [83] : Vesna Borjanović, Lahorija Bistričić, Lara Mikac, Gary E. McGuire, Ivana Zamboni, Milko Jakšić and Olga Shenderova, Polymer nanocomposites with improved resistance to ionizing radiation, *Journal of Vacuum Science & Technology B > Volume 30 Number 4*, 2012
- [84] : Zhong-Yang Cheng ; Tian-Bing Xu ; Vivek Bharti ; Tian X. Mai ; Qi Ming Zhang ; Thomas Ramotowski ; Robert Y. Ting, Characterization of electrostrictive P(VDF-TrFE) copolymer films for high frequency and high load applications, SPIE 3987, Smart Structures and Materials 2000: Electroactive Polymer Actuators and Devices (EAPAD), 2000
- [85] B. Hilczer, J. Kulek, *Ferroelectrics* 202, 275 (1997)
- [86] D. Ion, V. Manoliu, A. Stefan, S. Ilina, National Institute for Aerospace Research and Development Web, 2014

# **Production scientifique**

## Production scientifique

- 1- S.Rouabah, B.Vincent, A.Chaabi, D.Rouxel, S.Girard, “ Brillouin Spectroscopy Study of the radiation resistance of ferroelectric copolymer filled with  $Al_2O_3$  and ZnO nanoparticles ,”EPJ AP European Journal of Applied Physics , 77., Issue N°5, Pages 30701p1-30701p6, march 31,2017.
- 2- T.Mordjana, A. Chaabi, S.Rouabah, “VHDL-AMS and PSPICE modeling of ultrasonic piezoelectric transducer for biological mediums application”, IEEE conference Publications, Pages 523-528, 2014
- 3- S.Rouabah, B.Vincent, A. Chaabi, D.Rouxel, S.Girard, « Neutron radiation resistance of ferroelectric copolymer filled with  $Al_2O_3$  and ZnO nanoparticles », Nanotech France Paris International conference and Exhibitions, 01-03 June 2016, Paris.
- 4- S.Rouabah, A.Chaabi, S.Zemouli; “Modeling and Simulation of Piezoelectric Transformer with Comsol multiphysics”, The 2<sup>nd</sup> international conference of electronics, electrotechnics and automatism, CIEEA13, Oran, Algeria, November 26-27, 2013.
- 5- S. Rouabah, A. Chaabi, T. Mordjana; “ Modeling and Simulation of Radial Piezoelectric transducer”, Nanotech MEET Tunisia 2014 Joint International Conferences and Exhibitions. 24- 26April 2014, Le Royal Hotel Hammamet - Tunisia.
- 6- S. Rouabah, A.Chaabi; "Simulation of Piezoelectric Nanofibers for Harvesting Energy Applications", conference COMSOL Cambridge 2014; Churchill College, Cambridge; UK, September 17-19, 2014.
- 7- S.Zemouli, S.Rouabah, A.Chaabi; “Improving antenna’s performances by using metamaterial”, The 1<sup>st</sup> international Conference on Nanoelectronics, Communications and Renewable Energy (ICNCRE’13), Jijel, Algeria, September, 22-23,2013.
- 8- T. Mordjana, A.Chaabi, S.Rouabah,"VHDL-AMS and PSPICE modeling of ultrasonic piezoelectric transducer for biological mediums application", Advanced Technologies for Signal and Image Processing (ATSIP), 2014 1st International Conference , Tunisia, March,17-19,2014.
- 9- S.Rouabah, A.Chaabi, « modélisation des transformateurs piézoélectriques »,2<sup>eme</sup> journée des doctorants du LHS, le 8 Décembre 2012, Constantine, Algérie.



# **Annexes**

## Annexe 1 Présentation du laboratoire

### 1. Présentation de l'Institut Jean Lamour (Extrait du site Web d'IJL)

L'institut Jean Lamour (IJL) a été fondé par le regroupement de cinq UMR qui ont fusionné le 1er janvier 2009: le LPM, le LPMIA, le LCSM, le LSGS et le LSG2M<sup>1</sup>. C'est aujourd'hui une nouvelle Unité Mixte de Recherche CNRS (n° 7198) qui associe les trois universités scientifiques de Lorraine au CNRS. Forte de 450 personnes environ, dont 150 chercheurs et enseignants-chercheurs, 90 personnels techniques et administratifs, 150 doctorants, et 60 post-docs, visiteurs de longue durée, stagiaires et personnel du CRITT Métall2T, cette UMR est organisée autour de trois départements scientifiques (soit 20 équipes au total) et 8 centres de compétences (CC). Elle s'installera bientôt dans un nouvel immeuble de 16880 m<sup>2</sup> où elle abritera également une 'maison des masters' avec 220 étudiants. Elle voisinera sur le campus ARTEM-Molitor l'École des Mines de Nancy dont elle constitue l'un des laboratoires de recherche tout en maintenant son rattachement à la Faculté des Sciences et Techniques de l'UHP.

Les finalités scientifiques des départements sur le long terme se retrouvent dans leurs intitulés :

- Physique de la Matière et des Matériaux (P2M),
- Chimie et Physique des Solides et des Surfaces (CP2S),
- Science et Ingénierie des Matériaux et Métallurgie (SI2M),
- Nanomatériaux, Electronique Et Vivant (N2EV).

Les compétences techniques de l'IJL, portées par les centres de compétences couvrent une vaste gamme de méthodes et techniques allant de la diffraction des rayons X, des microscopies et sondes électroniques, de la calorimétrie, aux ateliers de conception et de fabrication mécanique, électronique et automatique d'une part, aux salles blanches destinées aux micro- et nano dispositifs d'autre part. Une place éminente est également réservée au sein du CC-Valorisation-Innovation-Transfert à l'accueil d'équipes de chercheurs industriels et de membres d'autres communautés universitaires pour développer en commun des projets d'intérêt industriel ou sociétal, accélérant ainsi notablement le cycle qui va de la découverte de base au produit commercial.

Ainsi, les secteurs dans lesquels l'IJL affiche ses capacités les plus marquées sont :

- les sciences et ingénierie des surfaces, des films et des revêtements,

---

<sup>1</sup> Laboratoire de Physique des Matériaux, Laboratoire de Physique des Milieux Ionisés et Applications, Laboratoire de Chimie du Solide minéral, Laboratoire de Sciences et Génie des surfaces, Laboratoire de Sciences et Génie des matériaux et de Métallurgie.

- les nanomatériaux innovants,
- la métallurgie,
- la physique des plasmas.

Enfin, l'ensemble de la recherche de l'IJL est coordonné avec l'enseignement que dispensent ses membres via d'une part un grand nombre de doctorants, post-docs et stagiaires présents dans ses murs et d'autre part une implication de premier rang dans les formations des écoles d'ingénieurs et des facultés des universités lorraines.

### **I.1. Département N2EV**

Le département N2EV effectue ses recherches sur :

- les nanomatériaux innovants,
- matériaux bio-sourcés,
- la conception de systèmes de mesure et d'architectures électroniques,

Les équipes qui constituent ce département sont :

- 401 : Dolphin - Nanomatériaux pour la vie et développement responsable,
- 402 : Matériaux Bio-Sourcés,
- 404 : Micro et Nanomécanique pour le Vivant,
- **405 : Micro et nanosystèmes,**
- 406 : Mesures et Architectures Electroniques.

L'objectif des équipes est de conférer des propriétés nouvelles aux matériaux en les fonctionnalisant aux niveaux mécanique et électronique. Ce département associe des compétences allant du nanomatériau jusqu'au micro et nanosystèmes électronique.

Les études effectuées sont principalement destinées à être appliquées aux secteurs de l'énergie, de l'environnement et de la santé.

#### ***I.2. Equipe 405 : Micro- et nanosystèmes***

Cette équipe fabrique, depuis plus d'une dizaine d'année (1998), par procédé plasma des matériaux piézoélectrique polycristallins qu'elle utilise dans des micros et maintenant nano-système. Cette équipe est notamment spécialisée dans les dispositifs à ondes acoustiques

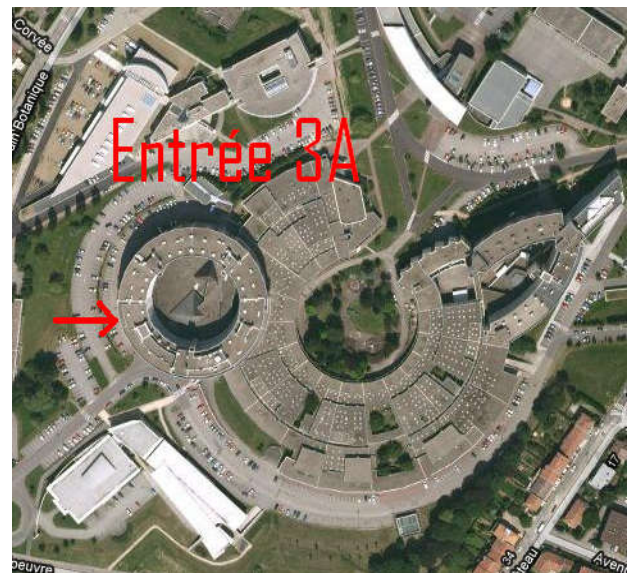
de surface : « SAW » (Surface AcousticWave) et des dispositifs à ondes acoustiques de volume : « BAW » (BAcousticWave). Ces dispositifs peuvent être utilisés pour réaliser des capteurs de gaz, pression, température ainsi que des filtres.

Une partie du travail de l'équipe est consacrée à la recherche et l'exploration de nouveaux matériaux piézoélectriques présentant des propriétés différentes ou améliorées par rapport aux matériaux déjà utilisés par l'équipe. Ce travail d'exploration permet d'élargir le champ des applications possibles des systèmes fabriqués au département P2M. Les composites piézoélectriques pourraient répondre à cette demande de par leurs propriétés mécaniques bien spécifiques.

### ***1.3. Localisation du laboratoire***

Le laboratoire P2M se situe sur l'Université Henri Poincaré de Vandoeuvre Lè

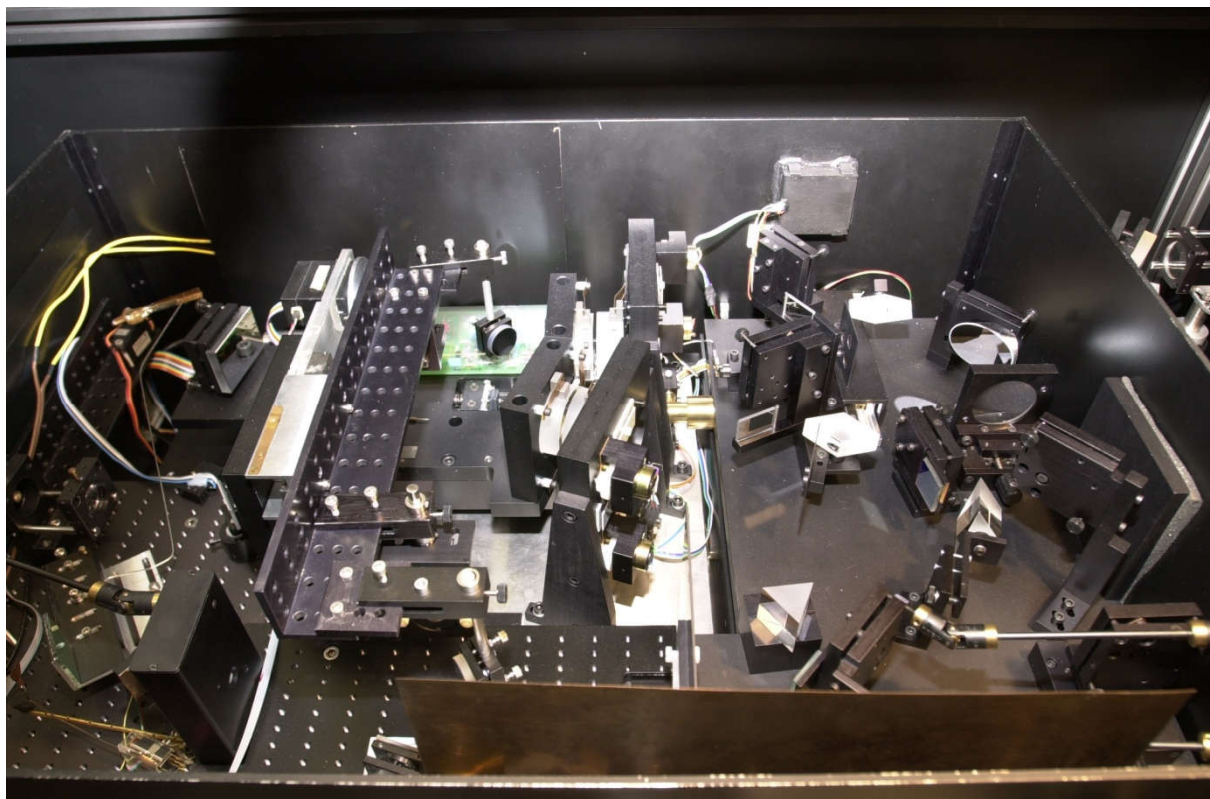
Notre section se situe dans les bâtiments du 2<sup>ème</sup> cycle au niveau de l'entrée 3A.



**Fig. 1 : vue aérienne googlemap du 2<sup>ème</sup> cycle de l'UHP.**

## Annexe 2

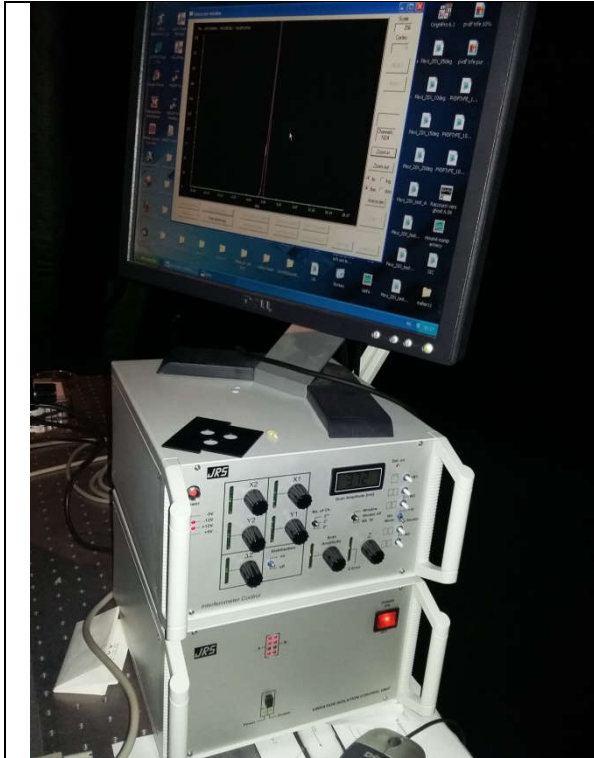
La spectroscopie utilisée dans le laboratoire micro et nano systèmes



Interféromètre Fabry pérot



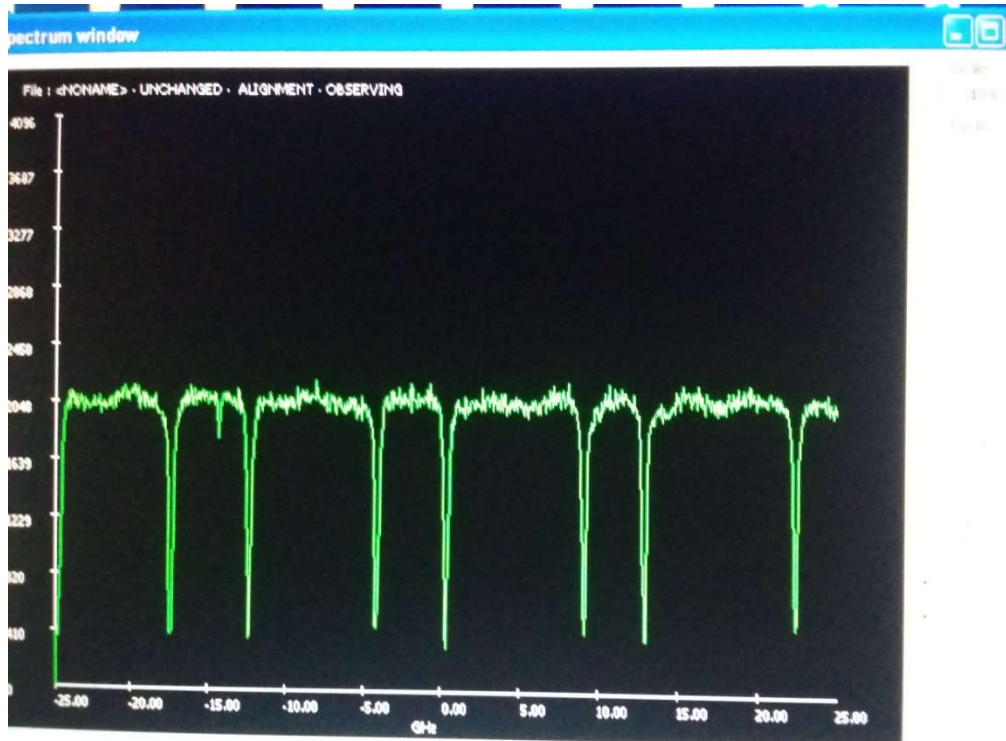




multichannel analyser

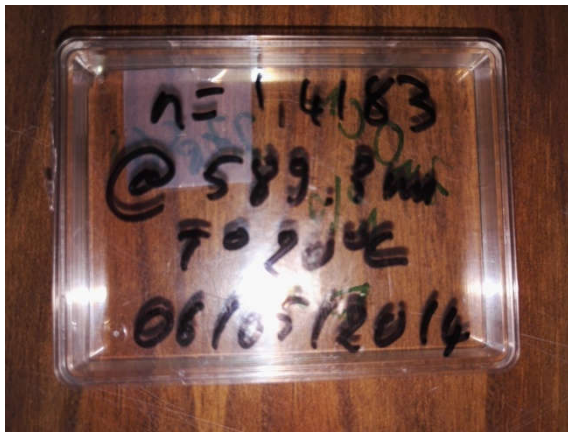


Le microscope pour mettre nos échantillons

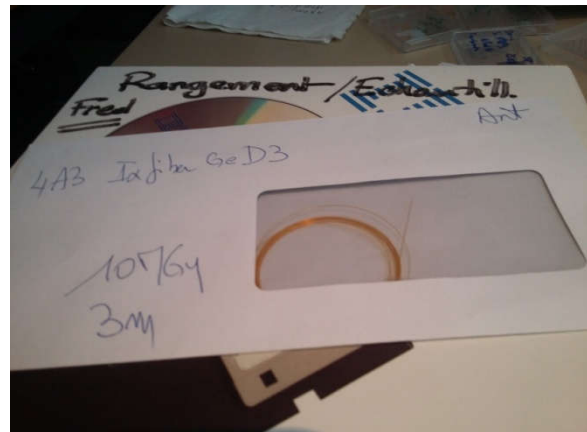


Spectre de transmission des deux interféromètres et la transmission totale du système tandem de Fabry- Perot.

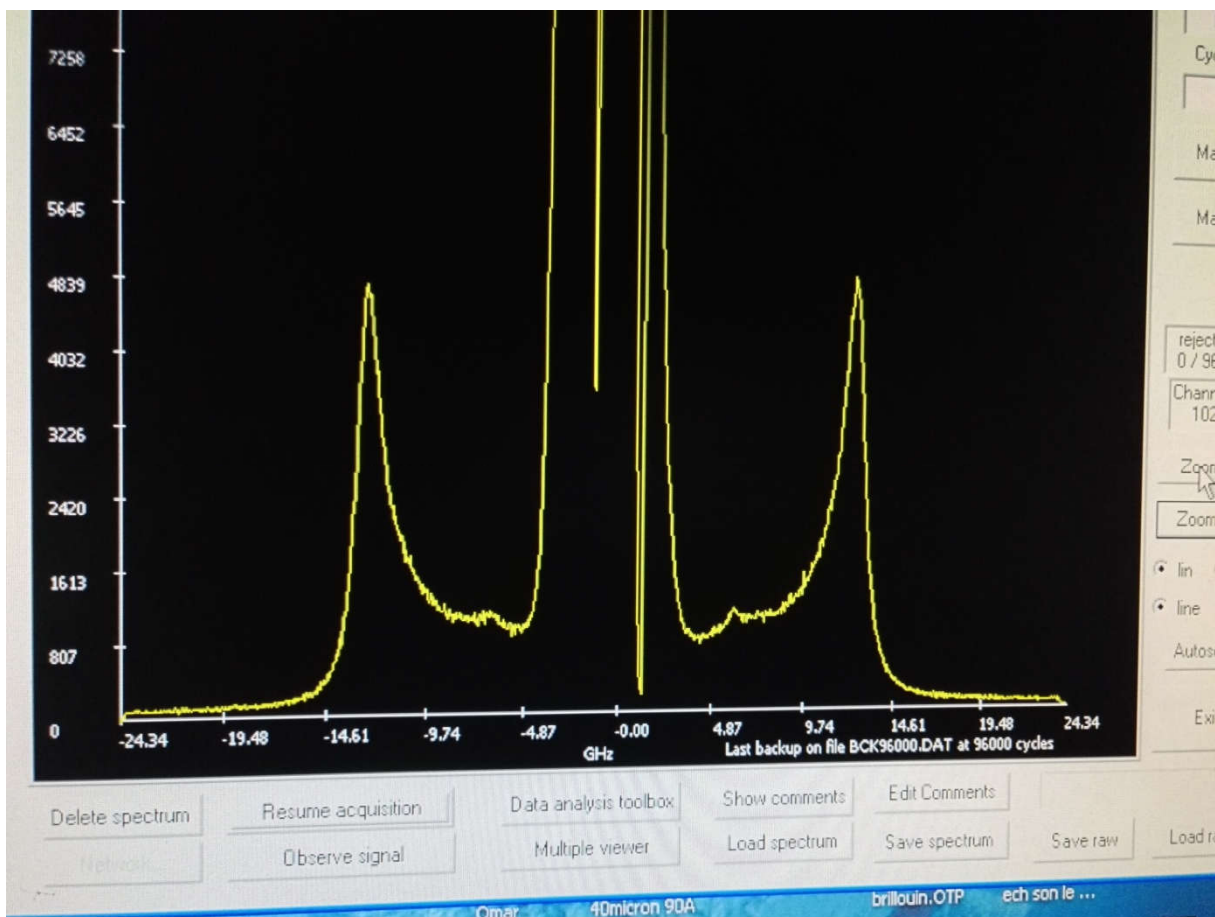
Exemple d'un échantillon P(VDF-TrFE)



Exemple d'une fibre IXfiber GeD3



Après quelque minute d'acquisition, Nous obtenons le spectre Brillouin à partir d'analyseur multicanal



**Résumé**  
**Abstract**  
ملخص



## **Etude de l'interaction élasto-optique et son application dans la conception des capteurs**

### **Résumé :**

Notre travail de recherche porte sur les interactions élasto-optiques sur la matière qui, comme leur nom l'indique, sont les interactions entre la lumière et les ondes acoustiques. La technique utilisée dans ce travail est la spectroscopie Brillouin ; cette dernière est une très bonne technique qui nous permet de déterminer la fréquence des ondes acoustiques dans différents matériaux. En effet sa haute sensibilité permet la détection des phonons excités thermiquement. Parmi les applications courantes à la mesure des ondes acoustiques, nous avons axé notre travail sur des microsystemes tels que les nanocomposites et sur des échantillons de faibles dimensions comme la section de la fibre optique.

## **Study of elasto-optic interaction and its application in the design of sensors**

### **Abstract :**

Our research work is titled on elasto-optical interactions on the matter which, as the name suggests, these are the interaction between light and sound waves. The technique used in this work is the Brillouin spectroscopy. This is a very good technique that allows us to determine the frequency of the sound waves in different materials due to its high sensitivity for the detection of thermally excited phonons. Among the common applications in the measurement of acoustic waves on Microsystems such as the nanocomposites or samples of small dimensions as the section of optical fiber.

## دراسة التفاعل المرنة الضوئية وتطبيقها في تصميم أجهزة الاستشعار

ملخص:

العمل البحثي ينص عن التفاعلات الضوئية-المرنة المتعلقة بالمواد وكما يوحي اسمها، هي عبارة عن التفاعلات بين الضوء والموجات الصوتية. الأسلوب المستخدم في هذا العمل هو التحليل الطيفي بريوان، هو أسلوب جيد جداً يسمح لنا بتحديد تواتر الموجات الصوتية في المواد المختلفة بسبب حساسية عالية للكشف عن الفونونات متحمس حرارياً. من بين التطبيقات الشائعة في قياس الموجات الصوتية على Microsystems مثل بمركب متناهي في الصغر (nanocomposites) أو عينات من أبعاد صغيرة كالجزيء الألياف الضوئية.