

numero d'ordre 425

50376
1989
283

50376
1989
283

THESE

présentée à

L'Université des Sciences et Techniques de Lille

pour obtenir le grade de

Docteur en Sciences des Matériaux

par

Marie-Danièle DELODDERE

Ingénieur ISEN



**CONTRIBUTION A LA CARACTERISATION DES
MATERIAUX PIEZOPLASTIQUES**

**ETUDE DE LEURS PROPRIETES ELASTIQUES,
DIELECTRIQUES ET PIEZOELECTRIQUES**

Soutenue le 10 Novembre 1989 devant la commission d'examen :

Président	Monsieur F. RIETSCH
Rapporteurs	Monsieur F. BAUER Monsieur Ch. BRUNEEL
Examineurs	Monsieur J.N. DECARPIGNY Monsieur D. GUYOMAR Madame M. RICHARD Monsieur O.B. WILSON

*Cette thèse a été préparée dans le Laboratoire
d'Acoustique de l'ISEN
(Institut Supérieur d'Electronique du Nord).*

*Elle a reçu un soutien financier
de la Fondation Norbert Ségard.*

*Ce travail a été effectué pour le GERDSM
(Groupe d'Etude et de Recherche en Détection Sous-Marine)
et financé par la DCAN
(Direction des Constructions et Armes Navales).*

Arrivée au terme d'un long voyage, il m'est agréable de remercier mes compagnons de route pour ce temps passé ensemble.

J.N. DECARPIGNY était le guide. Aussi bien par temps de neige que par brouillard, sur les hauteurs que les plaines, il s'est montré confiant sur le terme de ce voyage. Le voyage est terminé et je le remercie de sa ténacité.

Je remercie Monsieur le Professeur F. RIETSCH d'avoir accepté la présidence de ce jury. J'exprime ma reconnaissance à Messieurs les professeurs F. BAUER et Ch. BRUNEEL qui ont jugé de la qualité de ce récit, ainsi que Monsieur D. GUYOMAR, que ce voyage intéressait.

I am pleased to thank Professor O.B. WILSON for his participation on my Jury. Even if the time we have spent working together was short, I have appreciated his openness and warm personality.

C'est pour raconter à Madame Richard, ingénieur au GERDSM, les découvertes que j'ai pu faire lors de ce périple que j'écris cette histoire. J'espère que la lecture lui en sera agréable, et que de mes expériences, elle pourra tirer matière à nouvelles aventures.

L'Institut Supérieur d'Electronique du Nord a affrété le véhicule sur lequel j'ai avancé. Je remercie ses Directeurs, Messieurs VANDECANDELAERE et ASTIER, qui n'ont pas eu froid aux yeux, et que l'aventure n'effrayait pas.

H. TOURNEUR s'est souvent occupé des cartes et des guides, trouvant des chemins de traverse là où la route s'arrêtait, assurant le contact avec les habitants des pays que nous traversions. Je l'en remercie.

R. BOSSUT, B. DUBUS, J.C. DEBUS, B. HAMONIC n'habitaient pas le même pays que Ch. GRANGER, P. BIGOTTE, G. HAW ou J.Ph. NYS, mais les uns et les autres m'ont permis de traverser leurs pays sans encombre. Les premiers m'ont aidée à dialoguer avec le Dieu ATILA et à le rendre clément. Les seconds, soucieux de promouvoir l'image de marque du pays "EXPERIENCE", m'ont aidée tout au long du parcours, s'occupant des détails matériels tels que prises de vue des paysages traversés, et m'aidant de leurs conseils là où le terrain était meuble.

La réalisation matérielle de ce récit est un travail en commun. Les illustrations sont signées de Monique FAVRE. La mise en page est de Cécile DELODDERE, le matériel de traitement de texte a été mis gracieusement à notre disposition par Marie-Thérèse LEMAN, qui nous a fourni une assistance technique efficace et souriante.

<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>I. PROPRIETES DES MATERIAUX PIEZOELECTRIQUES</u>	4
I.1. PIEZOELECTRICITE, PYROELECTRICITE ET FERROELECTRICITE.....	5
I.1.1. Introduction.....	5
I.1.2. Relations constitutives de la piézoélectricité et de la pyroélectricité.....	6
I.2. COMPORTEMENT VISCOELASTIQUE DES POLYMERES.....	11
I.2.1. Introduction.....	11
I.2.2. Expériences caractéristiques.....	13
I.2.2.1. Les analyses temporelles.....	13
I.2.2.2. Les analyses harmoniques.....	14
I.2.3. Modélisations phénoménologiques d'un comportement viscoélastique.....	15
I.2.3.1. Les analogies mécaniques.....	15
I.2.3.2. Les modèles à constantes de relaxation.....	18
I.2.4. Caractéristiques d'un polymère.....	19
I.3. LES MATERIAUX PIEZOELECTRIQUES ACTUELS.....	24
I.3.1. Les céramiques piézoélectriques.....	24
I.3.2. Le PVDF et les polymères piézoélectriques.....	24
I.3.3. Les composites piézoélectriques.....	29
<u>II. CARACTERISATIONS DE TYPE ELECTRIQUE. METHODES DE MESURE GENERALES</u> ..	33
II.1. MESURE DU TENSEUR DES PERMITTIVITES DIELECTRIQUES.....	34
II.1.1. Mesure de ϵ_{33}	34
II.1.2. Mesure de ϵ_{11} et de ϵ_{22}	36
II.2. MESURE DES RESONANCES ELECTRIQUES.....	41
II.2.1. Caractérisation des résonances électriques.....	42
II.2.2. Caractérisation électrique des matériaux à pertes.....	47
I.2.2.1. Les modes fondamentaux à propagation..... unidimensionnelle dans le plan.....	47
I.2.2.2. Méthodologie de mesure et d'extraction des coefficients.....	52
I.2.2.3. Présentation des résultats.....	55

<u>III. CARACTERISATIONS DE TYPE ELECTRIQUE. METHODES DE MESURE SPECIFIQUES</u>	62
III.1. CARACTERISATION DU MATERIAU A L'AIDE DE PEIGNES INTERDIGITES	63
III.1.1. Le modèle analytique.....	63
III.1.2. Extraction des coefficients.....	65
III.1.3. Préparation des éprouvettes.....	67
III.1.4. Résultats et interprétation.....	69
III.2. CARACTERISATION DE MODES DE TYPE EPAISSEUR.....	71
III.2.1 Technique d'ajustage.....	73
III.2.2. Résultats.....	77
III.3. DETERMINATION DU COEFFICIENT DE POISSON.....	81
III.3.1. Modélisations.....	82
III.3.2. Mesures et résultats.....	88
III.4. ETUDE DU CISAILLEMENT DANS LE PVDF.....	90
III.4.1. Etude à l'aide d'électrodes segmentées.....	91
III.4.2. Exploitation de la mesure des permittivités.....	93
III.4.2.1. Modélisation de la structure sans perte.....	93
III.4.2.2. Etude harmonique du système.....	95
III.4.2.3. Résultats expérimentaux.....	98
 <u>IV. CARACTERISATIONS DE TYPE MECANIQUE</u>	 101
IV.1. MESURES EN ELONGATION.....	102
IV.1.1. Modèle d'ondes planes.....	102
IV.1.2. Mesure sur un barreau dont l'extrémité est libre.....	103
IV.1.3. Mesures avec un pendule pesant.....	104
IV.1.4. Mesures sur un barreau dont l'extrémité est encastree.	109
IV.1.4.1. Calcul de l'impédance mécanique.....	109
IV.1.4.2. Influence de la masse M_2	110
IV.1.4.3. Influence de la masse M_1	110
IV.1.4.4. Réponse piézoélectrique.....	111
IV.1.4.5. Mesure et extraction des paramètres.....	114
IV.2. MESURES EN FLEXION.....	119
IV.2.1. Mesure par interférométrie homodyne pour un barreau encastree aux extrémités.....	120
IV.2.2. Réponse piézoélectrique résiduelle d'un barreau dont une extrémité est encastree.....	120
IV.2.3. Réponse piézoélectrique résiduelle d'un barreau libre.	123

<u>V. CONCLUSION</u>	124
V.1.RESUME DES METHODES ETUDIEES.....	125
V.2.COMPARAISON DES RESULTATS OBTENUS AVEC CEUX DE LA LITTERATURE	128
V.3.RESULTATS SUR LA TRANSITION VITREUSE DANS LE PVDF.....	128
V.3.1. La permittivité diélectrique.....	128
V.3.2. Le coefficient de rigidité C_{33}^D	131
V.4.CONCLUSION GENERALE.....	131
<u>REFERENCES</u>	133
<u>ANNEXE A</u> : Calcul du mode de longueur d'une plaque piézoélectrique rectangulaire.....	141
<u>ANNEXE B</u> : Exploitation de la résonance électrique d'une éprouvette...	149
<u>ANNEXE C</u> : Modèle analytique pour les éprouvettes à peignes interdigités.....	152
<u>ANNEXE D</u> : Mesure des constantes caractéristiques d'une céramique souple.....	156
<u>ANNEXE E</u> : Etude du mode de largeur.....	162

INTRODUCTION

Si la piézoélectricité naturelle de nombreux corps est connue depuis la fin du siècle dernier, c'est en 1945 que furent produites les premières céramiques piézoélectriques, en titanate de baryum [1,2], qui allaient permettre la construction des transducteurs piézoélectriques modernes utilisés en acoustique sous-marine. Depuis lors, les céramiques à base de titano-zirconate de plomb [3] constituent les éléments actifs de la plupart des transducteurs. Toutefois, en 1969, H. KAWAI [4] a mis en évidence la piézoélectricité du polyfluorure de vinylidène (PVF_2), marquant l'avènement des polymères et copolymères piézoélectriques, qui présentent un grand intérêt tant du point de vue industriel que scientifique. Par ailleurs, les progrès accomplis ces dernières années dans la synthèse des matériaux composites [5] permettent maintenant de penser que les composites piézoélectriques vont prendre une importance notable, à mesure que les procédés de fabrication à grande échelle seront maîtrisés.

Cette évolution des matériaux piézoélectriques implique le développement de méthodes de caractérisation de leurs propriétés élastiques, diélectriques et piézoélectriques qui soient adaptées à leur spécificité. De fait, si la caractérisation des céramiques piézoélectriques a été l'objet de nombreux articles et de normes largement adoptées [6,7] et communément utilisées par les industriels [8], l'identification des propriétés des piézoplastiques ne peut être effectuée exactement selon ces mêmes normes, pour diverses raisons. La première est que leur tenseur caractéristique comporte plus de termes que celui des céramiques. Par ailleurs, comme leur nom l'indique, les piézoplastiques présentent un comportement viscoélastique caractéristique des polymères. En particulier, leurs propriétés élastiques, diélectriques et piézoélectriques évoluent souvent de manière importante en fonction de la température, de la pression et de la fréquence d'excitation. De plus, alors que les pertes intrinsèques des céramiques piézoélectriques sont souvent négligées, au moins en

première approximation, celles des piézoplastiques ne peuvent l'être. Ces raisons impliquent que le concept de caractérisation des matériaux piézoélectriques évolue. Il ne s'agit plus simplement d'identifier les principales constantes caractéristiques des matériaux, mais de quantifier leurs évolutions en fonction de la température, de la fréquence ou de tout autre paramètre extérieur susceptible de modifier le comportement du matériau. La connaissance des lois de variation des propriétés des matériaux doit permettre une optimisation de leur utilisation, soit par l'identification des gammes de fréquence ou de température dans lesquelles le couplage est optimal, soit par la conception de dispositifs d'excitation dans lesquels une compensation est introduite.

L'étude qui suit possède deux objectifs complémentaires. Le premier consiste en la mise au point de méthodes de caractérisation des nouveaux matériaux piézoélectriques qui ne peuvent être simplement traités comme les céramiques, à savoir les matériaux se présentant physiquement sous forme de plaques minces, les piézoplastiques et certains composites piézoélectriques. Cette mise au point exige le développement de dispositifs de mesure adaptés à différentes gammes de température et de fréquence, ainsi que l'étude de la corrélation entre résultats expérimentaux et résultats de simulation numérique. Le second objectif consiste en l'identification des constantes élastiques, diélectriques et piézoélectriques d'une variété de PVDF*. En effet, la conception, notamment à l'aide du code éléments finis ATILA [9], d'hydrophones ayant le PVDF comme élément actif nécessite la connaissance du tenseur global du matériau, dans la gamme de fréquence considérée. Ces deux objectifs sont naturellement liés, puisque le PVDF est le matériau test pour les dispositifs étudiés.

Cette étude se divise en cinq parties. Le premier chapitre définit les tenseurs caractéristiques des matériaux et rappelle quelques propriétés caractéristiques du comportement viscoélastique des polymères. Une description succincte des matériaux piézoélectriques actuellement étudiés ou utilisés y est effectuée. Le second chapitre présente la caractérisation du tenseur des permittivités diélectriques du PVDF et les mesures de type électrique effectuées à l'aide de la méthode de MASON [7]. Les résultats concernant les évolutions en fréquence et température d'un certain nombre

* Le PVDF a été fourni par le GERDSM. Il est fabriqué par THOMSON-SINTRA ASM, VALBONNE.

de coefficients γ sont rassemblés. Un troisième chapitre regroupe ensuite quatre types de caractérisation des résonances électriques du PVDF, certaines se résumant à des études de faisabilité. La première méthode permet, par le couplage électrique des harmoniques successives d'un mode de vibration, de quantifier les évolutions en fréquence de certaines constantes du matériau. La seconde s'appuie sur l'emploi d'une technique d'ajustage. Les dernières utilisent les résultats de modélisation par éléments finis pour caractériser le matériau. Parmi celles-ci, l'étude des modes de contour d'une plaque d'un matériau piézoélectrique se comportant comme un cristal de classe de symétrie $2mm$ nous semble originale et prometteuse. Une quatrième partie traite de dispositifs de mesure dans lesquels le matériau est excité dynamiquement par un dispositif mécanique. Les résultats de ces mesures sont comparés à ceux qui sont obtenus par les mesures électriques. Enfin, le cinquième chapitre est un chapitre de conclusion, présentant une synthèse des méthodes développées et des résultats acquis.

CHAPITRE I

PROPRIETES DES MATERIAUX PIEZOELECTRIQUES

L'objet de ce chapitre est de présenter de manière générale les matériaux piézoélectriques sur lesquels les méthodes de caractérisation sont testées. Dans un premier temps, on rappelle les propriétés physiques des matériaux étudiés, ainsi que les définitions de leurs tenseurs caractéristiques. Ensuite, les caractéristiques du comportement viscoélastique des polymères sont brièvement énumérées. On porte une attention particulière à la correspondance temps-température. Dans une troisième partie, on s'intéresse aux principaux types de matériaux piézoélectriques utilisés ou étudiés actuellement, à savoir les céramiques, les polymères et les composites.

I.1. PIEZOELECTRICITE, PYROELECTRICITE ET FERROELECTRICITE

I.1.1. Introduction

La piézoélectricité est la propriété caractéristique des matériaux dont la polarisation diélectrique varie sous l'effet de contraintes mécaniques (effet piézoélectrique direct) et qui se déforment lorsqu'ils sont soumis à un champ électrique (effet piézoélectrique inverse). La pyroélectricité est la propriété caractéristique des matériaux dont la polarisation diélectrique varie sous l'effet de changements de température. Ces deux effets ne se rencontrent pas dans tous les matériaux. Ainsi, pour les cristaux, la piézoélectricité n'est présente que dans 20 classes parmi les 32 classes de symétries ponctuelles, et la pyroélectricité dans seulement 10 classes parmi les 20 premières. En particulier, les cristaux centrosymétriques ne peuvent être piézoélectriques [10,11].

Les matériaux ferroélectriques sont des diélectriques présentant une polarisation permanente à l'échelle microscopique. Ils appartiennent à un groupe pyroélectrique et sont donc, par définition, piézoélectriques. Ces matériaux sont souvent organisés en domaines, qui sont des zones cristallines dans lesquelles la polarisation est soit parallèle, soit antiparallèle à une direction donnée [12]. Si la probabilité d'orientation des polarisations des domaines dans un sens ou dans l'autre est identique, alors la polarisation macroscopique est nulle. Par contre, si l'une des orientations est privilégiée, une polarisation macroscopique apparaît. Pour conférer à un tel matériau une polarisation macroscopique qui induit des propriétés piézoélectriques macroscopiques, on utilise souvent une technique dite de polarisation qui consiste à orienter les domaines dans une direction privilégiée par l'application d'un champ électrique important. La rotation des domaines s'effectuant plus facilement à température élevée, l'opération précédente est généralement conduite à une température proche de la température de Curie du matériau. L'opération de polarisation terminée, la stabilité des domaines est essentiellement assurée par des interactions coopératives entre dipôles voisins. Cependant, de par les défauts de structure, le matériau peut voir ses caractéristiques obtenues après polarisation évoluer. C'est en particulier un tel effet qui est responsable du vieillissement des céramiques. La température de Curie des matériaux ferroélectriques correspond à une limite de température au

delà de laquelle la polarisation permanente diminue et disparaît. Elle correspond à un changement de structure du matériau, et par conséquent à une évolution de ses propriétés [13].

I.1.1. Relations constitutives de la piézoélectricité et de la pyroélectricité

Les relations constitutives de la pyroélectricité et de la piézoélectricité se déduisent classiquement des fonctions d'état thermodynamiques du système. Ainsi, une variation élémentaire de l'énergie interne U d'un matériau piézoélectrique comprend une composante thermique, une composante mécanique et une composante diélectrique et s'écrit:

$$dU = dQ + T_{jk} \cdot dS_{jk} + E_i \cdot dD_i \quad (I.1)$$

avec T_{jk} une composante du tenseur des contraintes, S_{jk} une composante du tenseur des déformations, E_i et D_i les composantes des vecteurs champ électrique et déplacement électrique. La notation adoptée est celle d'EINSTEIN, les indices variant de 1 à 3. L'énergie de GIBBS G du système (ou enthalpie libre) s'écrit :

$$G = U - S_{jk} \cdot T_{jk} - E_i \cdot D_i - \sigma \cdot \theta \quad (I.2)$$

avec σ l'entropie du système et θ la température à laquelle il est soumis. Pour une transformation réversible de ce système, on déduit de (I.1) et (I.2) :

$$dG = -S_{jk} \cdot dT_{jk} - D_i \cdot dE_i - \sigma \cdot d\theta \quad (I.3)$$

S_{jk} , D_i et σ sont donc des dérivées partielles de G :

$$S_{jk} = - \left. \frac{\partial G}{\partial T_{jk}} \right|_{E, \theta} \quad D_i = - \left. \frac{\partial G}{\partial E_i} \right|_{T, \theta} \quad \sigma = - \left. \frac{\partial G}{\partial \theta} \right|_{T, E} \quad (I.4)$$

Par ailleurs, les différentielles totales de S_{jk} , D_i et σ peuvent s'écrire :

$$\begin{aligned}
dS_{ij} &= \left. \frac{\partial S_{ij}}{\partial T_{kl}} \right|_{E, \theta} \cdot dT_{kl} + \left. \frac{\partial S_{ij}}{\partial E_k} \right|_{T, \theta} \cdot dE_k + \left. \frac{\partial S_{ij}}{\partial \theta} \right|_{T, E} \cdot d\theta \\
dD_i &= \left. \frac{\partial D_i}{\partial T_{kl}} \right|_{E, \theta} \cdot dT_{kl} + \left. \frac{\partial D_i}{\partial E_k} \right|_{T, \theta} \cdot dE_k + \left. \frac{\partial D_i}{\partial \theta} \right|_{T, E} \cdot d\theta \\
d\sigma &= \left. \frac{\partial \sigma}{\partial T_{kl}} \right|_{E, \theta} \cdot dT_{kl} + \left. \frac{\partial \sigma}{\partial E_k} \right|_{T, \theta} \cdot dE_k + \left. \frac{\partial \sigma}{\partial \theta} \right|_{T, E} \cdot d\theta
\end{aligned} \quad (I.5)$$

Chacune des dérivées partielles énumérées peut, de plus, s'exprimer en fonction de l'enthalpie libre. Ainsi, pour la première :

$$\left. \frac{\partial S_{ij}}{\partial T_{kl}} \right|_{E, \theta} = - \left. \frac{\partial^2 G}{\partial T_{kl} \partial T_{ij}} \right|_{E, \theta} = - \left. \frac{\partial^2 G}{\partial T_{ij} \partial T_{kl}} \right|_{E, \theta} = \left. \frac{\partial S_{kl}}{\partial T_{ij}} \right|_{E, \theta} = s_{ijkl}^{E, \theta} = s_{klij}^{E, \theta} \quad (I.6)$$

Ce terme est, par définition, le terme de flexibilité à champ électrique et température constants, caractéristique du matériau. De même, cinq autres constantes peuvent être extraites des relations (I.3), (I.4) et (I.5) suivant les équations ci-après :

- la permittivité diélectrique à contrainte et température constante :

$$\epsilon_{ij}^{T, \theta} = \left. \frac{\partial D_i}{\partial E_j} \right|_{T, \theta} = - \left. \frac{\partial^2 G}{\partial E_j \partial E_i} \right|_{T, \theta} = - \left. \frac{\partial^2 G}{\partial E_i \partial E_j} \right|_{T, \theta} = \left. \frac{\partial D_j}{\partial E_i} \right|_{T, \theta} = \epsilon_{ji}^{T, \theta} \quad (I.7)$$

- la capacité calorifique c à contrainte et champ électrique constants :

$$\frac{\rho \cdot c^{T, E}}{\theta} = \left. \frac{\partial \sigma}{\partial \theta} \right|_{T, E} \quad (I.8)$$

- la constante piézoélectrique d à température constante :

$$d_{kij}^{\theta} = \left. \frac{\partial S_{ij}}{\partial E_k} \right|_{T, \theta} = \left. \frac{\partial D_k}{\partial T_{ij}} \right|_{E, \theta} \quad (I.9)$$

- le coefficient de dilatation à champ électrique constant :

$$\alpha_{ij}^E = \left. \frac{\partial S_{ij}}{\partial \theta} \right|_{T, E} = \left. \frac{\partial \sigma}{\partial T_{ij}} \right|_{E, \theta} \quad (\text{I.10})$$

- la constante pyroélectrique p à contrainte constante :

$$p_i^T = \left. \frac{\partial D_i}{\partial \theta} \right|_{T, E} = \left. \frac{\partial \sigma}{\partial E_i} \right|_{T, \theta} \quad (\text{I.11})$$

A l'aide de ces constantes, on peut finalement écrire :

$$\begin{aligned} dS_{ij} &= s_{ijkl}^{E, \theta} \cdot dT_{kl} + d_{mij}^{\theta} \cdot dE_m + \alpha_{ij}^E \cdot d\theta \\ dD_n &= d_{mkl}^{\theta} \cdot dT_{kl} + \epsilon_{nm}^{T, \theta} \cdot dE_m + p_n^T \cdot d\theta \\ d\sigma &= \alpha_{kl}^E \cdot dT_{kl} + p_m^T \cdot dE_m + \rho.c. d\theta/\theta \end{aligned} \quad (\text{I.13})$$

Les règles de condensation des tenseurs [10] permettent d'écrire plus simplement :

$$\begin{aligned} dS_i &= s_{ij}^{E, \theta} \cdot dT_j + d_{mi}^{\theta} \cdot dE_m + \alpha_i^E \cdot d\theta \\ dD_n &= d_{nj}^{\theta} \cdot dT_j + \epsilon_{nm}^{T, \theta} \cdot dE_m + p_n^T \cdot d\theta \\ d\sigma &= \alpha_j^E \cdot dT_j + p_m^T \cdot dE_m + \rho.c. d\theta/\theta \end{aligned} \quad (\text{I.13})$$

avec i et j variant de 1 à 6 et n et m de 1 à 3.

Le calcul qui vient d'être effectué a permis d'obtenir des constantes mécaniques, diélectriques et piézoélectriques établies à température constante. Cette piézoélectricité obtenue à température constante correspond à la piézoélectricité primaire. Les mêmes constantes, déterminées dans des conditions adiabatiques ($d\sigma = 0$), seraient légèrement différentes. La différence obtenue sur les coefficients piézoélectriques correspond à la piézoélectricité secondaire, souvent beaucoup plus faible que la piézoélectricité primaire. Elle exprime la prise en compte de la pyroélectricité dans le terme piézoélectrique. Dans la pratique, il sera sous-entendu que les mesures sont effectuées à température constante et l'exposant θ sera omis. Admettant en outre que les relations différentielles (I.13) peuvent être linéarisées, on peut écrire :

$$\begin{aligned} S_i &= s_{ij}^E \cdot T_j + d_{mi} \cdot E_m \\ D_n &= d_{nj} \cdot T_j + \epsilon_{nm} \cdot E_m \end{aligned} \quad (I.14)$$

D'autres variables indépendantes peuvent être utilisées. Les équations obtenues sont alors, en négligeant les termes pyroélectriques:

$$\begin{aligned} T_i &= C_{ij}^E \cdot S_j - e_{mi} \cdot E_m & S_i &= s_{ij}^D \cdot T_j + g_{mi} \cdot D_m \\ D_n &= e_{nj} \cdot S_j + \epsilon_{nm}^S \cdot E_m & E_n &= -g_{nj} \cdot T_j + \beta_{nm}^T \cdot D_m \end{aligned} \quad (I.15)$$

$$\begin{aligned} T_i &= C_{ij}^D \cdot S_j - h_{mi} \cdot D_m \\ E_n &= -h_{nj} \cdot S_j + \beta_{nm}^S \cdot D_m \end{aligned}$$

Les tenseurs des constantes mécaniques, diélectriques et piézoélectriques sont caractéristiques de la classe de symétrie cristalline à laquelle le matériau appartient. C'est ce qu'exprime le tableau I.1 établi d'après des données de W.P. MASON [7] et de E. DIEULESAINT [10]. On trouvera dans le livre de J.F. NYE [11] les règles de passage d'un tenseur à un autre.

Pour caractériser un matériau piézoélectrique, le coefficient de couplage est souvent utilisé. Il exprime le rapport de la densité d'énergie de couplage piézoélectrique à la moyenne géométrique des densités d'énergie élastique et diélectrique. Soit :

$$K = \frac{U_m}{\sqrt{U_E \cdot U_D}} \quad (I.16)$$

avec :

$$U = \left(\frac{1}{2} T_i s_{ij}^E T_j \right) + 2 \cdot \left(\frac{1}{2} T_i d_{mi} E_m \right) + \left(\frac{1}{2} E_m \epsilon_{mn}^T E_n \right) = U_E + 2 \cdot U_m + U_D \quad (I.17)$$

La plupart du temps d'expression très complexe, cette constante K pourra être simplifiée dans le cas de la déformation d'éprouvettes dont les dimensions ont été choisies pour privilégier un mode de vibration particulier.

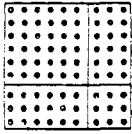
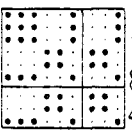
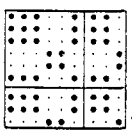
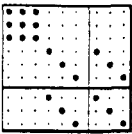
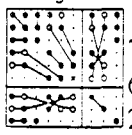

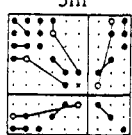
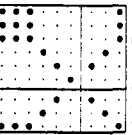
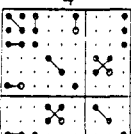
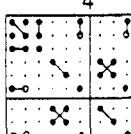



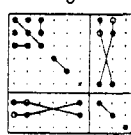
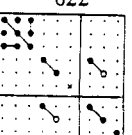
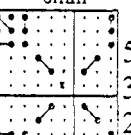

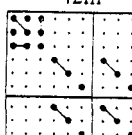
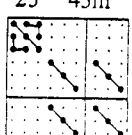
<p>TRICLINIQUE</p> <p>1 $\bar{1}$</p>  <p>21 21 18 0 6 6</p>	<p>MONOCLINIQUE</p> <p>2 m $2/m$</p>   <p>13 13 8 10 0 4 4</p>	<p>ORTHORHOMBIQUE</p> <p>222</p>  <p>9 3 3</p> <p><i>Sel de Rochelle</i></p>	
<p>TRIGONAL</p> <p>3 $\bar{3}$</p>  <p>7 7 6 0 2 2</p> <p>32</p>  <p>6 6 2 4 0 2 2</p> <p><i>quartz</i></p> <p>3m $3m$</p>  <p>6 6 4 0 2 2</p> <p><i>niobate de lithium</i></p>		<p>2mm</p>  <p>9 5 3</p> <p><i>PVDF</i></p>	
<p>TETRAGONAL</p> <p>4 $\bar{4}$ $4/m$ 422</p>  <p>7 7 4 4 0 2 2</p>  <p>7 7 4 0 2 2</p>  <p>6 6 1 4 0 2 2</p>  <p>6 6 3 4 0 2 2</p> <p><i>BaTiO₃</i></p>			
<p>HEXAGONAL</p> <p>6 $\bar{6}$ 622</p>  <p>5 5 4 2 0 2 2</p>  <p>5 5 2 4 0 2 2</p>  <p>5 5 1 2 0 2 2</p> <p>6mm $\bar{6}m2$ $6/m$ $6/mmm$</p>  <p>5 5 3 1 0 2 2</p>  <p>5 5 1 0 2 2</p> <p><i>Céramique piézoélectrique</i></p>			<p>$\bar{4}2m$ $4/mmm$</p>  <p>6 6 2 0 2 2</p> <p><i>ADP KDP</i></p> <p>CUBIQUE 432 $m\bar{3}$ $m3m$</p> <p>23 $\bar{4}3m$</p>  <p>3 3 1 0 1 1</p> <p><i>Arsenure de gallium</i></p>

Tableau I.1 : Table de symétrie des matrices de constantes élastiques, piézoélectriques et diélectriques dans le système des axes cristallographiques. La symétrie par rapport à la diagonale principale n'est pas mentionnée. Le nombre de constantes élastiques, piézoélectriques et diélectriques indépendantes est indiqué à droite de chaque tenseur. Cette table est donnée pour les tenseurs C_{ij}^E , e_{im} et ϵ_{mn}^S [7,10].

Notations :

- Module nul
- Module différent de zéro
- Modules égaux
- Modules égaux en valeur absolue, mais de signe opposé

$$\times \frac{1}{2} \cdot (C_{11}^E - C_{12}^E)$$

I.2. COMPORTEMENT VISCOELASTIQUE DES POLYMERES

I.2.1. Introduction

Le comportement mécanique d'un solide élastique peut être décrit de manière satisfaisante par la loi de HOOKE qui exprime, dans le cas des petites déformations, une relation linéaire entre le tenseur des contraintes [T] et celui des déformations [S] :

$$[T] = [C].[S] \quad (I.18)$$

Par ailleurs, pour beaucoup de liquides, les contraintes sont proportionnelles au taux de déformation qui leurs sont appliqués. C'est alors la loi de NEWTON qui rend compte de ce comportement de fluide visqueux:

$$[T] = \eta \cdot \frac{d[S]}{dt} \quad (I.19)$$

où η est le coefficient de viscosité du fluide.

Cependant, si ces lois permettent de rendre compte du comportement de nombreux liquides et solides, il existe bon nombre de matériaux dont le comportement est intermédiaire. Pour cela, ils sont appelés viscoélastiques. La relation qui existe entre la contrainte T et la déformation S est alors complexe et on peut l'écrire, dans un cas simplifié unidimensionnel, sous sa forme générale :

$$a_0 \cdot T + a_1 \cdot \frac{\partial T}{\partial t} + a_2 \cdot \frac{\partial^2 T}{\partial t^2} + \dots + a_n \cdot \frac{\partial^n T}{\partial t^n} + \dots =$$

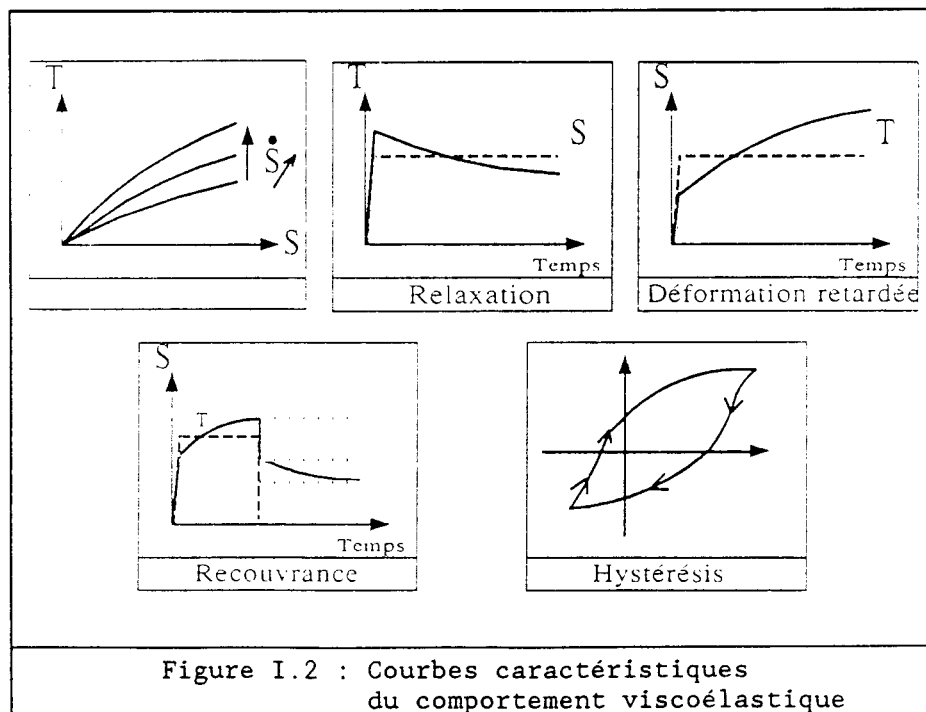
$$b_0 \cdot S + b_1 \cdot \frac{\partial S}{\partial t} + b_2 \cdot \frac{\partial^2 S}{\partial t^2} + \dots + b_n \cdot \frac{\partial^n S}{\partial t^n} + \dots \quad (I.20)$$

Du point de vue électrique, la loi $[D] = [\epsilon].[E]$ n'est pas vérifiée exactement pour certains matériaux, la relation entre le vecteur du déplacement électrique [D] et celui du champ électrique [E] étant, elle aussi, plus complexe .

Les déformations induites dans les matériaux élastiques et viscoélastiques par une sollicitation extérieure sont réversibles : le

matériau revient à son état initial dès lors que cette sollicitation s'arrête. Pour les matériaux ayant un comportement purement élastique, cette réversibilité est instantanée, alors qu'elle est retardée pour les viscoélastiques. Les matériaux plastiques et viscoplastiques présentent, quant à eux, des déformations permanentes après cessation des sollicitations. Les viscoplastiques subissent en plus un écoulement de fluage fonction du temps sous sollicitation [14]. Les caractéristiques principales d'un comportement viscoélastique [15] sont rassemblées dans la figure I.2, à savoir :

- si on effectue des expériences de déformation à vitesse de déformation constante, on peut tracer les courbes $T = f(S)$ paramétrées par \dot{S} : c'est ce qu'on appelle l'effet de la viscosité.
- si on applique un créneau de déformation à une éprouvette, les contraintes dans le matériau croissent instantanément puis diminuent progressivement : c'est le phénomène de relaxation .
- si on applique un créneau de contrainte à l'éprouvette, le matériau se déforme de façon progressive : c'est le phénomène de retard.
- la recouvrance correspond au même phénomène, lorsque les contraintes cessent.
- on peut tracer une courbe d'hystérésis entre contrainte et déformation.



Les paragraphes qui suivent décrivent le comportement viscoélastique linéaire uniquement, à savoir le comportement viscoélastique

dans le domaine des petites déformations où le principe de superposition de Boltzmann [16] peut être appliqué. Ce principe exprime que, si un corps viscoélastique est soumis à une contrainte T_0 initiale et qu'on augmente celle-ci de T_i à chaque temps t_i , alors la déformation résultante se calcule par simple addition et s'écrit :

$$S(t) = J(t).T_0 + J(t-t_1).T_1 + J(t-t_2).T_2 + \dots + J(t-t_n).T_n \quad (\text{I.21})$$

où $J(t)$ est la complaisance de fluage qui sera définie dans le paragraphe suivant.

1.2.2. Expériences caractéristiques

Les expériences qui permettent de quantifier le comportement viscoélastique d'un matériau relèvent de deux types d'analyse : les analyses temporelles, qui donnent l'évolution des grandeurs physiques au cours du temps en réponse à des excitations transitoires, et les analyses harmoniques, qui permettent d'exprimer les constantes du matériau en fonction de la fréquence.

1.2.2.1. Les analyses temporelles

Elles consistent à imposer un créneau de déformation S_0 (ou de contrainte T_0) à une éprouvette et à enregistrer l'évolution au cours du temps de la contrainte $T(t)$ (ou de la déformation $S(t)$) induite. Pour des créneaux de sollicitation en cisaillement, par exemple, les grandeurs caractéristiques du matériau sont la complaisance de fluage en cisaillement définie par :

$$J(t) = \frac{S(t)}{T_0} \quad (\text{I.22})$$

pour des expériences à contrainte constante, et le module de relaxation en cisaillement $G(t)$ défini par :

$$G(t) = \frac{T(t)}{S_0} \quad (\text{I.23})$$

pour des expériences à déformation constante. Il est à remarquer que ces analyses sont complémentaires parce que $J(t)$ est toujours différent de $G(t)^{-1}$.

1.2.2.2. Les analyses harmoniques

Dans ce type d'expérience, on impose au matériau une déformation $S_0 e^{j\omega t}$ ou une contrainte sinusoïdale $T_0 e^{j\omega t}$. Dans le cas d'une déformation, on peut écrire :

$$S^*(\omega) = S_0 e^{j\omega t} \quad (\text{I.24})$$

et :

$$T^*(\omega) = T_0 e^{j(\omega t - \delta_G)} \quad (\text{I.25})$$

l'astérisque * indiquant le caractère complexe des termes. On relie alors S à T via le module complexe correspondant au type de sollicitation :

$$T^* = G^* . S^* = (G'(\omega) + j . G''(\omega)) . S^* \quad (\text{I.26})$$

Dans le cas où l'excitation est une contrainte, on peut écrire :

$$T^*(\omega) = T_0 e^{j\omega t} \quad (\text{I.27})$$

et :

$$S^*(\omega) = S_0 e^{j(\omega t - \delta_J)} \quad (\text{I.28})$$

On obtient alors :

$$S^* = J^* . T^* = (J'(\omega) - j . J''(\omega)) . T^* \quad (\text{I.29})$$

Les angles de pertes sont égaux et :

$$\text{Tg}\delta_G = \frac{G''}{G'} = \text{Tg}\delta_J = \frac{J''}{J'} \quad (\text{I.30})$$

Dans le cas de mesures diélectriques, la permittivité diélectrique est également complexe et présente le même type de comportement que J^* .

Si on calcule la densité d'énergie mécanique absorbée par l'échantillon pendant un quart de période, on obtient :

$$W = \int_0^{T/4} T(t) . \frac{dS(t)}{dt} dt \quad (\text{I.31})$$

avec :

$$T = T_0 . \sin(\omega t) \quad (\text{I.32})$$

et :

$$S = S_0 . \sin(\omega t - \delta_G) \quad (\text{I.33})$$

soit :

$$W = S_0 T_0 \left(\frac{\cos \delta_G}{2} + \pi \frac{\sin \delta_G}{4} \right) \quad (I.34)$$

Si δ_G est nul, on retrouve l'expression de l'énergie élastique stockée, le second terme de la parenthèse disparaît. Ce terme représente donc l'énergie mécanique dissipée dans l'échantillon au cours du cycle, de même que les parties imaginaires J'' ou G'' .

Il est possible de relier les constantes caractéristiques du matériau mises en jeu lors des différents types d'expérience [17]. Les équivalences pour le module de relaxation en cisaillement G^* sont, par exemple :

$$G'(\omega) = G_R + \omega \int_0^{\infty} (G(t) - G_R) \sin \omega t \cdot dt \quad (I.35)$$

$$G''(\omega) = \omega \int_0^{\infty} (G(t) - G_R) \cos \omega t \cdot dt \quad (I.36)$$

avec :

$$G_R = \lim_{t \rightarrow \infty} G(t) = \lim_{\omega \rightarrow 0} G'(\omega) \quad (I.37)$$

D'autre part :

$$G(t) = G_R + \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} (G'(\omega) - G_R) / \omega \cdot \sin \omega t \cdot d\omega \quad (I.38)$$

et :

$$G(t) = G_R + \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} G''(\omega) / \omega \cdot \cos \omega t \cdot d\omega \quad (I.39)$$

1.2.3. Modélisations phénoménologiques d'un comportement viscoélastique

1.2.3.1. Les analogies mécaniques

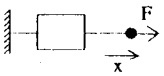
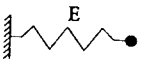
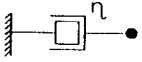
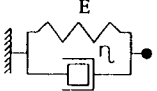
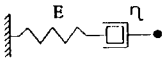
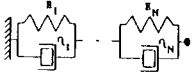
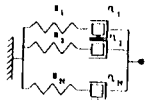
Afin de rendre compte du comportement mécanique des matériaux indépendamment de leur nature, on utilise souvent des modèles mécaniques à base de ressorts et d'amortisseurs qui permettent de définir divers types de comportement [14]. Ces modèles doivent rendre compte du comportement du matériau indépendamment du type de sollicitation auquel il est soumis. Le tableau I.3 présente les modèles les plus couramment employés. Ils exploitent une identification entre force F et contrainte T , déplacement x et déformation S .

Si les corps de MAXWELL et de VOIGT [18] ne permettent pas de rendre compte du comportement réel d'un matériau, leur généralisation décrit bien les évolutions de $G(t)$, $J(t)$, $G(\omega)$ et $J(\omega)$. La généralisation ultime consiste en l'introduction d'un spectre continu de la constante de relaxation τ . Ainsi, pour le modèle de MAXWELL, la distribution discrète $G_i(\tau_i)$ devient alors une fonction de distribution et, notant $g(\tau).d\tau$ la somme des modules des branches dont les temps de relaxation sont compris entre τ et $\tau + d\tau$, le module total s'exprime par :

$$G(t) = G_\infty + \int_0^\infty g(\tau).e^{-t/\tau}d\tau \quad (\text{I.40})$$

On cherche généralement à identifier la fonction $g(\tau)$ à partir de l'expérience.

Tableau I.3 : Modèles mécaniques
du comportement viscoélastique

		équation du modèle mécanique	équation constitutive	évolution de S à contrainte T_0 constante évolution de T à déformation S_0 constante
corps élastique		$F = k \cdot x$	$T = E \cdot S$	$S(t) = T_0 / E$ $T(t) = E \cdot S_0$
corps visqueux Newtonien		$F = \rho \cdot \dot{x}$	$T = \eta \cdot \dot{S}$	$S(t) = T_0 \cdot t / \eta$ $T(t) = 0$
corps de KELVIN-VOIGT		$F = k \cdot x + \rho \cdot \dot{x}$	$T = E \cdot S + \eta \cdot \dot{S}$	$S(t) = T_0/E \cdot (1 - e^{-t/\tau})$ avec $\tau = \eta/E$ $T(t) = E \cdot S_0$
corps de MAXWELL		$\dot{x} = \frac{\dot{F}}{k} + \frac{F}{\rho}$	$\dot{S} = \frac{\dot{T}}{E} + \frac{T}{\eta}$	$S(t) = T_0 \cdot t / \eta + T_0 / E$ $T(t) = S_0 \cdot E \cdot e^{-t/\tau}$
corps de KELVIN-VOIGT généralisé		$x = \sum_i x_i$	$S = \sum_i S_i$	$S(t) = T_0 \cdot \sum_{i=1}^N \frac{1}{E_i} (1 - e^{-t/\tau_i})$ avec $\tau_i = \eta_i / E_i$
corps de MAXWELL-WIECHERT		$F = \sum_i F_i$	$T = \sum_i T_i$	$T(t) = S_0 \cdot \sum_{i=1}^N E_i \cdot e^{-t/\tau_i}$ avec $\tau_i = \eta_i / E_i$

1.2.3.2. Les modèles à constantes de relaxation

Le modèle à une constante de relaxation a été introduit en 1949 par H. FRÖHLICH [19], pour exprimer le comportement des diélectriques, puis en 1953 par A.S. NOWICK [20] pour les comportements mécaniques. Dans ce dernier cas, on suppose que la déformation du matériau est proportionnelle à un paramètre interne p , qui indique la valeur d'un taux de réarrangement des molécules par rapport à un taux d'équilibre p_0 . On peut alors écrire :

$$S(t) = (J(t) - J_U) \cdot T = \lambda \cdot p \quad (I.41)$$

avec :

$$p = p_0 \cdot (1 - e^{-t/\tau}) \quad (I.42)$$

où l'indice U indique le caractère instantané (Unrelaxed) de la valeur J. Si d'autre part, l'indice R indique le caractère relaxé de cette même valeur, on en déduit :

$$J(t) = J_U + (J_R - J_U)(1 - e^{-t/\tau}) \quad (I.43)$$

Pour une analyse harmonique, le même type d'hypothèse conduit à :

$$J^*(\omega) = J_U + \frac{J_R - J_U}{1 + j\omega\tau} \quad (I.44)$$

soit encore :

$$J'(\omega) = J_U + \frac{J_R - J_U}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (I.45)$$

$$J''(\omega) = \frac{(J_R - J_U) \cdot \omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (I.46)$$

La figure I.4 présente les évolutions en fréquence de $J'(\omega)$ et $J''(\omega)$ pour le modèle à une constante de relaxation. Si ce modèle permet de rendre compte fidèlement du comportement de certains liquides, il n'est pas directement applicable aux polymères sous forme solide, pour lesquels les transitions sont toujours plus étalées en fréquence. Cependant, il sert comme base du modèle à constante de relaxation répartie. Dans ce dernier cas, la compliance devient :

$$J'(\omega) = J_U + (J_R - J_U) \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\Phi(\ln\tau) \cdot d(\ln\tau)}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (I.47)$$

$$J''(\omega) = (J_R - J_U) \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\Phi(\ln\tau) \cdot \omega\tau \cdot d(\ln\tau)}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (I.48)$$

où $\Phi(\ln\tau) \cdot d(\ln\tau)$ représente la fraction du processus de retard qui se produit pour des constantes de retard dont le logarithme est compris entre $\ln\tau$ et $\ln\tau + d(\ln\tau)$.

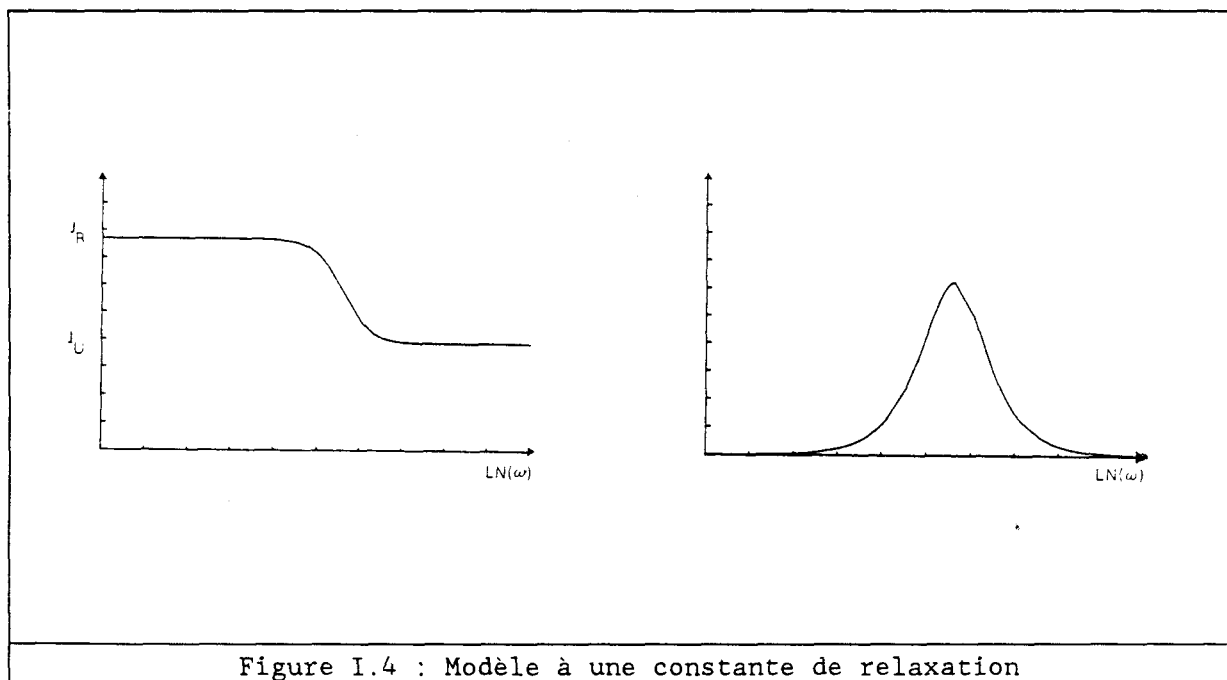
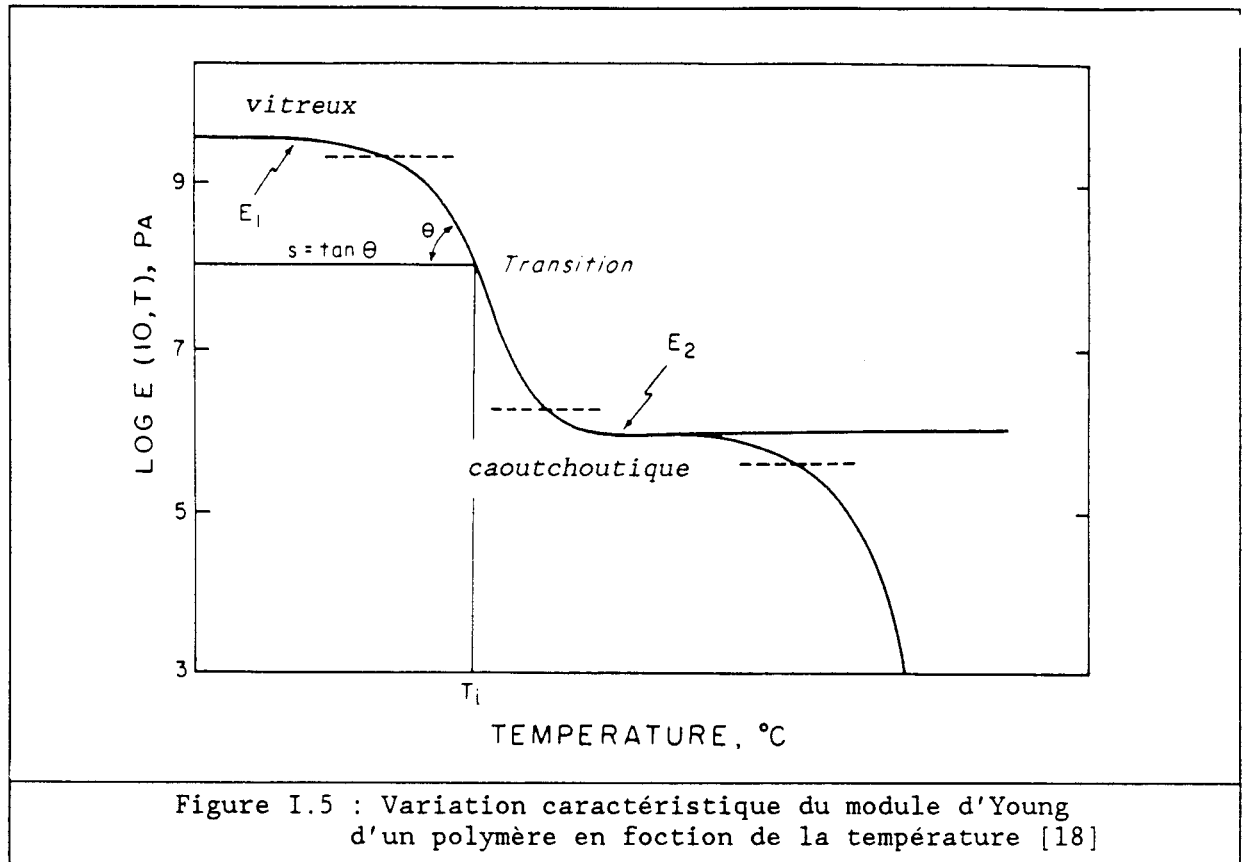


Figure I.4 : Modèle à une constante de relaxation

1.2.4. Caractéristiques d'un polymère

Les polymères solides, qu'ils soient sous forme semi-cristalline ou amorphe, se présentent, suivant la température, sous deux états distincts: l'état vitreux et l'état caoutchoutique. Dans l'état vitreux, le polymère est dur et cassant et son module d'Young est élevé, supérieur au GPa. Dans l'état caoutchoutique, le polymère possède un module d'Young cent à mille fois plus faible. La transition entre état vitreux et état caoutchoutique, appelée transition vitreuse, se produit pour une température spécifique T_g . Elle est caractérisée par une variation brusque de la plupart des propriétés du matériau, comme indiqué sur la figure I.5. La valeur de la température de transition vitreuse dépend du protocole de mesure mis en oeuvre pour la déterminer, en particulier de la cinétique de mesure.



Lors de sollicitations externes, sous sa forme vitreuse, le polymère ne subit que des réarrangements locaux de ses chaînes macromoléculaires, alors que, sous sa forme caoutchoutique, c'est toute la chaîne qui se réorganise. Dans la zone de transition vitreuse, l'amplitude des réarrangements dépend des conditions externes de température, de fréquence d'excitation, de pression.

En 1955, M.L. WILLIAMS, R.F. LANDEL et J.D. FERRY [21] ont mis en évidence la corrélation entre les évolutions des constantes d'un polymère en fonction de la fréquence et de la température. L'évolution des propriétés d'un tel matériau en température, pour une fréquence donnée, est une image de son évolution à d'autres fréquences. L'expression du module de relaxation en cisaillement développée par P.E. ROUSE [22] permet d'établir une correspondance simple. Si, pour une température T donnée, le module réel s'écrit :

$$G'_T(\omega) = \frac{\rho_T RT}{M} \cdot \sum_{p=1}^N \frac{\omega^2 \tau_p^2(T)}{1 + \omega^2 \tau_p^2(T)} \quad (I.49)$$

où ρ_T est la masse volumique à température T , M une masse moléculaire moyenne, τ_p une constante de relaxation, il est possible d'établir une relation entre les constantes de relaxation $\tau_p(T)$ et $\tau_p(T_0)$ correspondant à des températures différentes [17] :

$$\tau_p(T) = \tau_p(T_0) \cdot a_T \quad (\text{I.50})$$

ce qui implique :

$$G'_T(\omega) = \frac{\rho_T T}{\rho_{T_0} T_0} \cdot \frac{\rho_{T_0} R T_0}{M} \cdot \sum_{p=1}^N \frac{(\omega a_T)^2 \tau_p^2(T_0)}{1 + (\omega a_T)^2 \tau_p^2(T_0)} \quad (\text{I.51})$$

soit encore :

$$G'_T(\omega) = \frac{\rho_T T}{\rho_{T_0} T_0} \cdot G_{T_0}(a_T \omega) \quad (\text{I.52})$$

Cette égalité permet, moyennant la connaissance de a_T , d'évaluer les valeurs prises par $G_T(\omega)$ sur un domaine de fréquence large à partir de mesures sur une plage de fréquence étroite et pour différentes températures. C'est l'opération de construction de la "courbe maîtresse" caractéristique du matériau, qui donne l'évolution des coefficients considérés en fonction de la fréquence pour une température de référence donnée. Le coefficient a_T est déterminé expérimentalement à l'aide de quelques points de mesure. Son évolution en température suit souvent la loi semi-empirique dite de FERRY, qui s'exprime sous la forme :

$$\log(a_T) = \frac{-c_1(T - T_0)}{c_2 + T - T_0} \quad (\text{I.53})$$

Les valeurs des constantes c_1 et c_2 sont déterminées expérimentalement. La loi de FERRY trouve sa justification dans la notion de volume libre [23].

Différentes méthodes sont utilisées pour établir la courbe maîtresse des constantes d'un matériau. La méthode la plus classique, exposée par J.D. FERRY [21], exploite la relation (I.52). Pratiquement, la courbe maîtresse est le résultat de la séquence des opérations suivantes :

- mesure, pour chaque palier de température, du coefficient mécanique ou électrique considéré, pour quelques fréquences,
- établissement d'une courbe d'évolution en fréquence,

- multiplication de chaque coefficient par $\rho T / \rho_0 T_0$, la température T_0 de référence étant choisie arbitrairement,
- décalage selon l'axe des abscisses de chaque courbe jusqu'à ce qu'il y ait superposition et prolongement de la courbe paramétrée par T_0 . L'amplitude du décalage correspond à la valeur a_T .

Une dernière étape peut consister à rechercher si la loi d'évolution de a_T en fonction de la température vérifie la loi de FERRY et, éventuellement, à en calculer les coefficients. Pour d'autres matériaux, le facteur multiplicatif $\rho T / \rho_0 T_0$ est considéré comme proche de 1, et son évolution est alors négligée; cela signifie que les variations de température n'influent pas ou peu sur l'amplitude de la transition, mais la décalent seulement en fréquence.

N.G. MAC CRUM et E.L. MORRIS [24,25] ont établi des relations plus complexes qui font intervenir d'autres facteurs de décalage. Ils prennent notamment en compte la variation des coefficients en température, pour les basses et les hautes fréquences (figure I.6). Si l'indice R indique l'état relaxé (basse fréquence) et l'indice U l'état instantané (très haute fréquence), ils expriment alors la compliance $J(\omega)$ sous la forme suivante, pour les très basses et très hautes fréquences :

$$J_R^T = d_T \cdot J_R^{T_0} \quad (I.54)$$

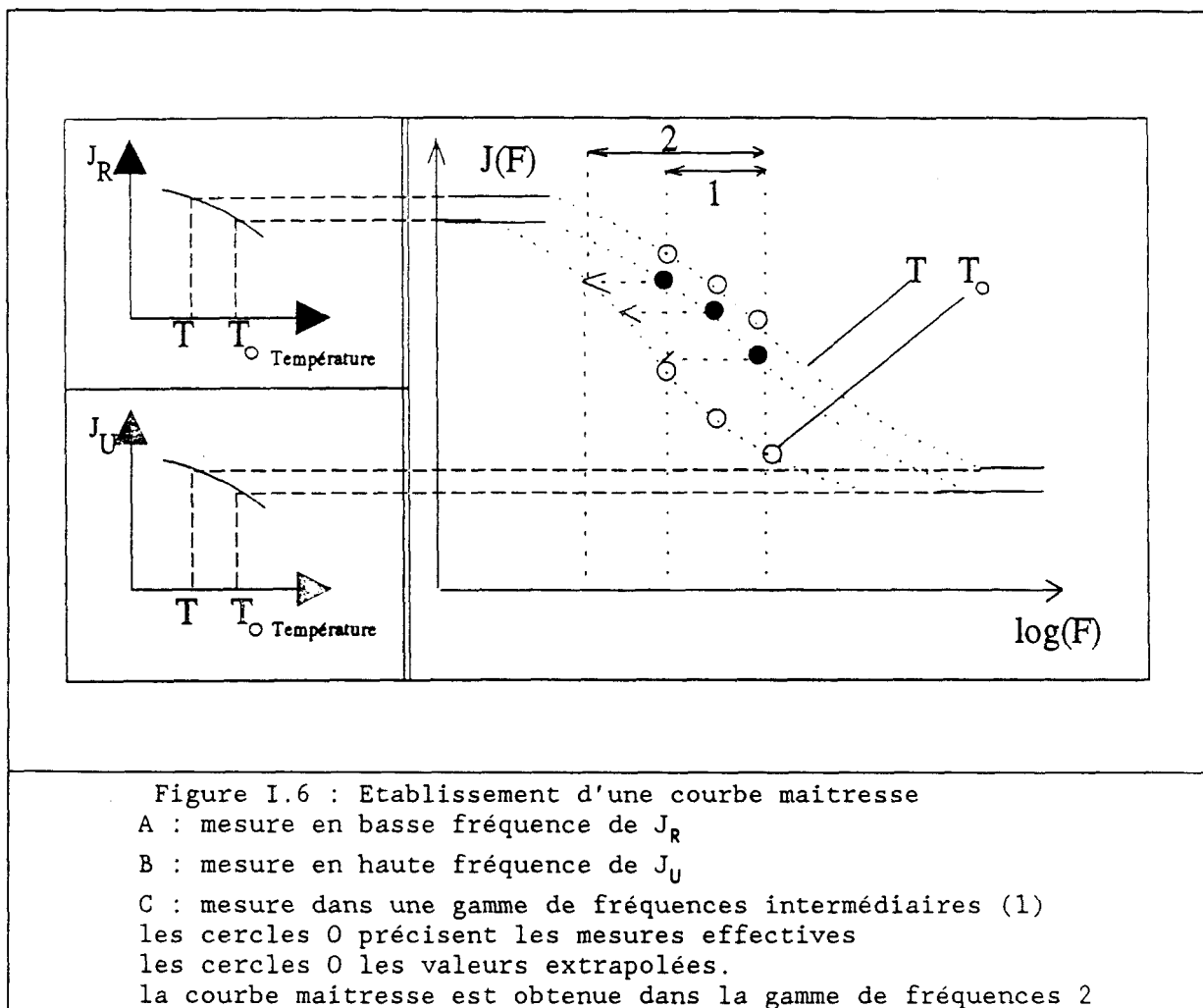
$$J_U^T = c_T \cdot J_U^{T_0} \quad (I.55)$$

et dans le cas général :

$$J'^{T_0}(a_T \omega) = J'^T(\omega) \cdot \frac{J_R^{T_0} - J_U^{T_0}}{d_T J_R^{T_0} - c_T J_U^{T_0}} + J_U^{T_0} \cdot J_R^{T_0} \cdot \frac{d_T - c_T}{d_T J_R^{T_0} - c_T J_U^{T_0}} \quad (I.56)$$

$$J''^{T_0}(a_T \omega) = J''^T(\omega) \cdot \frac{J_R^{T_0} - J_U^{T_0}}{d_T J_R^{T_0} - c_T J_U^{T_0}} \quad (I.57)$$

L'établissement d'une courbe maîtresse sur la base de ces relations implique la mesure des coefficients en très haute et très basse fréquence.



Si le principe de correspondance a été largement utilisé, il est cependant difficile de juger de la qualité des résultats obtenus, un éventuel recoupement expérimental se situant souvent dans des gammes de fréquence non accessibles. Toutefois, il semble quantitativement correct, au moins dans une gamme restreinte de température et de fréquence [26]. Par ailleurs, l'application du principe de correspondance n'est normalement pas possible pour les polymères semi-cristallins et multiphasés.

I.3. LES MATERIAUX PIEZOELECTRIQUES ACTUELS

Les premiers matériaux sur lesquels la piézoélectricité fut identifiée sont naturellement cristallins. La plupart d'entre eux ne sont plus utilisés, sauf cas d'applications particulières: le quartz comme référence de fréquence, le niobate de lithium pour la fabrication des transducteurs à ondes de surface... Les paragraphes suivants présentent les matériaux communément utilisés à la date d'aujourd'hui, ou ceux sur lesquels des efforts de recherche sont faits.

1.3.1. Les céramiques piézoélectriques

Utilisées depuis plus de 40 ans, les céramiques piézoélectriques constituent la partie active de la plupart des transducteurs utilisés en acoustique sous-marine, en imagerie ou dans les applications industrielles. C'est le Titanate de Baryum (BaTiO_3), matériau ferroélectrique qui a d'abord été utilisé. Puis il a été remplacé par des composés, les Titano-Zirconate de Plomb, de formule $\text{Pb}(\text{Zr}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$ pour lesquels x est voisin de 0.5. Le remplacement de Zr, Ti, ou Pb par des dopants de valence variée permet de modifier les caractéristiques de base de ces céramiques [27]. On distingue les céramiques douces (soft) pour lesquelles les dopants sont de type donneur, utilisées en détection, et les céramiques dures (hard) dont les dopants sont de type accepteur, plus adaptées aux applications à fort niveau d'excitation. On peut trouver les caractéristiques de céramiques standards dans le livre de O.B. WILSON [28].

Les recherches actuelles en matière de céramiques portent sur la diminution de défauts inhérents à leur mode de fabrication (frittage et polarisation). La technique de coprécipitation en phase liquide [29,30] permet, en réduisant la taille des grains, d'utiliser les céramiques pour des niveaux d'excitation accrus [31]. L'introduction de micro-bulles dans la céramique permet, quant à elle, d'augmenter ses qualités hydrostatiques mais pose des gros problèmes de stabilité en pression.

I.3.2. Le PVDF et les polymères piézoélectriques

Le Polyfluorure de vinylidène (PVDF ou PVF_2) est un polymère semi-cristallin de formule chimique $(\text{CH}_2-\text{CF}_2)_n$. Commercialisé depuis 1960 [32], le PVDF a fait l'objet d'un intérêt considérable [33] depuis la mise

en évidence de sa piézoélectricité par H. KAWAI [4] et de sa pyroélectricité par J.G. BERGMAN [34] et K. NAKAMURA et K. WADA [35] en 1971.

Les qualités pyroélectriques et piézoélectriques du PVDF proviennent de la forte dissymétrie et de la forte polarité induites par les atomes de Fluor dans les monomères et de la facilité avec laquelle les cristallites s'orientent sous l'influence d'un champ extérieur. Le tableau I.7, établi d'après les données de A.J. LOVINGER et G.M. SESSLER [36,37], présente une comparaison entre les activités piézoélectriques et pyroélectriques du PVDF et celles d'autres polymères .

Polymère	masse volumique kg/m ³	constante diélectrique relative	coefficient piézoélectrique pC.N ⁻¹	coefficient pyroélectrique μC.K ⁻¹ .m ⁻²
PVDF	1780	11.0	20.	30-35
PVF	1380	8.7	1.0/1.3	10-18
PVC	1400	3.0	0.5/1.3	1-3
PAN(*)	1175	5.7	1.5/2.0	0.5-1
polyéthylène	930	2.3	0.03	

I.7 : Comparaison des propriétés piézoélectriques et pyroélectriques de quelques polymères ((*) : Polyacrylonitrile)

Polymère semi-cristallin, le PVDF est formé de sphérulites [38] noyées dans une structure amorphe. Le taux de cristallinité, d'environ 50%, dépend de l'histoire thermique du matériau [39]. La température de transition vitreuse T_g de la phase amorphe du matériau est d'environ -50°C [40]. Le PVDF existe sous différentes formes cristallines, communément appelées formes I, II, III, IIP (ou β , α , γ , δ) selon la chronologie de leur identification [36]. Le schéma I.7, repris d'après E.L. NIX [41], décrit les positions correspondantes des atomes dans la chaîne macromoléculaire. Le caractère hautement dissymétrique de la forme I explique que seule cette configuration présente un caractère piézoélectrique et pyroélectrique. C'est la forme II (α) qui est obtenue spontanément par cristallisation pendant le refroidissement. L'obtention de la phase I (β) nécessite une opération d'étirement et de polarisation. Lorsque ces actions sont menées de manière indépendante, les films obtenus ne dépassent pas une épaisseur de 200μm, de par la limitation des champs électriques de polarisation. L'équipe de F. MICHERON [42], du Laboratoire Central de Recherche de Thomson-CSF, a mis au point une technique de fabrication de films d'épaisseur plus importante, jusqu'à 2mm. Le procédé

de fabrication consiste à effectuer les opérations d'étirement et de polarisation en même temps. Deux films de PVDF, couplés par une électrode centrale, sont laminés entre deux rouleaux reliés à la masse. L'électrode centrale est portée à un potentiel élevé, le champ électrique régnant dans le matériau étant de l'ordre de 1MV/cm. Le dispositif est thermostaté, à une température de 75°C environ, c'est à dire à une température légèrement supérieure à la température de Curie du matériau (70°C).

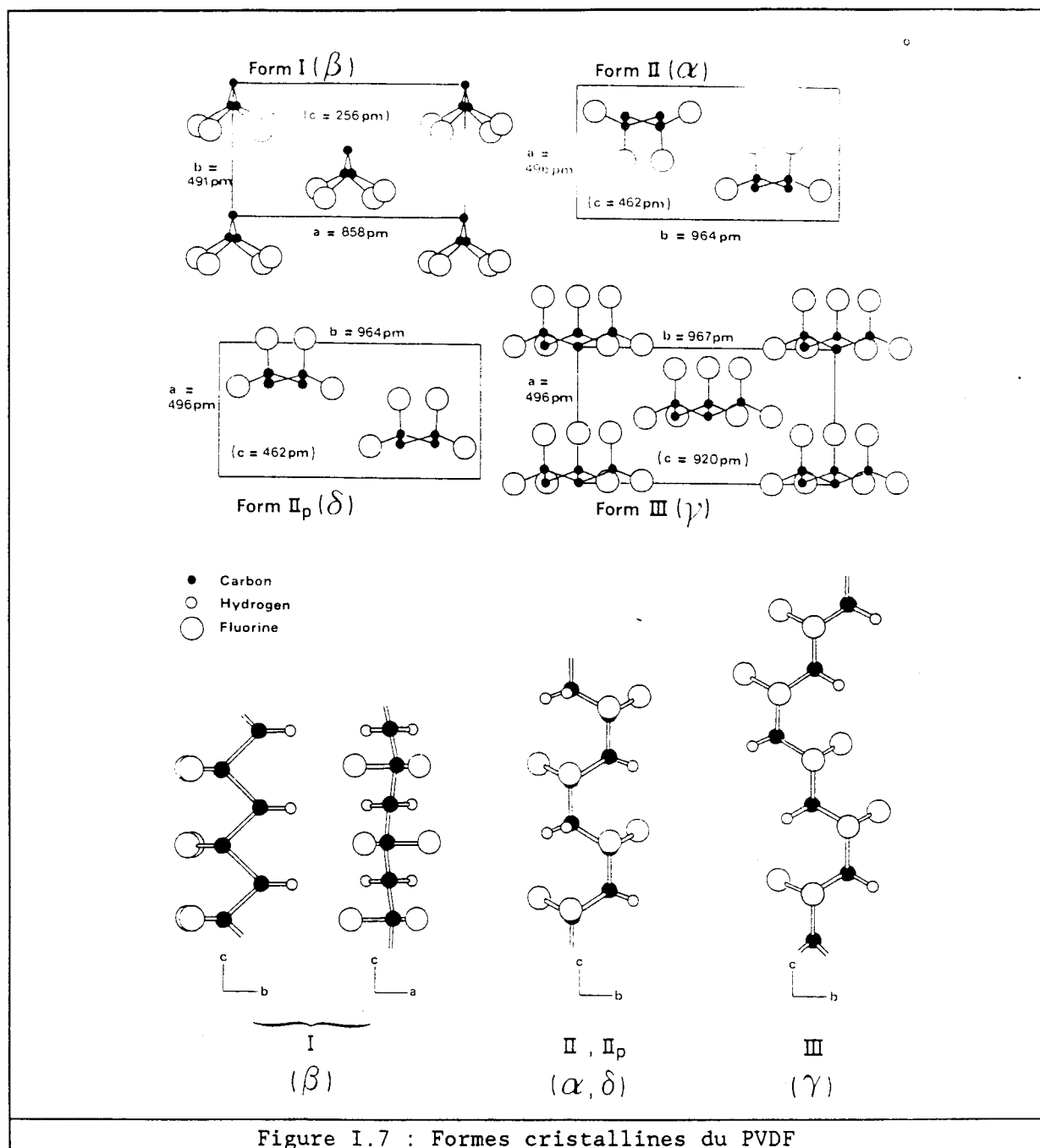
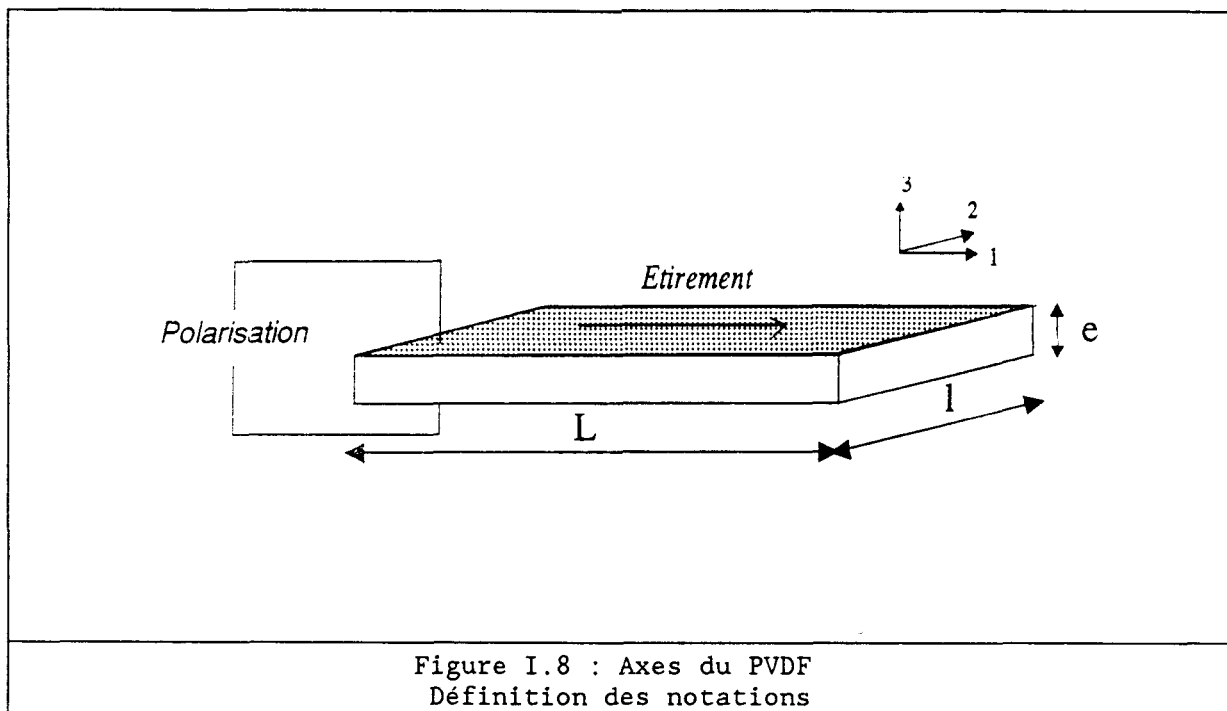


Figure I.7 : Formes cristallines du PVDF

Le comportement du PVDF polarisé et non étiré peut être assimilé à celui d'un cristal de classe 6mm, alors que le PVDF étiré se comporte comme un cristal de classe 2mm [42]. La figure I.8 définit les notations

classiques des axes du PVDF. M. TAMURA [43] propose une réduction de la matrice des flexibilités du PVDF basée sur le fait que l'opération de polarisation affecte de manière mineure les propriétés du matériau. La matrice des flexibilités est alors donnée par la figure I.9.



$$\begin{pmatrix} s_{11} & s_{12} & s_{12} & & & \\ s_{12} & s_{22} & s_{23} & & & \\ s_{12} & s_{23} & s_{22} & & & \\ & & & 2(s_{22}-s_{23}) & & \\ & & & & s_{66} & \\ & & & & & s_{66} \end{pmatrix}$$

Figure I.9 : Tenseur simplifié des compliances du PVDF

Cette simplification permet de ne considérer que 6 termes mécaniques au lieu de 9.

Le tableau I.10, établi d'après les données de G.M. SESSLER [37], permet d'établir une comparaison entre les propriétés du PVDF et celles des matériaux piézoélectriques et pyroélectriques les plus communément utilisés.

matériau	masse volumique kg/m ³	constante diélectrique relative	constante piézo pC/N	constante piézo nC.m/N	constante pyro p $\mu\text{C.K}^{-1}.\text{m}^{-2}$	coeff couplage K en %
PVDF	1760	11	$d_{31} = 20$	$g_{31} = 200$	40	16
PVF	1380	5	$d_{31} = 1$	$g_{31} = 20$	10	3
PZT-5	7750	1700	$d_{31} = 171$	$g_{31} = 11$	60-500	34
BaTiO ₃	5700	1700	$d_{31} = 78$	$g_{31} = 5$	200	21
Quartz	2660	4.5	$d_{11} = 2$	$g_{11} = 50$		9
TGS	1700	50			350	

I.10 : Comparaison des propriétés piézoélectriques et pyroélectriques de quelques matériaux [37].

Les conditions dans lesquelles sont effectuées les opérations de polarisation et d'étirement du PVDF influent grandement sur les propriétés de celui-ci. Il semble que l'uniformité de la polarisation rémanente ne soit atteinte que pour des champs de polarisation intense [44]. L'augmentation du taux d'étirement du matériau fait naître une dissymétrie qui fait croître l'anisotropie, la vitesse de propagation dans le sens d'étirement étant de ce fait toujours supérieure à celle dans le sens transverse. Les coefficients de Poisson ν_{21} et ν_{31} sont donc également fonction de ce taux. Il en est de même pour la permittivité diélectrique [44].

Les propriétés du PVDF évoluent peu en fonction de la pression, pour des pressions inférieures à 7MPa [45]. Cependant, lorsque l'on confère au matériau une certaine porosité, la dépendance en fréquence devient nette. Selon B.R. HAHN [46] le coefficient d_{31} ne serait pas sensible à la pression statique, alors que le coefficient d_{32} diminuerait et changerait de signe.

Les évolutions des propriétés du PVDF en température ont été largement étudiées sur des gammes importantes. H. OHIGASHI [47] a rapporté ces évolutions pour des températures comprises entre -200°C et 100°C. Cette gamme de température permet de mesurer les maxima des angles de pertes mécaniques et d'identifier ainsi les températures de transition vitreuse pour les fréquences d'étude. Selon lui, si le coefficient de couplage k_{31} augmente avec la température, les coefficients k_{32} et k_{33} n'y

sont pas sensibles. La modélisation qu'il effectue sur la base du modèle bicomposants (phases amorphe et cristalline) de M. TAKAGANAKI [48] rend bien compte, de manière qualitative, des évolutions observées. T. FURUKAWA et al. [49] rapportent la présence de trois températures de relaxation successives, appelées α , β et γ qui sont respectivement de 50°C, -40°C et -80°C en statique. P. RAVINET [50], en étudiant l'évolution de C'_{33} en température, rapporte un changement de pente de ce coefficient de rigidité qui permettrait d'accéder à T_g .

Les évolutions en fréquence du matériau, de mesure plus difficile, n'ont pas été étudiées de manière aussi importante. D'ailleurs, de nombreux auteurs rapportent des évolutions en température de coefficients dynamiques sans donner de précision quant à la fréquence d'étude. H.G. BROADHURST [37,51] décrit deux relaxations de la permittivité diélectrique relative du PVDF, l'une en très basse fréquence (<1Hz) et l'autre en haute fréquence (10MHz), pour la température ambiante. Elles correspondraient aux relaxations α et β citées plus haut.

Malgré de nombreux travaux sur le sujet, l'origine de la piézoélectricité dans le PVDF n'est pas encore complètement déterminée. Il semblerait qu'elle résulte d'une combinaison de différents phénomènes, la contribution la plus importante provenant de la polarisation intrinsèque des zones cristallines. La différence entre les caractéristiques diélectriques et mécaniques des phases amorphes et cristallines ont certainement une influence sur le phénomène (contributions électrostrictive et dimensionnelle).

La découverte des propriétés du PVDF a induit un essor de synthèse de nouveaux polymères et copolymères. En particulier, le P(VDF-TrFE) copolymère de Fluorure de Vinylidène et de Trifluoroéthylène, plus facile à fabriquer que le PVDF puisqu'il n'est pas nécessaire de l'étirer pour lui conférer un caractère pyroélectrique et piézoélectrique, semble prometteur [52,53].

I.3.3. Les composites piézoélectriques

Le principe de base gouvernant la synthèse d'un composite consiste à combiner les qualités des différents matériaux entrant dans sa composition. En ce qui concerne les composites piézoélectriques, les intérêts sont multiples. La céramique, de coefficient de couplage élevé,

possède comme faiblesse une fragilité importante et une masse volumique élevée. Par ailleurs, le coefficient piézoélectrique hydrostatique d_h qui s'exprime comme la combinaison $d_{33} + d_{31} + d_{32}$ est peu élevé, puisque cette combinaison s'annule pratiquement. Il en est de même pour le coefficient g_h . Or, ce sont ces coefficients qui gouvernent la sensibilité de la plupart des hydrophones. Les polymères, de coefficients diélectriques et piézoélectriques plus faibles sont, quant à eux, d'une souplesse bien plus grande.

On distingue plusieurs types de composites. Le développement des composites céramique-céramique pourrait permettre l'obtention d'une réponse linéaire sous champ électrique important et la conception de transducteurs ayant une puissance d'émission plus grande pour un encombrement identique. En particulier, les composites dont une phase est à base de niobate de sodium [54] semblent prometteurs. Le terme "céramique composite" recouvre les matériaux constitués d'une matrice à base de polymère dans laquelle des grains de céramique sont répartis de manière plus ou moins uniforme. Certaines d'entre elles [55] semblent présenter des caractéristiques dépendant peu de la pression et offrent une bonne compatibilité avec les fluides de couplage acoustique communément utilisés. Les composites structurés présentent des caractéristiques de périodicité et sont identifiés selon leur connectivité [56]. Pour un solide hétérogène, la connectivité représente la manière dont chacun des composants s'étend selon 0, 1, 2 ou 3 dimensions. Par exemple, un composite céramique-polymère de connectivité 1-3 est constitué de barreaux de céramique noyés dans une matrice de polymère. Le type de connectivité de chacun des composants ainsi que leurs propriétés respectives déterminent les propriétés physiques du composite résultant. Ainsi, un composite céramique-polymère de connectivité 3-1 constitué de barreaux de polymère alignés dans une matrice de céramique perpendiculairement à la direction de polarisation peut posséder un coefficient d_h cinq fois plus élevé que celui de la céramique correspondante, et un coefficient g_h multiplié par dix. Ceci est dû à une diminution importante des coefficients g_{31} et g_{32} . Certains composites céramique-polymère de connectivité 1-3 ont été largement étudiés, notamment par l'équipe de R.E. NEWNHAM [57]. Ils sont constitués de barreaux de céramique PZT alignés parallèlement à la direction de polarisation et enrobés d'une matrice de polymère. La dépendance de leurs propriétés en pression est moindre que celle des composites 3-1 décrits précédemment. Le tableau I.11 repris d'après les données de R.Y. TING [55] permet de comparer les coefficients d_h et g_h de différents matériaux. Les composites

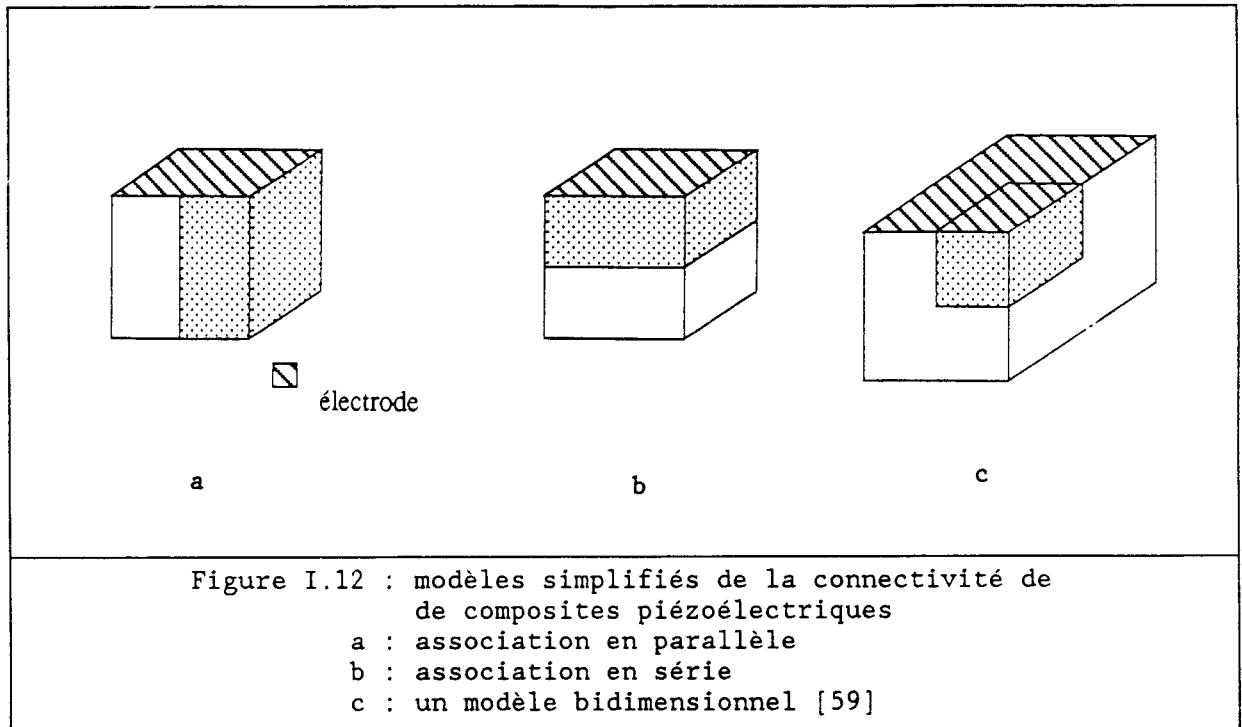
représentés sont ceux qui ont été décrits ci-dessus. Les valeurs numériques sont celles de produits spécifiques et ne peuvent être prises comme valeurs référence d'un type de composite.

matériau	d_h en pC/N	g_h en mV.m/N
PZT-4	43	4
PZT-5	21	2
Composite 3-1	176	21
Composite 1-3	13	25
PZT poreux	32	50
céramique souple	22	47
PVDF	10	112

Tableau I.11 : Comparaison des coefficients piézoélectriques de quelques matériaux [55]

Le grand intérêt manifesté pour les qualités de ces composites ne peut cependant pas faire oublier les difficultés de fabrication liées à leur structure. Ainsi, même si le composite 3-1 décrit ci-dessus présente des propriétés séduisantes lorsqu'il est fabriqué en laboratoire, le passage à une production industrielle présente des difficultés, puisque les barreaux doivent être alignés exactement selon l'axe de polarisation.

L'optimisation de la conception de ces composites passe par la prédiction de leurs propriétés, c'est à dire par une modélisation du comportement des matériaux multiphases. De nombreux modèles à deux ou trois dimensions ont été développés [5,54,58]. Deux modèles simples servent de référence. Dans le modèle à phases parallèles, les composants sont disposés en couches perpendiculaires aux électrodes. Dans le modèle "série", les électrodes sont parallèles aux couches des composés (figure I.12). Dans ce modèle, la présence d'une phase de flexibilité plus élevée que celle des céramiques rend le coefficient g_{33} du composite largement supérieur à celui de la céramique correspondante. Les constantes caractéristiques du composite sont donc une fonction des propriétés respectives des différentes phases, des proportions volumiques des composés et de la connectivité de l'ensemble. Les phénomènes se produisant aux interfaces ne sont pas pris en compte dans ce type de modèles.



D'un point de vue caractérisation, ces matériaux se rapprochent fortement des polymères piézoélectriques. En effet, la présence d'une phase à base de polymère augmente le taux de pertes mécaniques et diélectriques du composé et crée une dépendance en fréquence et en température de ses constantes caractéristiques. La dépendance en pression des propriétés résulte de la différence entre les phases du matériau et peut être importante. Les caractérisations de ce type de matériaux peuvent être menées selon les méthodes qui seront développées ci-après et des exemples sont proposés en annexe D. Pour une utilisation en haute fréquence, dans le domaine de l'imagerie médicale par exemple, le composite ne peut plus être considéré comme un milieu continu, puisque la structure périodique crée un certain nombre de phénomènes spécifiques et des résonances caractéristiques de chacun des composants peuvent être observées [60].

CHAPITRE II

CARACTERISATIONS DE TYPE ELECTRIQUE

METHODES DE MESURE GENERALES

Ce chapitre comporte deux parties distinctes. Dans un premier temps, les méthodes de caractérisation du tenseur des permittivités diélectriques sont exposées, avec les résultats concernant l'évolution en fréquence et température de chacun des termes du tenseur du PVDF. Dans une seconde partie, on présente la méthode de caractérisation des résonances électriques proposée par W. P. MASON [7] pour les céramiques piézoélectriques. On montre comment cette méthode peut être appliquée au cas des piézoplastiques, quelles peuvent être les modifications à apporter dans le calcul des constantes de ce type de matériaux. Les résultats concernant un certain nombre de constantes sont présentés. Une attention particulière est portée sur les limitations inhérentes à ce type de méthode.

II.1 MESURE DU TENSEUR DES PERMITTIVITES DIELECTRIQUES

Le PVDF en phase β présentant un comportement du type des cristaux de la classe orthorhombique 2mm, le tenseur des permittivités diélectriques se réduit à :

$$\begin{bmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{33} \end{bmatrix}$$

Théoriquement, du fait de la piézoélectricité du matériau, il serait nécessaire de préciser que l'on s'intéresse au tenseur $[\epsilon^T]$ ou au tenseur $[\epsilon^S]$ selon que la permittivité est mesurée à contraintes T ou à déformations S constantes. Généralement, avec quelques restrictions liées à la forme de l'échantillon utilisé, on considère que la permittivité mesurée en basse fréquence est une valeur prise à contrainte constante et que les mesures effectuées en haute fréquence le sont à déformation constante. Dans le cas du PVDF, du fait de la variation rapide de ses propriétés avec la fréquence, il est difficile d'effectuer rigoureusement cette distinction. ϵ sera donc la permittivité diélectrique mesurée du matériau, sans référence à une condition mécanique quelconque.

II.1.1. Mesure de ϵ_{33}

La mesure de ϵ_{33} consiste en la détermination de la capacité d'un condensateur plan et de la résistance de fuite qui lui est associée. Cette mesure a été effectuée dans la gamme de fréquence 5Hz-1GHz. Les appareils de mesure sont deux analyseurs de réseau travaillant, le premier dans la gamme de fréquence 5Hz-10MHz (HP4192A), et le second, dans la gamme 1MHz-1GHz (HP 4191A). Ces mesures ont été effectuées au Centre Hyperfréquence des Semi-conducteurs sous la direction de J.P. PARNEIX. Les courbes obtenues sont présentées en figures II.1. et II.2. Elles seront exploitées au chapitre V.

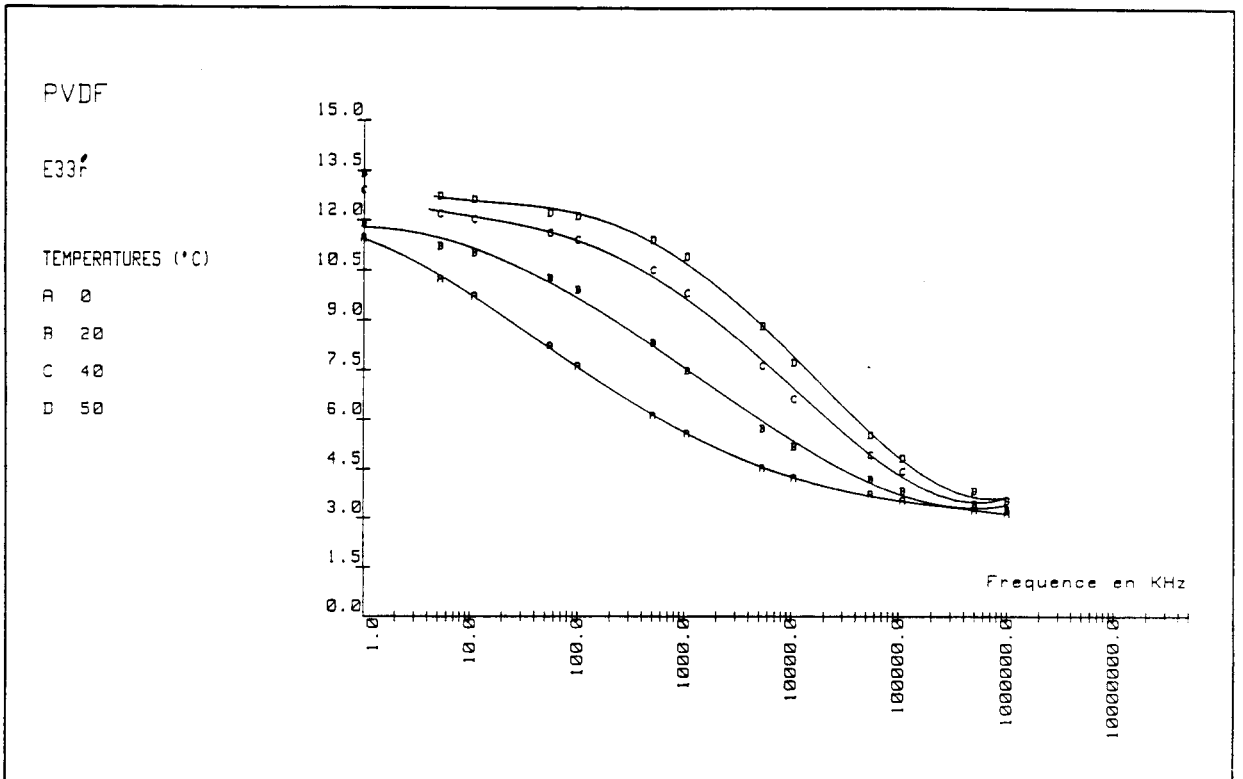


Figure II.1 : Variation avec la fréquence et la température de la permittivité diélectrique relative ϵ'_{33}

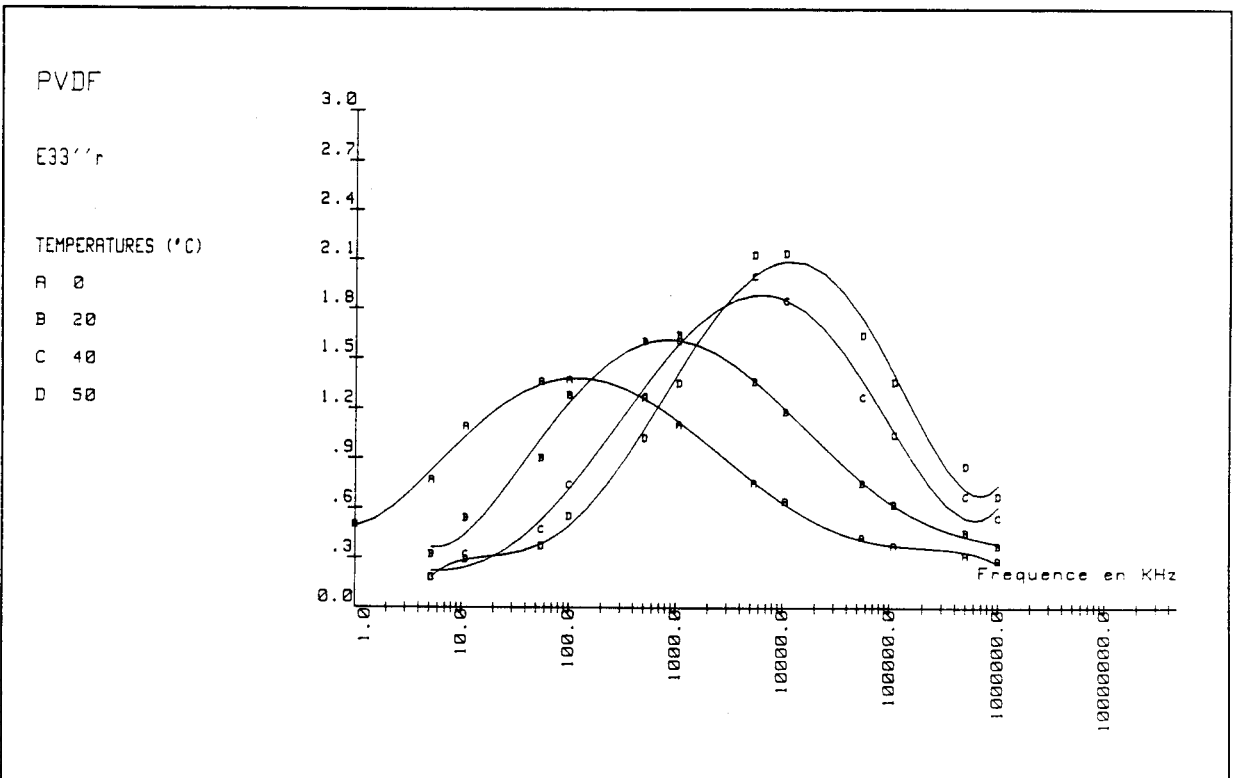
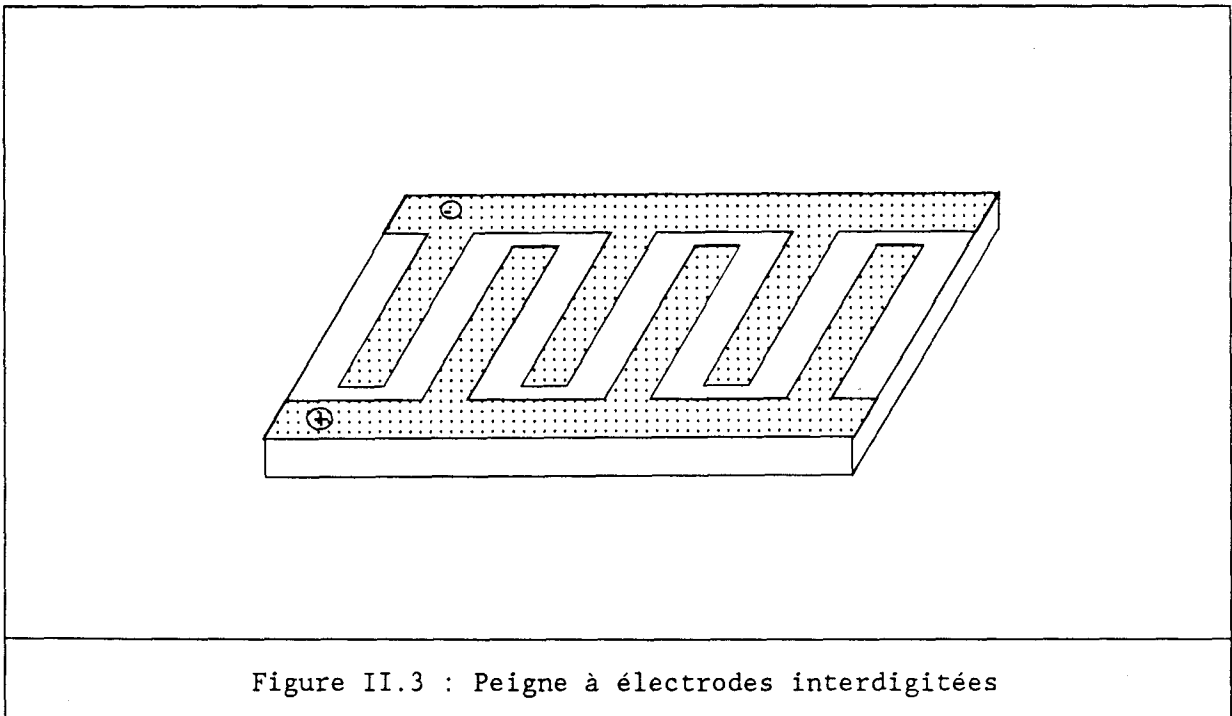


Figure II.2 : Variation avec la fréquence et la température de la permittivité diélectrique ϵ''_{33}

II.1.2. Mesure de ϵ_{11} et de ϵ_{22}

La mesure de ces deux coefficients présente de plus grandes difficultés que celle de ϵ_{33} . Les dimensions géométriques des films de PVDF interdisent en effet, généralement, une mesure directe de la capacité des éprouvettes, qui serait très faible. M. ROYER [61] a proposé une mesure qui consiste en la caractérisation d'un transducteur à électrodes interdigitées (figure II.3).



La capacité d'un tel système est alors estimée à l'aide des résultats de G.W. FARNELL et al. [62]. Cette mesure nécessite la mise en place d'une technique de dépôt des électrodes et se justifie par la faible épaisseur des films étudiés. Nous avons préféré, puisque l'épaisseur des plaques de PVDF que nous utilisons le permettait, utiliser une technique de mesure relative. Celle-ci consiste en la mesure comparative des caractéristiques électriques, avec ou sans échantillon, du condensateur décrit à la figure II.4 .

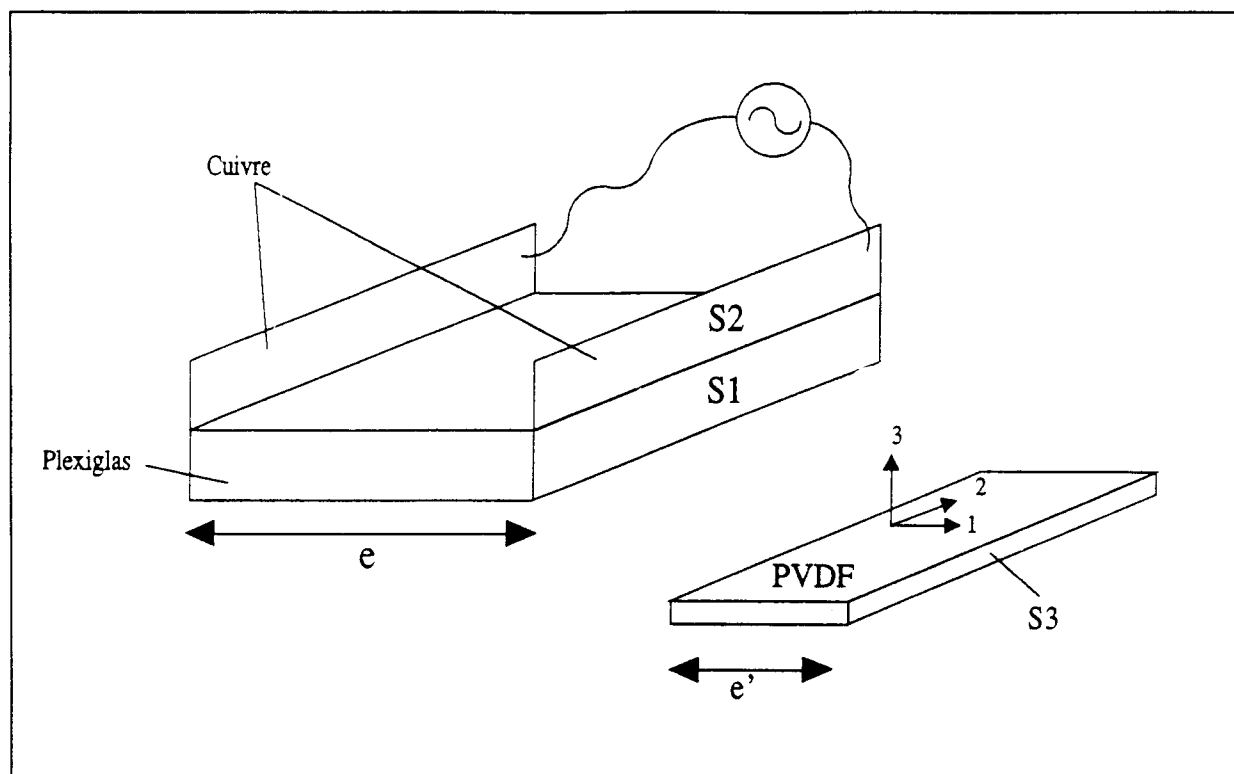


Figure II.4 : dispositif de mesure des permittivités diélectriques ϵ_{11} et ϵ_{22} .

a : condensateur plan dont le diélectrique est constitué d'air et de plexiglas

b : échantillon de PVDF à insérer entre les électrodes

La capacité à vide C_0 est donnée par :

$$C_0 = \epsilon_0 \frac{S2}{e} + \epsilon_0 \epsilon_p \frac{S1}{e} + C_p \quad (\text{II.1})$$

où :

- ϵ_0 est la permittivité diélectrique du vide,
- ϵ_p est la permittivité diélectrique relative du plexiglas,
- S1 est la surface des électrodes en contact avec le plexiglas,
- S2 correspond à la surface des électrodes moins S1,
- e est l'épaisseur entre électrodes,
- C_p correspond aux capacités parasites du dispositif à vide.

La mise en place d'un échantillon de PVDF dans l'espace interélectrode vient modifier cette capacité qui s'écrit alors :

$$C = \epsilon_0 \frac{S2-S3}{e} + \epsilon_0 \frac{S3}{e-e'+e'/\epsilon_{11}} + \epsilon_0 \frac{S1}{e/\epsilon_p} + C'_p \quad (\text{II.2})$$

avec

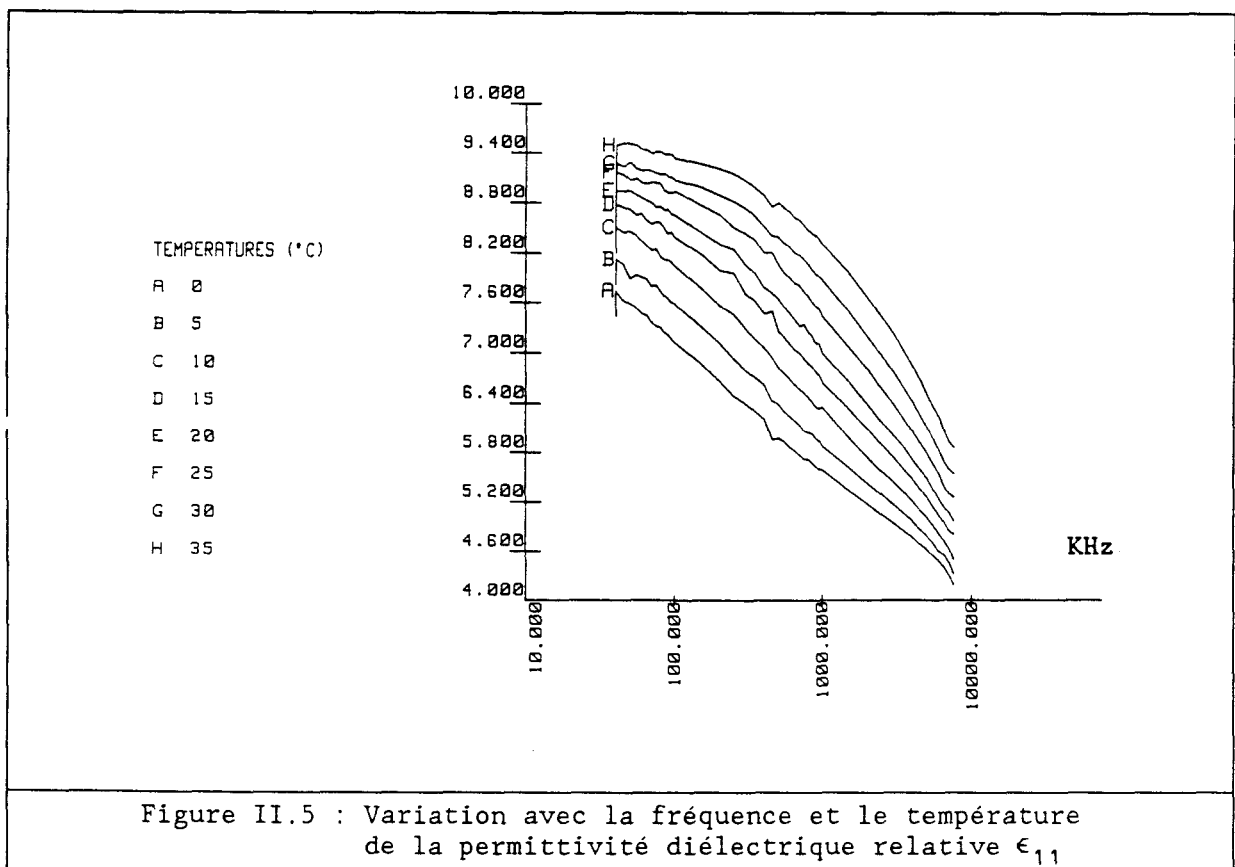
- e' la longueur de l'éprouvette de PVDF,

- S3 la surface de PVDF en regard des électrodes,
- C'_p la capacité parasite du nouveau système.

Si on suppose que les capacités parasites ne sont pas modifiées par l'introduction d'un diélectrique nouveau, C_p et C'_p sont identiques et on obtient :

$$\epsilon_{11} = \frac{e'}{e\epsilon_0 S3} \frac{e\Delta C + \epsilon_0 S3}{e\Delta C + \epsilon_0 S3} + e' - e \quad (\text{II.3})$$

Compte tenu de cette relation, il est clair que la précision de la mesure est gouvernée de manière importante par la précision avec laquelle les dimensions du support et le l'échantillon sont déterminées. Les courbes II.5. à II.8. ainsi que le tableau II.1. présentent les résultats obtenus, ainsi que les erreurs relatives correspondantes. La présence d'une discontinuité aux alentours de 400KHz sera commentée et exploitée au chapitre III.



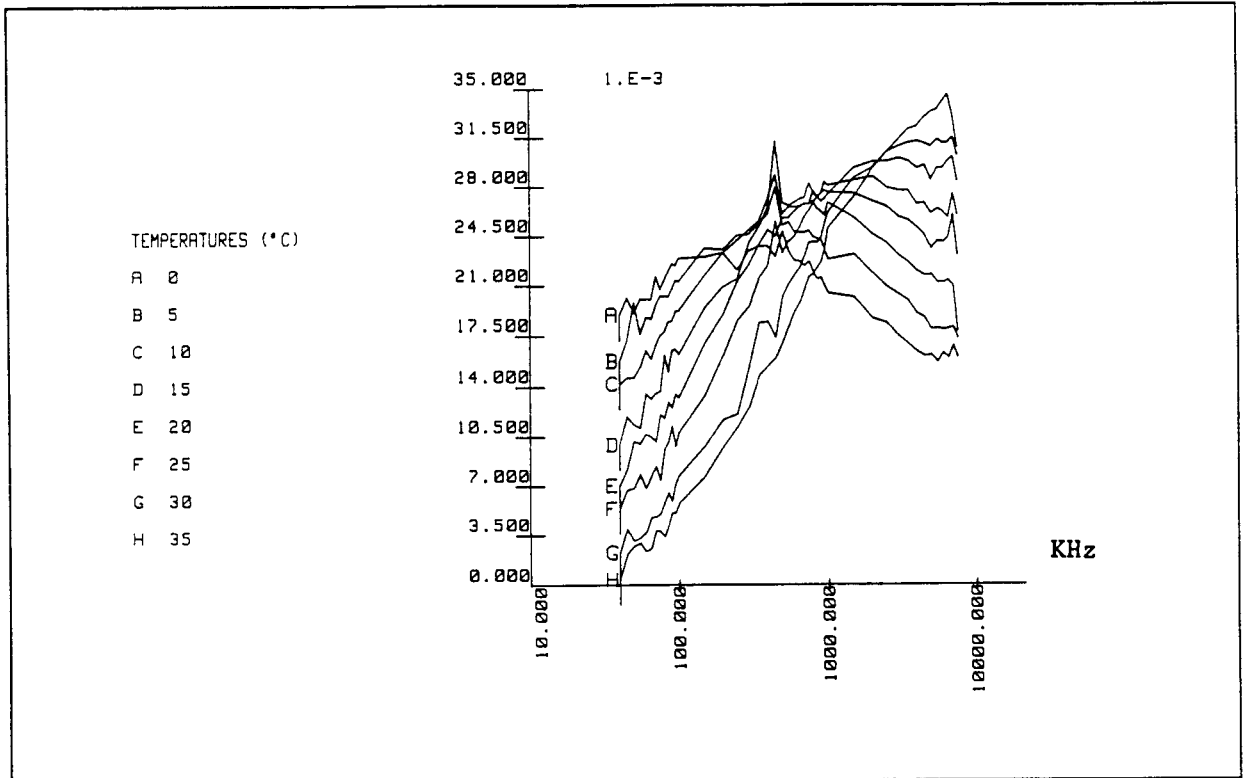


Figure II.6 : Variation avec la fréquence et le température de la tangente de l'angle de pertes associé à la permittivité diélectrique ϵ_{11}

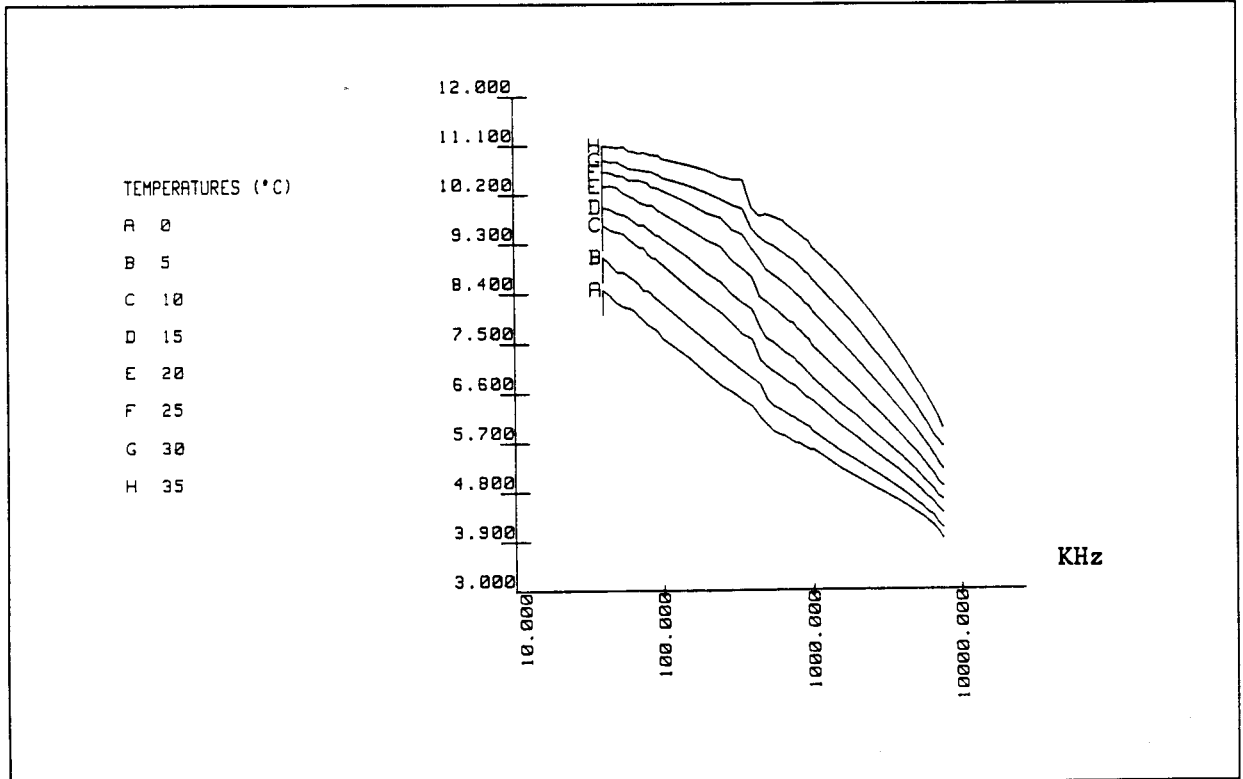
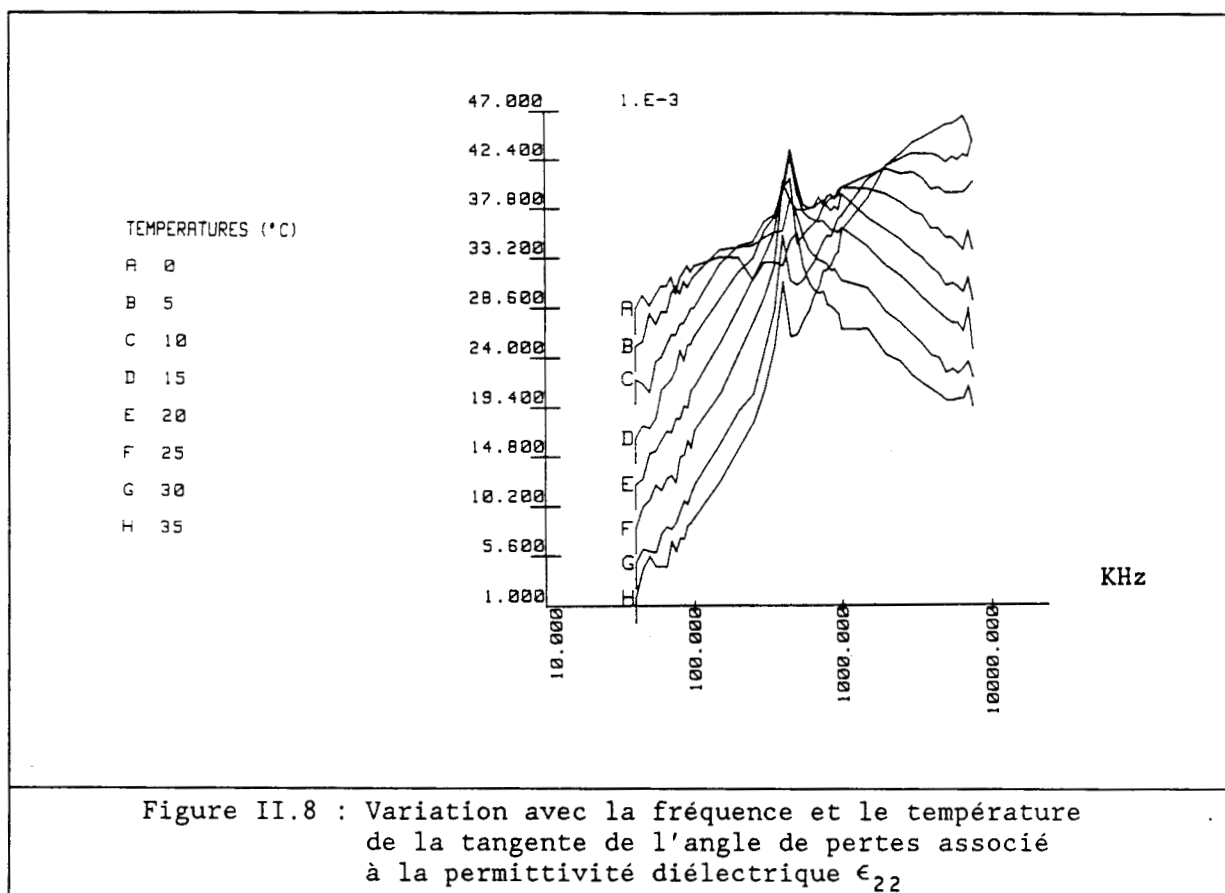


Figure II.7 : Variation avec la fréquence et le température de la permittivité diélectrique relative ϵ_{22}

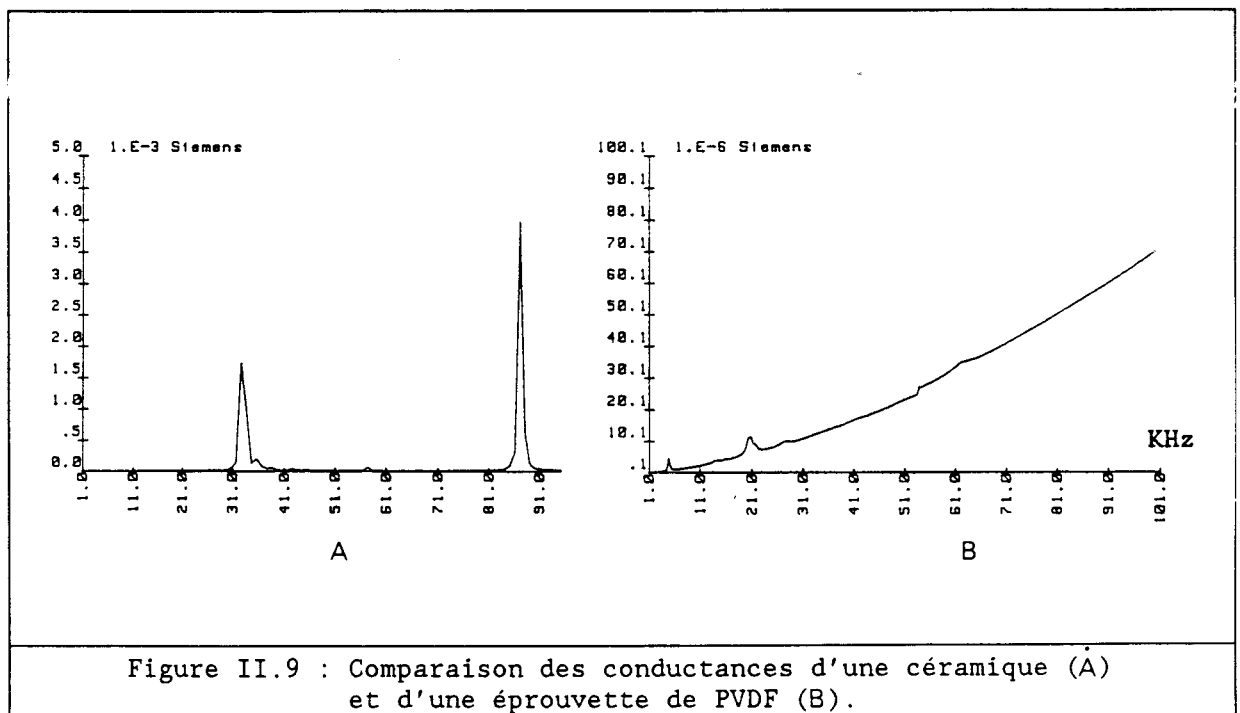


Fréquences	100kHz	1MHz	10MHz
ϵ_{11}	7.4	5.7	4.1
$\Delta\epsilon_{11}$	0.4	0.2	0.2
ϵ_{22}	11.2	7.9	5.2
$\Delta\epsilon_{22}$	0.2	0.2	0.1

Tableau II.1 : Valeurs des permittivités diélectriques relatives ϵ_{11} et ϵ_{22} pour quelques fréquences. Les mesures sont effectuées à température ambiante. Les erreurs indiquées correspondent à la dispersion des résultats obtenus sur différents échantillons

II.2. MESURE DES RESONANCES ELECTRIQUES

Les techniques de mesure rassemblées dans ce chapitre consistent en l'exploitation des réponses électriques d'éprouvettes de formes simples du matériau étudié. De nombreux articles concernant la caractérisation des matériaux piézoélectriques ont été publiés depuis les années 50. Ils traitent essentiellement des céramiques piézoélectriques. La mesure des propriétés de celles-ci a fait l'objet de standardisations successives rassemblées dans les IRE Standarts on Piezoelectric crystals [6,13,63]. Si le PVDF et les céramiques composites sont, eux aussi, piézoélectriques, ils présentent toutefois des caractéristiques bien différentes de celles des céramiques : les figures II.9 et II.10 présentant les conductances et susceptances d'une céramique et d'une éprouvette de PVDF suffisent à illustrer ce propos. Cependant, nous présenterons rapidement les méthodes de mesure dites classiques, et élaborées pour les céramiques, puisqu'elles servent de base de travail pour la caractérisation des piézoplastiques .



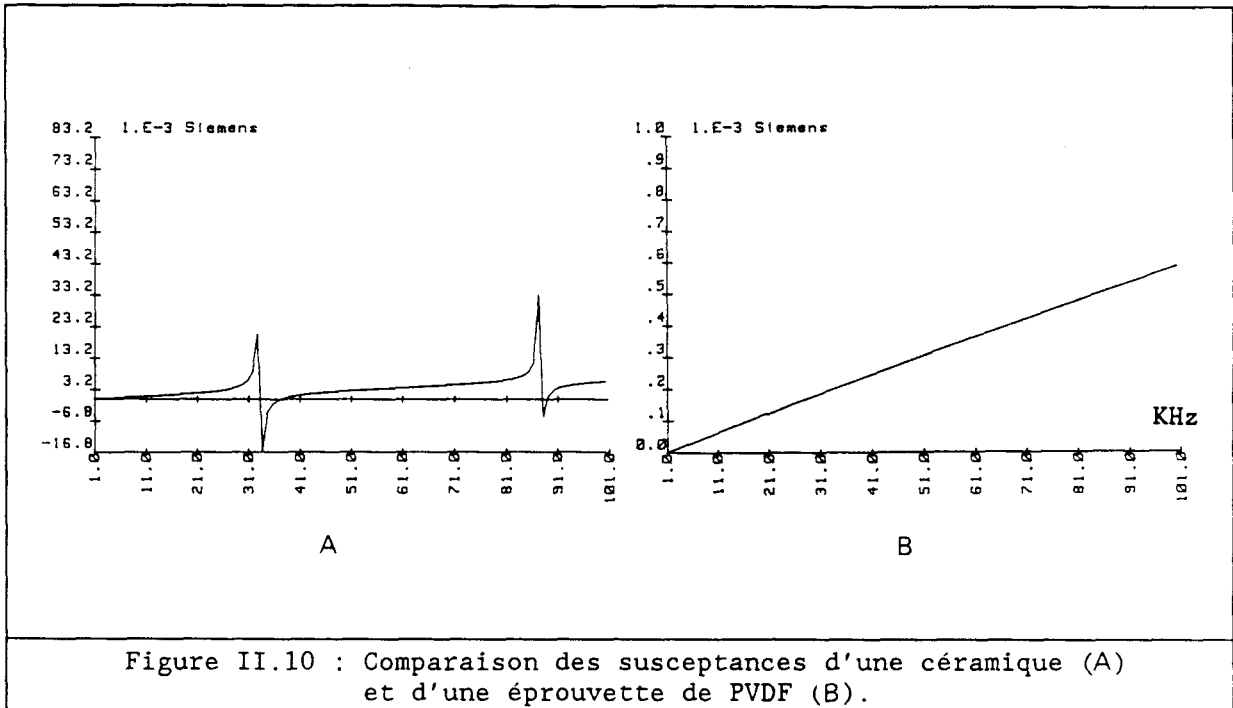


Figure II.10 : Comparaison des susceptances d'une céramique (A) et d'une éprouvette de PVDF (B).

II.2.1. Caractérisation des résonances électriques

La méthode, préconisée par W.P. MASON [7], consiste à favoriser des modes de propagation simples (unidimensionnels ou bidimensionnels) à l'intérieur du matériau, en découpant celui-ci selon des géométries particulières. Les conditions aux limites imposées, tant mécaniques (bords libres ou encastés) qu'électriques, permettent de choisir le tenseur électromécanique qui décrit le système de la manière la plus simple.

Considérons par exemple le cas d'une plaque piézoélectrique mince d'un matériau de tenseur 2mm dont un côté est très grand devant l'autre (figure II.11).

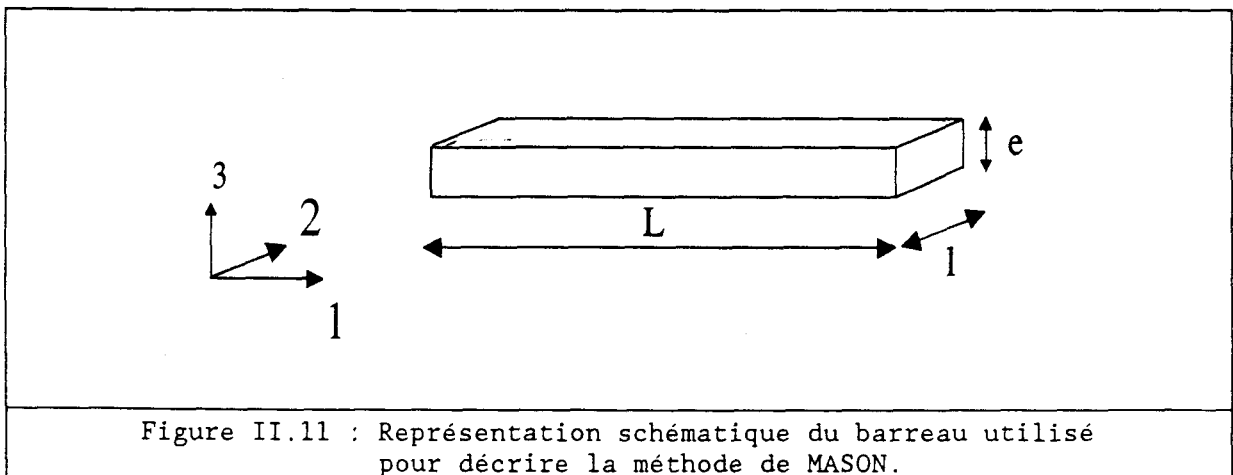


Figure II.11 : Représentation schématique du barreau utilisé pour décrire la méthode de MASON.

On cherche à exciter électriquement le mode fondamental de dilatation-compression selon la direction 1. Cette excitation est possible puisque le tenseur contient un terme piézoélectrique couplant la composante E_3 du champ électrique et la composante T_1 du tenseur des contraintes mécaniques. Si le matériau n'est soumis à aucune force extérieure, si les dimensions latérales l et e sont petites devant L , alors les contraintes T_2, T_3, T_4, T_5 et T_6 sont nulles ou négligeables. De même, seul le champ électrique E_3 doit être pris en compte. On utilise donc le tenseur exprimant les composantes de la déformation et du déplacement électrique en fonction des composantes de la contrainte et du champ électrique. Les équations de la piézoélectricité se réduisent à :

$$\begin{aligned} S_1 &= s_{11}^E T_1 + d_{31} E_3 \\ D_3 &= d_{31} T_1 + \epsilon_{33}^I E_3 \end{aligned} \quad (\text{II.4})$$

En exploitant ces relations et en résolvant l'équation fondamentale de la dynamique, on calcule aisément l'expression de l'admittance électrique de l'éprouvette (Annexe A) :

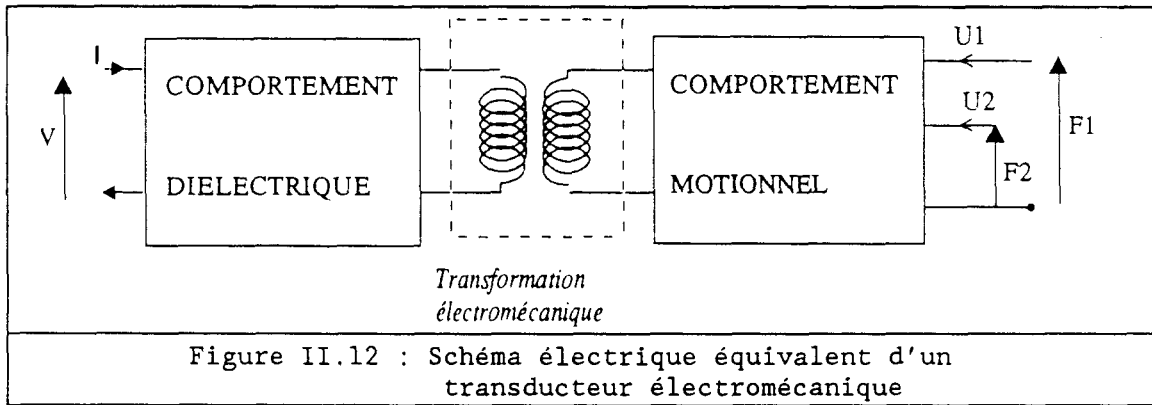
$$Y(\omega) = jC\omega \left(1 - k_{31}^2 + k_{31}^2 \frac{\text{tg}(X)}{X} \right) \quad (\text{II.5})$$

- avec $X = \omega L/2c$
- ω la pulsation
- $C = \epsilon_{33}^I \frac{lL}{e}$
- $c = 1 / (\rho s_{11}^E)^{1/2}$
- $k_{31} = d_{31} / (\epsilon_{33}^I s_{11}^E)^{1/2}$

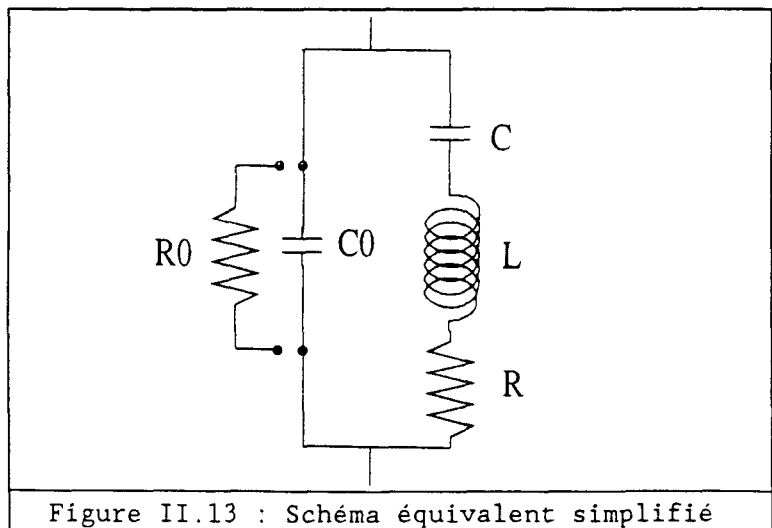
En basse fréquence, on mesure directement ϵ_{33}^I . Pour $X = \pi/2$, $Y(\omega)$ tend vers l'infini. L'identification de la fréquence de résonance correspondante permet de calculer le coefficient de flexibilité s_{11}^E . En basse fréquence, on mesure directement ϵ_{33}^I . A la fréquence d'antirésonance, l'admittance s'annule et on peut déduire de cette fréquence le coefficient de couplage piézoélectrique k_{31} . La mesure des caractéristiques électriques de cette éprouvette permet donc l'identification de ϵ_{33}^I , s_{11}^E , et d_{31} .

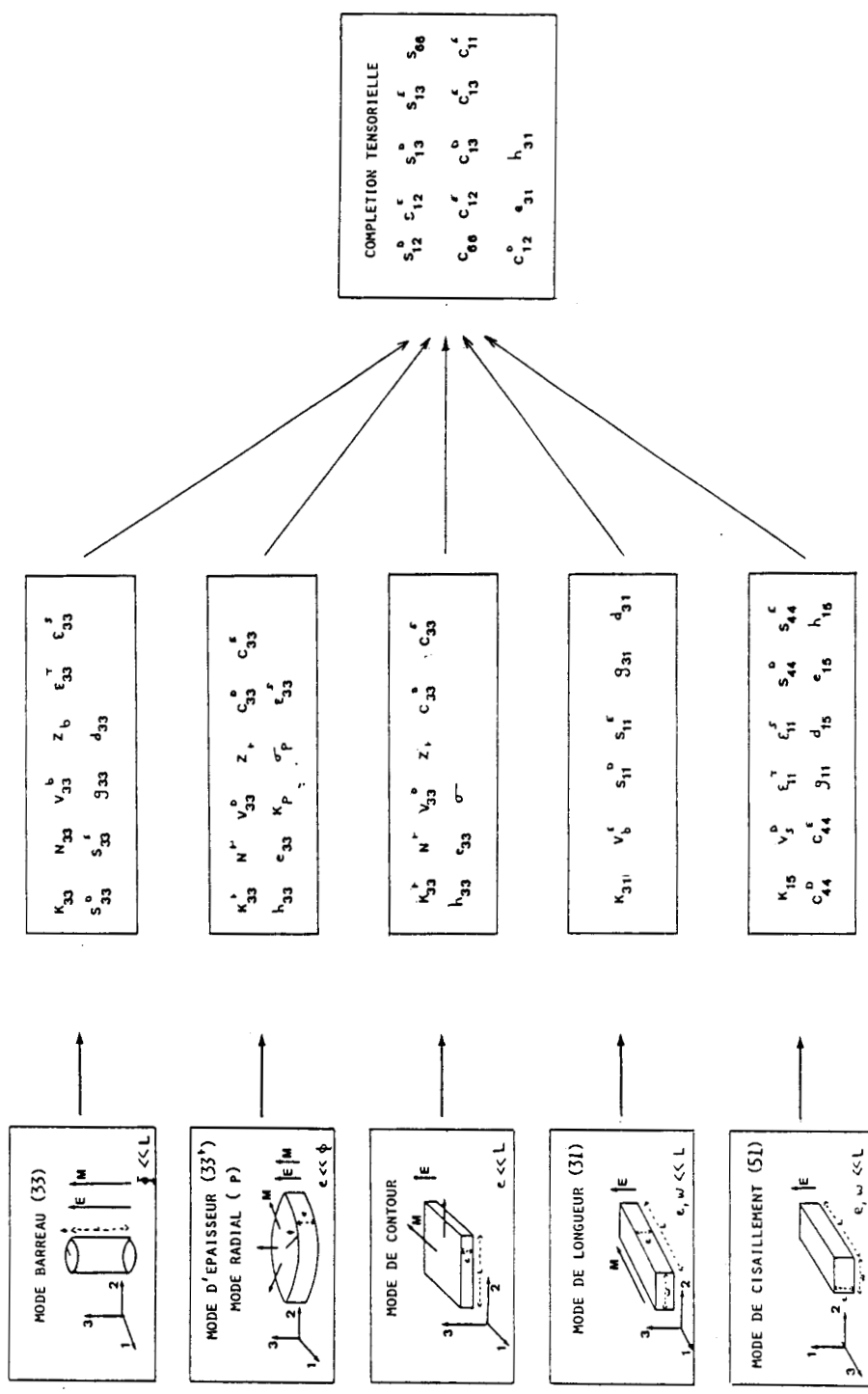
Le tableau II.2. présente les différents types d'éprouvettes couramment utilisés, ainsi que les coefficients du matériau qu'elles permettent d'identifier. Dans le cas des plaques carrées, c'est l'identification de deux modes de contour F_{III} et F_{IV} qui permet d'estimer la valeur du coefficient de Poisson ν [63,64] . Ces éprouvettes sont standardisées dans le cas des céramiques qui se comportent comme des cristaux de classe 6mm.

On exploite souvent pour la détermination des constantes de la céramique une identification de l'admittance mesurée du matériau à un schéma électrique équivalent comportant une partie électrique, une partie mécanique et un transformateur électromécanique : il y a alors analogie entre courant et vitesse, tension et force (figure II.12).



Le cas particulier du schéma équivalent correspondant au cas de propagation traité ci-dessus est traité en annexe A. Dans la plupart des cas, on peut simplifier ce schéma suivant la représentation :





E : Champ électrique
M : Sens de propagation

Tableau II.2 : Présentation synoptique des éprouvettes de caractérisation de céramiques piézoélectriques.

C_0 représente le comportement diélectrique du matériau. La branche L-C appelée branche motionnelle, décrit la prise en compte de la piézoélectricité du matériau. La modélisation des pertes diélectriques et mécaniques s'effectue en introduisant les résistances R_0 et R . Pour les matériaux ayant peu de perte, l'identification des paramètres caractéristiques du cercle de KENNELY (figure II.14) est un bon moyen d'extraction des coefficients. Dans le cas de matériaux présentant peu de pertes, les fréquences f_m , f_s et f_r peuvent être confondues, ainsi que f_n , f_p et f_a .

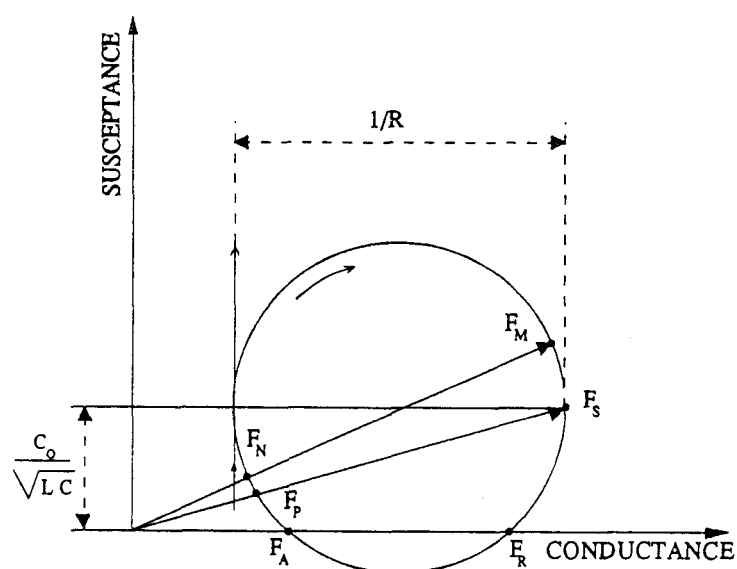


Figure II.14 : Représentation schématique des Cercles de KENNELY et définition des fréquences f_m et f_n (max. et min. de l'admittance), f_s et f_p (fréquences de résonance série et parallèle), f_A et f_R (fréquences où la susceptance est nulle)

Si la méthode de mesure préconisée par les IRE Standards permet une identification rapide des coefficients du matériau, R. HOLLAND et E.P. EER NISSE [65] proposent une exploitation plus précise de la mesure de son admittance, qui utilise notamment les informations de phase. J.G. SMITS [66,67] propose, lui, une méthode itérative de calcul des parties imaginaires et réelles des coefficients. D'autres auteurs suggèrent des schémas équivalents plus complexes, qui tentent de tenir compte plus exactement des pertes diélectriques [68]. Ces derniers auteurs supposent, dans leurs calculs, la présence de pertes piézoélectriques non

négligeables.

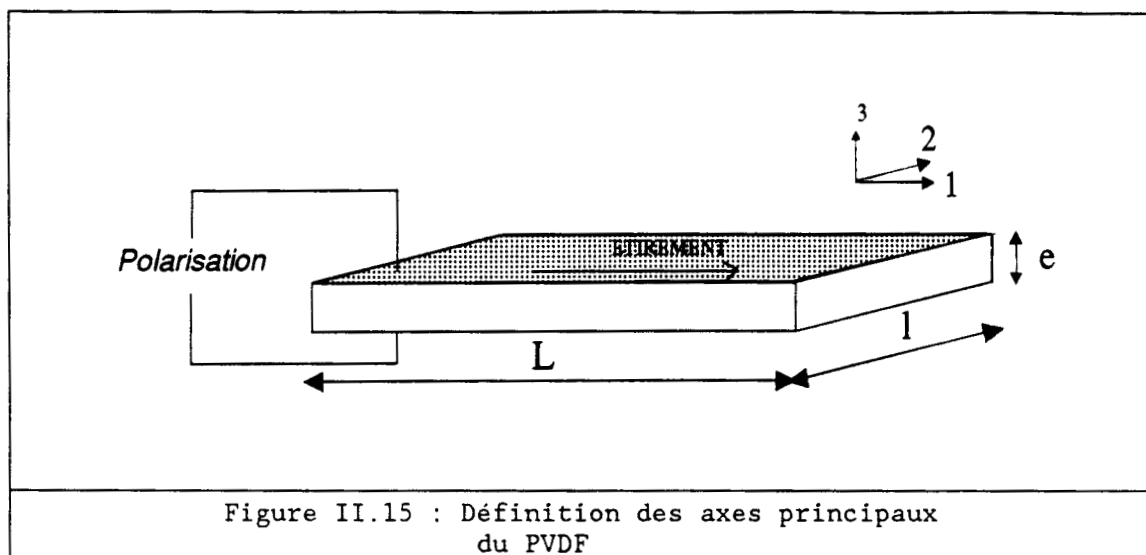
Plus récemment, P. TIERCE et al. [69,70] ont proposé une méthode originale de détermination des caractéristiques des céramiques. Cette méthode consiste en la mesure des fréquences de résonance et d'antirésonance de tous les modes d'un disque de céramique dont l'électrode est segmentée. Parallèlement, le calcul de ces modes est effectué à l'aide de la méthode des éléments finis avec le code ATILA [9]. Une procédure d'ajustage permet alors d'identifier toutes les constantes caractéristiques du matériau. Cette méthode ne nécessite pas la découpe d'éprouvettes de formes variées et ne requiert qu'une mesure soignée pour une seule éprouvette. Si elle est sensible pour les constantes principales du matériau, elle l'est toutefois beaucoup moins pour les coefficients de cisaillement. De plus, elle n'a pas été exploitée pour une mesure des angles de pertes. Sous sa forme actuelle, elle ne peut donc pas être adaptée à la caractérisation des polymères piézoélectriques, compte tenu de l'importance des pertes de ces matériaux.

II.2.2. Caractérisations électriques des matériaux à pertes

L'identification des constantes caractéristiques du PVDF à partir de la mesure de ses résonances électriques a été menée pour la première fois par H. OHIGASHI en 1976 [47] sur des éprouvettes provenant de KUREHA CHEMICAL INDUSTRY and Co. Depuis lors, ce type de caractérisation a été largement utilisé, pour des polymères et des céramiques composites piézoélectriques [50,71]. Nous présentons dans les paragraphes qui suivent la méthode de mesure et d'extraction des paramètres du matériau que nous avons utilisée et précisons les domaines de validité des résultats présentés.

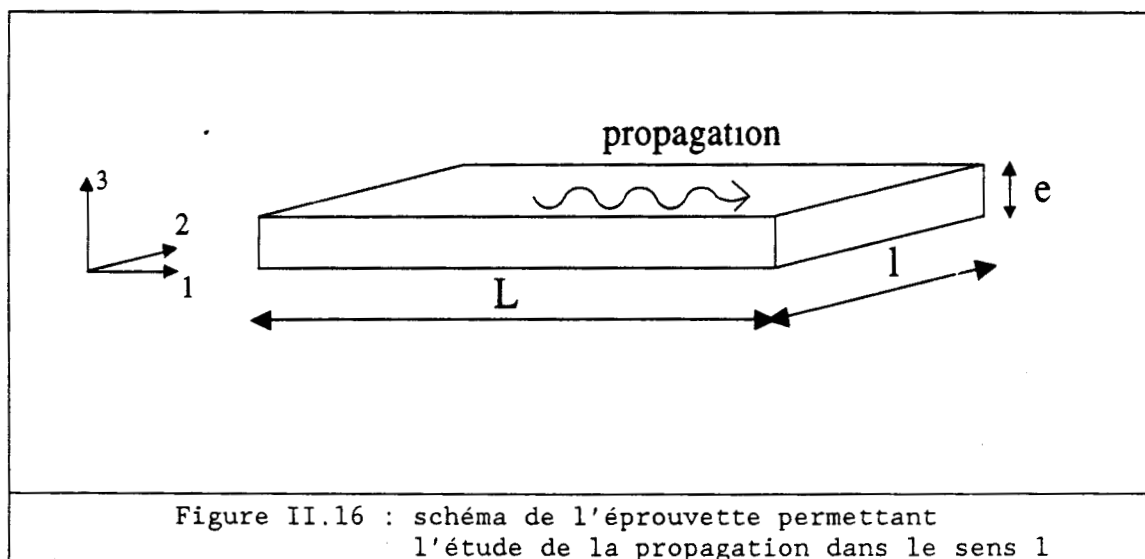
II.2.2.1. Les modes fondamentaux à propagation unidimensionnelle dans le plan

Dans ce qui suit, la notation classique des axes principaux du PVDF est adoptée : la direction d'étirement du matériau est représentée par l'axe 1, la direction de polarisation, normale au plan du film par l'axe 3, la direction perpendiculaire aux deux autres par l'axe 2 (figure II.15).



Cas du mode 31

Pour assurer l'unidimensionnalité de la propagation dans la direction 1, l'éprouvette retenue présente les caractéristiques géométriques suivantes :



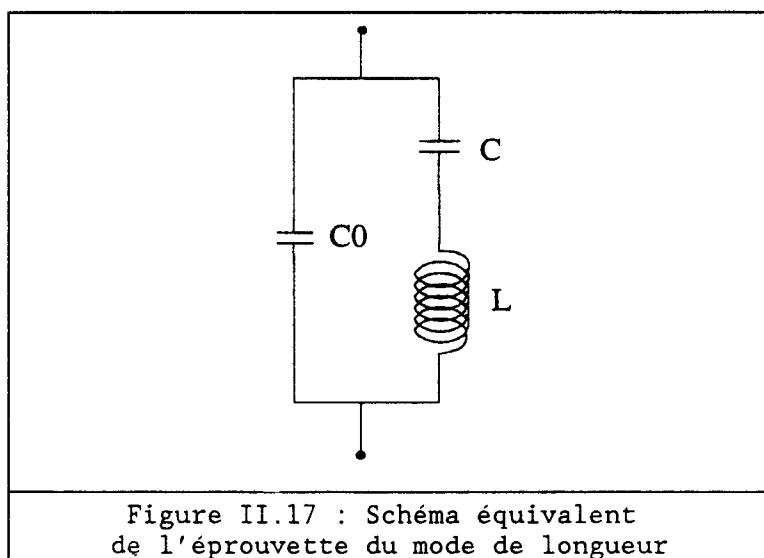
Le calcul de l'admittance d'un tel système a été effectué en II.2.1. Elle s'écrit :

$$Y(\omega) = j \omega \frac{1}{e} L \epsilon_{33}^I \cdot \left(1 - k_{31}^2 + k_{31}^2 \cdot \frac{\text{tg}(X)}{X} \right) \quad (\text{II.6})$$

avec :

$$\begin{aligned}
 - X &= \frac{\omega L}{2v_b}, \\
 - k_{31}^2 &= \frac{d_{31}^2}{\epsilon_{33}^T \cdot s_{11}^E}, \\
 - v_b &= \frac{1}{\sqrt{\rho s_{11}^E}}.
 \end{aligned}$$

Le schéma équivalent de ce système est :



avec :

$$C_0 = \epsilon_{33}^T \cdot (1 - k_{31}^2) \quad (\text{II.7})$$

$$C = \frac{8 K_{31}^2}{\pi^2} \epsilon_{33}^T \frac{l L}{e} \quad (\text{II.8})$$

$$L = \frac{1}{C\omega^2} \quad (\text{II.9})$$

La caractérisation d'une telle éprouvette permet d'atteindre les constantes s_{11}^E, d_{31} , ainsi que l'angle des pertes mécaniques.

Cas du mode 32.

L'échantillon utilisé est toujours une éprouvette de MASON, mais la plus grande longueur est cette fois selon l'axe 2 :

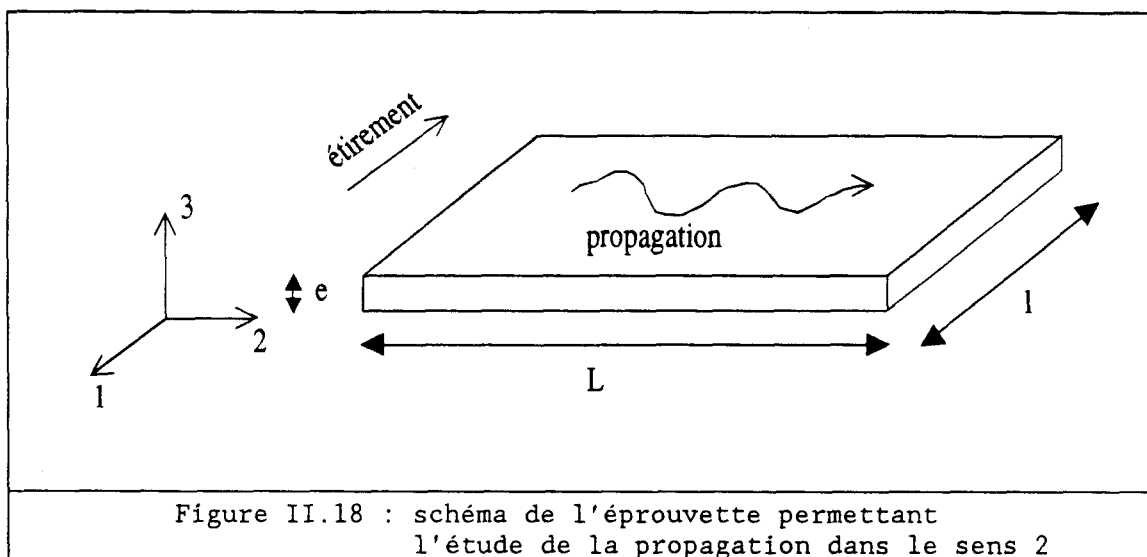


Figure II.18 : schéma de l'éprouvette permettant l'étude de la propagation dans le sens 2

Dans le système d'équations linéaires utilisé, seuls T_2 et E_3 ne sont pas nuls. On obtient alors :

$$\begin{aligned} S_2 &= s_{22}^E \cdot T_2 + d_{32} \cdot E_3 \\ D_3 &= d_{32} \cdot T_2 + \epsilon_{33}^I \cdot E_3 \end{aligned} \quad (\text{II.10})$$

Il s'agit du même système que pour le mode 31, l'indice 1 étant simplement remplacé par 2. La suite des calculs est donc identique et la détermination des paramètres s_{22}^E , d_{32} et $\text{tg}\delta_{m2}$ est conduite comme précédemment.

Cas du mode largeur.

Pour analyser ce mode, on utilise l'éprouvette taillée pour l'étude du mode 31 (figure II.16), et on s'intéresse à la propagation suivant la direction 2. Pour atteindre cet objectif, il faut placer la fréquence de travail au voisinage de $f_1 = v_b/2l$. Comme f_1 est bien supérieure à f_l , la vibration selon 1 est bloquée, et on peut considérer que S_1 est nul. Par ailleurs, seuls T_1 , T_2 et E_3 sont non nuls. Le système d'équations utilisé précédemment devient donc :

$$\begin{aligned} S_1 &= s_{11}^E \cdot T_1 + s_{12}^E \cdot T_2 + d_{31} \cdot E_3 = 0, \\ S_2 &= s_{12}^E \cdot T_1 + s_{22}^E \cdot T_2 + d_{32} \cdot E_3 \\ D_3 &= d_{31} \cdot T_1 + d_{32} \cdot T_2 + \epsilon_{33}^I \cdot E_3 \end{aligned} \quad (\text{II.11})$$

soit encore :

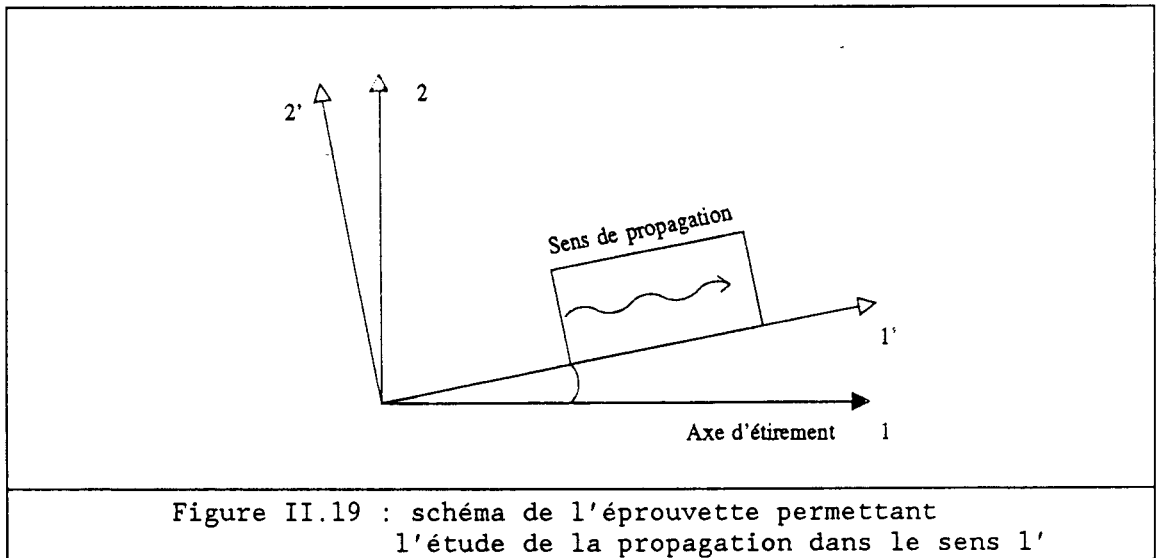
$$S_2 = T_2 \left(s_{22}^E - \frac{s_{12}^E s_{12}^E}{s_{11}^E} \right) + E_3 \cdot \left(d_{32} - d_{31} \cdot \frac{s_{12}^E}{s_{11}^E} \right) \quad (\text{II.12})$$

$$D_3 = T_2 \cdot \left(d_{32} - d_{31} \cdot \frac{s_{12}^E}{s_{11}^E} \right) + E_3 \cdot \left(\epsilon_{33}^I - \frac{d_{31}^2}{s_{11}^E} \right) \quad (\text{II.13})$$

Les relations ci-dessus montrent qu'on obtient le même système que précédemment, en remplaçant s_{11}^E , d_{31} et ϵ_{33}^I par des expressions qui sont fonction de s_{11}^E , s_{22}^E , s_{12}^E , d_{31} , d_{32} . On peut donc obtenir, à l'aide de calculs simples s_{12}^E .

Cas du mode mixte .

On utilise, pour l'étude de ce mode, une éprouvette de MASON dont le plus grand côté fait un angle Φ avec l'axe d'étirement (figure II.19):



Dans le nouveau repère (1',2'), le système de relations constitutives est :

$$\begin{aligned} S_{1'} &= s_{1'1'}^E \cdot T_{1'} + d_{31'} \cdot E_3 \\ D_3 &= d_{31'} \cdot T_{1'} + \epsilon_{33}^I \cdot E_3 \end{aligned} \quad (\text{II.14})$$

Si on exprime $S_{1'}$, en fonction de S_1 , S_2 et S_6 , on obtient :

$$S_{1'} = S_1 \cdot \cos^2(\Phi) + S_2 \cdot \sin^2(\Phi) + S_6 \cdot \cos(\Phi) \cdot \sin(\Phi) \quad (\text{II.15})$$

De même, si on exprime T_1 , T_2 et T_6 en fonction de $T_{1'}$, on montre que :

$$\begin{aligned} T_1 &= T_{1'} \cdot \cos^2(\Phi) \\ T_2 &= T_{1'} \cdot \sin^2(\Phi) \\ T_6 &= T_{1'} \cdot \sin(\Phi) \cdot \cos(\Phi) \end{aligned} \quad (\text{II.16})$$

A partir des relations précédentes, on peut exprimer $s_{1',1'}^E$ et $d_{31'}$:

$$\begin{aligned} s_{1',1'}^E &= s_{11}^E \cdot \cos^4(\Phi) + s_{22}^E \cdot \sin^2(\Phi) + (2 \cdot s_{12}^E + s_{66}^E) \cdot \sin^2(\Phi) \cdot \cos^2(\Phi) \\ d_{31'} &= d_{31} \cdot \cos^2(\Phi) + d_{32} \cdot \sin^2(\Phi) \end{aligned} \quad (\text{II.17})$$

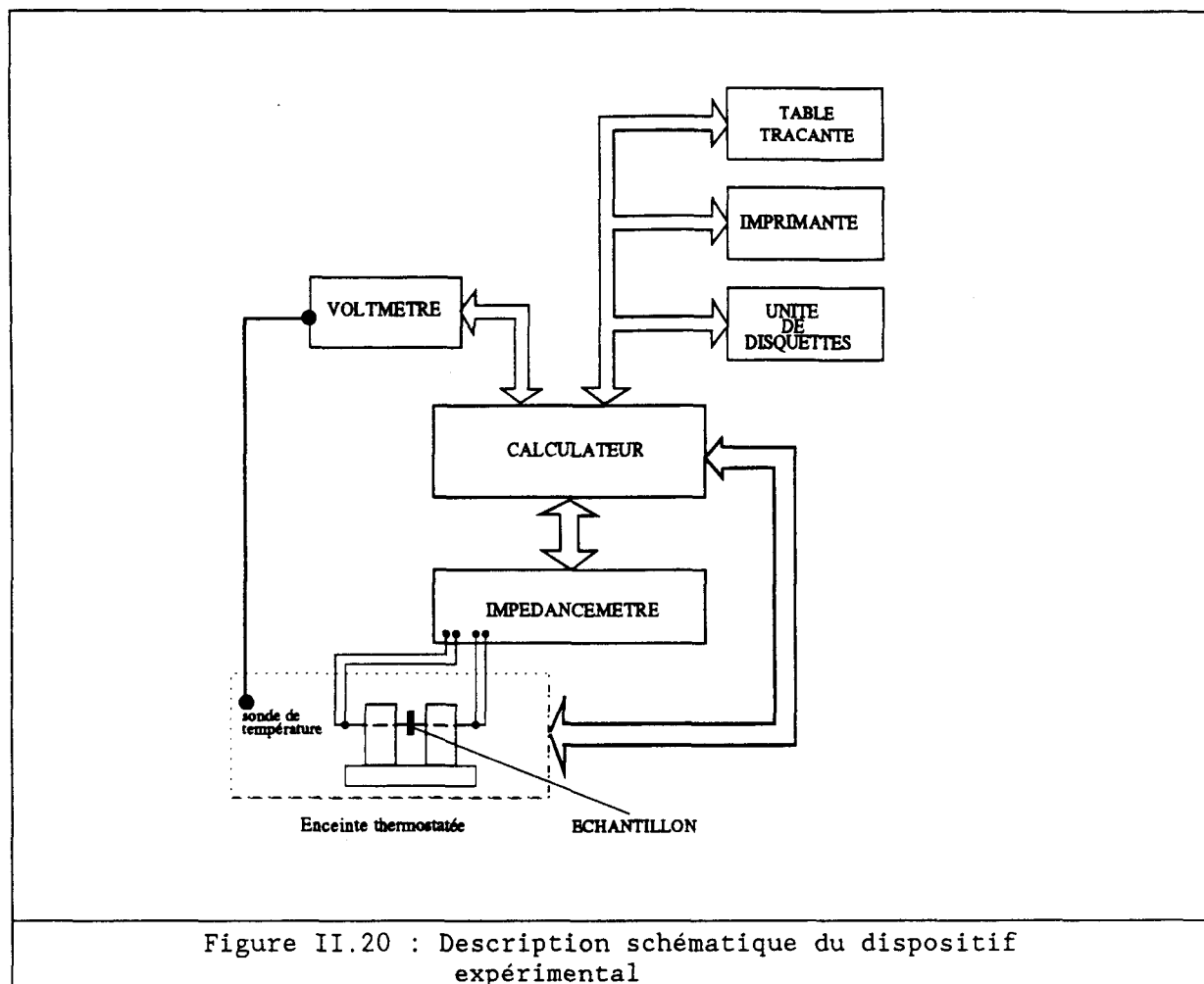
Le système d'équations utilisé étant toujours le même, un traitement identique aux précédents fournit $s_{1',1'}^E$ et $d_{31'}$, dont on déduit s_{66}^E , connaissant tous les autres coefficients par ailleurs.

II.2.2.2. Méthodologie de mesure et d'extraction des coefficients

Description du dispositif expérimental.

La figure II.20 présente le banc de mesure utilisé. Un calculateur HP217 pilote la manipulation, via un bus HP-IB. Il commande :

- un impédancemètre HP4192A. Cet appareil permet la mesure directe des impédances et des facteurs de qualité en fonction de la fréquence. Il balaie une plage de fréquence de 5Hz à 13MHz. La méthode de mesure 4 fils permet de réduire notablement l'influence de la capacité parasite des câbles coaxiaux, en particulier lors de mesures faites avec des échantillons de petite taille.
- une enceinte thermostatée MPC, (gamme de température de -80°C à 150°C , précision de 0.1°C),
- des utilitaires de sortie des données,
- un voltmètre relié à une sonde de température qui fournit une indication complémentaire de la sonde de l'enceinte.



Le support des échantillons a été conçu pour que l'hypothèse des faces libres soit le mieux possible respectée, sachant toutefois que la mesure est une mesure par contact. La solution retenue a été de se servir de pointes à ressort COMATEL utilisées dans les tests de circuits imprimés pour assurer le contact électrique. Ces pointes sont insérées dans un tube de plastique isolant et reliées à des bornes BNC. Le support est en aluminium, il est relié à la masse. Des mesures comparatives ont été effectuées pour tester la qualité de ce système. Par ailleurs, il est nécessaire que les pointes viennent appuyer sur un point de la surface qui soit voisin d'un noeud de vibration ou d'une surface nodale, dont les positions sont fournies par le modèle.

Description de la mesure.

La mesure de l'admittance des éprouvettes a été entièrement automatisée, en particulier à cause des temps nécessaires à la régulation de température. Les critères utilisés pour estimer que les conditions de

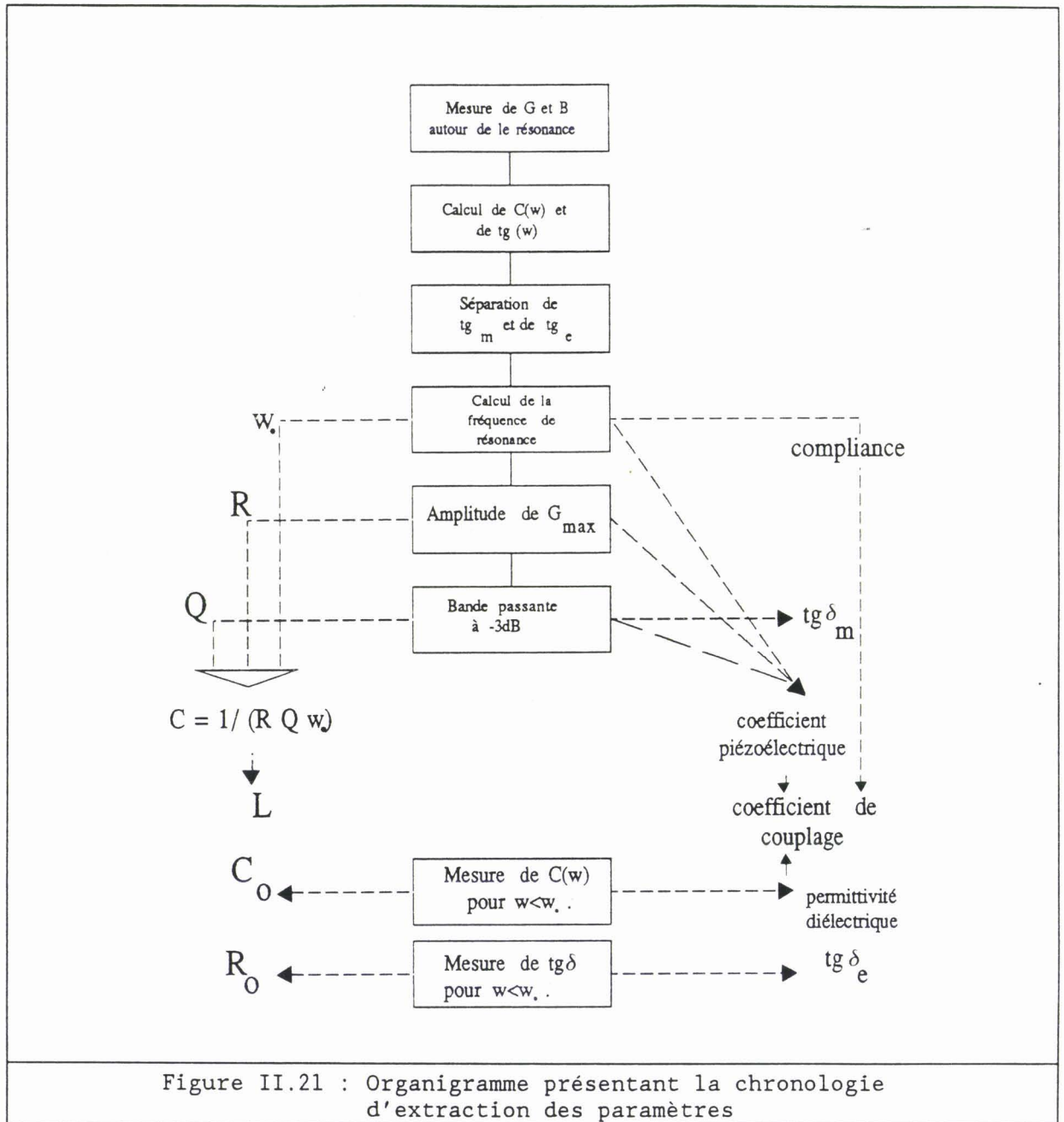
mesure sont stables sont de deux types : le premier concerne la température, la consigne devant être atteinte à moins de 1 degré près. Ce critère atteint, un test de stabilisation de la capacité de l'éprouvette et de l'angle de pertes associé permet de s'assurer que le matériau n'évolue pas. L'admittance du résonateur est séparée en deux parties :

$$Y(\omega) = Y(\omega)_{\text{électrique}} + Y(\omega)_{\text{motionnelle}} = G_E + G_M + j.(B_E + B_M) \quad (\text{II.18})$$

G_M et B_M ne contiennent aucune information quand aux propriétés diélectriques du matériau. Il suffit donc de soustraire G_E et B_E à G et B pour obtenir des courbes qui soient uniquement fonction des paramètres mécaniques et piézoélectriques. Cette procédure peut être menée facilement sur la conductance $G(\omega)$, puisqu'elle consiste alors en une extraction d'un fond continu lentement variable avec la fréquence. En ce qui concerne la susceptance $B(\omega)$, la contribution motionnelle est tellement faible qu'une séparation rigoureuse des deux branches s'avère impossible à effectuer. On aurait pu travailler directement sur $B(\omega)/\omega$ ou encore sur la capacité équivalente du système, mais les variations de la permittivité ϵ_{33} avec la fréquence rendent de toute façon le critère de séparation des deux branches plus difficile à effectuer que sur $G(\omega)$.

La séparation des branches électriques et motionnelles a été effectuée moyennant la modélisation des évolutions de la branche électrique avec la fréquence par un polynôme d'ordre 3. Cet ajustage est effectué à l'aide de la méthode des moindres carrés, sur le fond continu. La méthode est décrite en annexe B. L'organigramme présenté figure II.3 décrit la chronologie de l'opération complète d'extraction des paramètres.

Les coefficients caractéristiques du matériau variant fortement en fonction de la fréquence, il est nécessaire, lorsque le calcul des coefficients se fait moyennant l'utilisation d'autres constantes, de prendre les valeurs obtenues dans la même gamme de fréquence. En particulier, pour déterminer $k_{31}(\omega)$, on utilise une estimation de la permittivité diélectrique ϵ_{33}^I effectuée à une fréquence légèrement inférieure à la fréquence de résonance.



II.2.2.3. Présentation des résultats

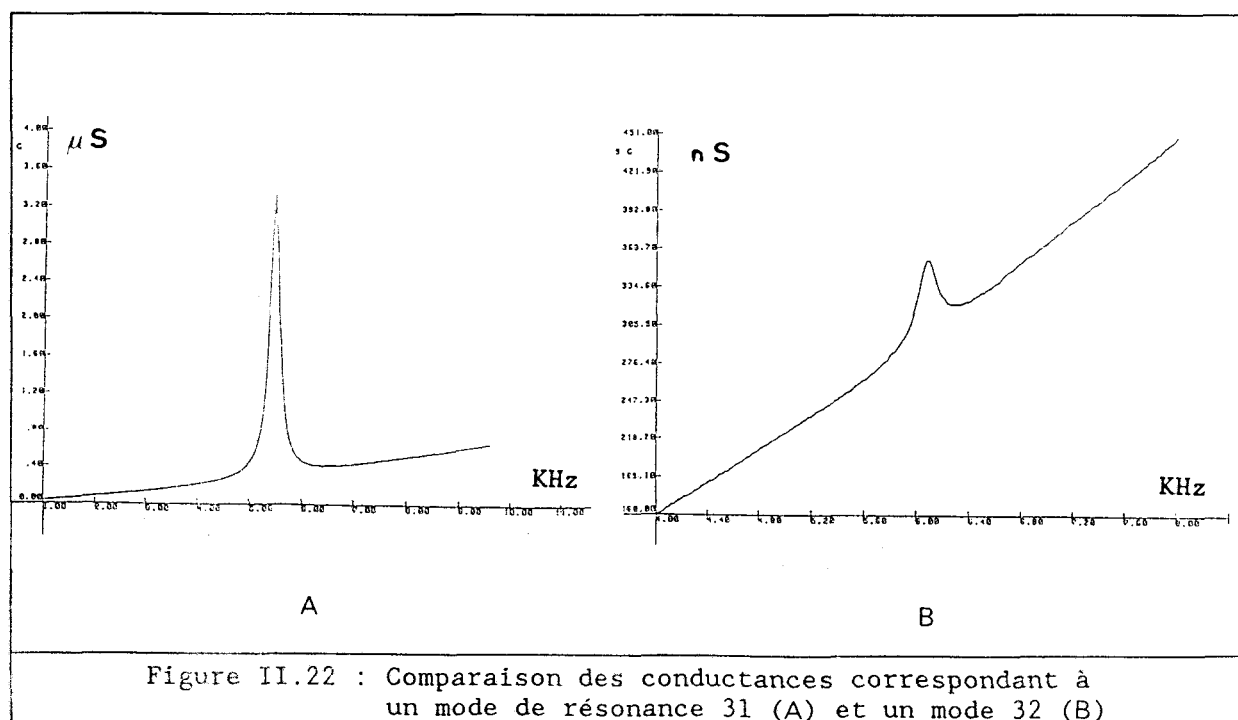
La gamme de température sur laquelle les mesures ont été effectuées s'étend de 0°C à 40°C . C'est une gamme dans laquelle le matériau est susceptible d'être utilisé. Elle est limitée par deux facteurs. La température de Curie du PVDF se situant à 70°C , lorsque le matériau est amené à des températures proches de celle-ci, il subit des transformations importantes. Par ailleurs, pour des températures comprises entre -20°C et -40°C , les électrodes des éprouvettes utilisées deviennent fragiles et s'écaillent.

Pour quantifier les évolutions en fréquence, nous avons découpé des éprouvettes de tailles différentes, puisque la fréquence de résonance est inversement proportionnelle à la longueur de l'échantillon. De par les dimensions des plaques de PVDF disponibles, les limites inférieures des fréquences sont :

- mode 31 : $f_{\min} \cong 2\text{kHz}$ (longueur 300mm),
- mode 32 : $f_{\min} \cong 8\text{kHz}$ (longueur 110mm).

Les limitations pour les fréquences supérieures proviennent de la diminution avec leur taille de la capacité des éprouvettes.

Les courbes II.23 à II.29 présentent les résultats obtenus. Pour chacune, les lettres correspondent aux valeurs effectivement mesurées, les lignes en traits pleins aux valeurs extrapolées par moindres carrés. La mesure du mode 31 ne pose aucun problème majeur puisque ce mode est relativement bien couplé. Par contre, la mesure des coefficients s_{22}^E et d_{32} s'est avérée délicate. En effet, le coefficient de couplage k_{32} est faible et la résonance est difficilement détectable. La figure II.22 présente des résonances 32 et 31 pour comparaison.



Cette mauvaise détermination du mode 32, qu'il n'a été possible de quantifier que sur une plage réduite de fréquence, a des conséquences

importantes. Pour déterminer le coefficient s_{12}^E , on utilise une mesure du mode largeur et on extrait s_{12}^E connaissant, à la fréquence considérée, s_{11}^E et s_{22}^E . La gamme de fréquence sur laquelle s_{12}^E est calculée est donc réduite de manière importante. Par extension, la détermination de s_{66}^E , fonction de s_{11}^E , de s_{22}^E et de s_{12}^E , l'est aussi.

En ce qui concerne les modes de largeur, le principe de base consiste à considérer la propagation selon le côté le plus petit de la plaque, les déformations selon le côté le plus grand étant bloquées. En pratique, il est nécessaire de connaître le rapport de dimensions pour lequel cette hypothèse est à peu près vérifiée. Cette recherche a été effectuée à l'aide d'une modélisation par éléments finis. Les résultats sont présentés en annexe E. La position de la résonance dépend peu du rapport de dimensions. Par contre, l'estimation des pertes mécaniques et du maximum de G_M dépend fortement de ce rapport. On peut montrer que le produit du maximum de G_M par le rapport des angles de pertes mécaniques mesurés et introduits ne dépend plus de celui-ci. Pratiquement, on ne se trouve jamais dans les conditions où les hypothèses de propagation unidimensionnelle sont vérifiées. On peut donc uniquement extraire le coefficient s_{12}^E avec précision de la mesure du mode largeur alors que, a priori, il peut sembler possible d'obtenir une nouvelle détermination de d_{32} à l'aide de la relation :

$$d_{\text{largeur}} = d_{32} - d_{31} \cdot \frac{s_{12}}{s_{11}} \quad (\text{II.19})$$

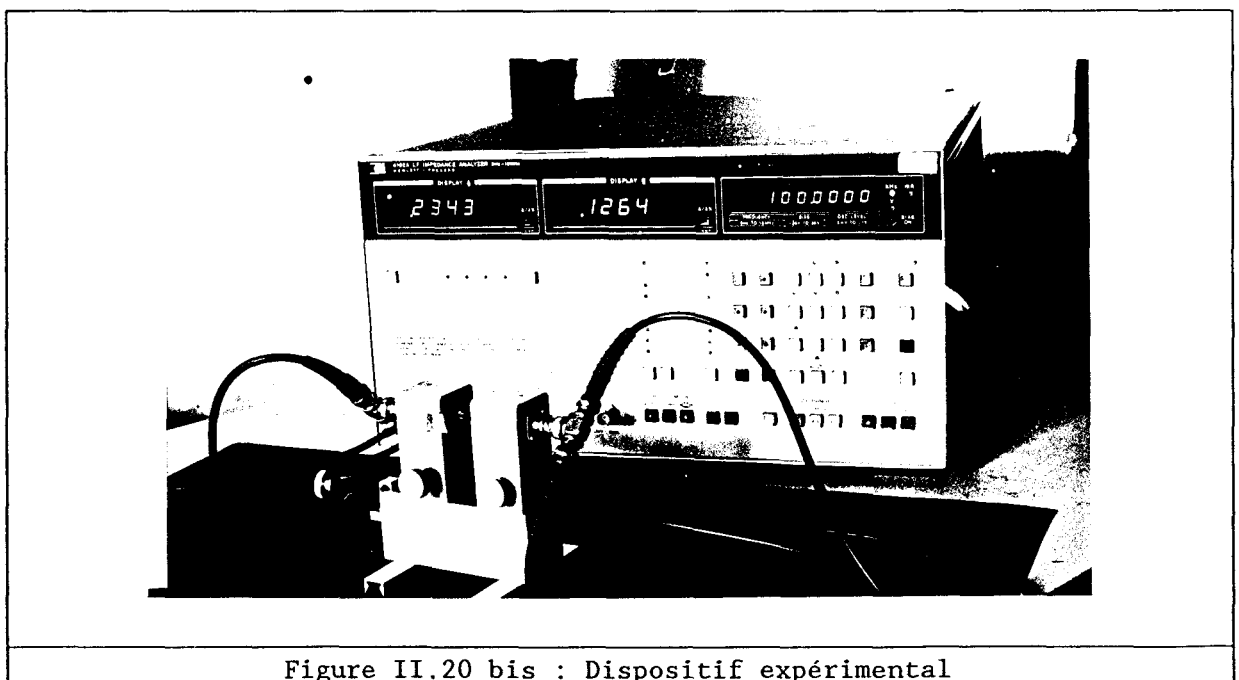
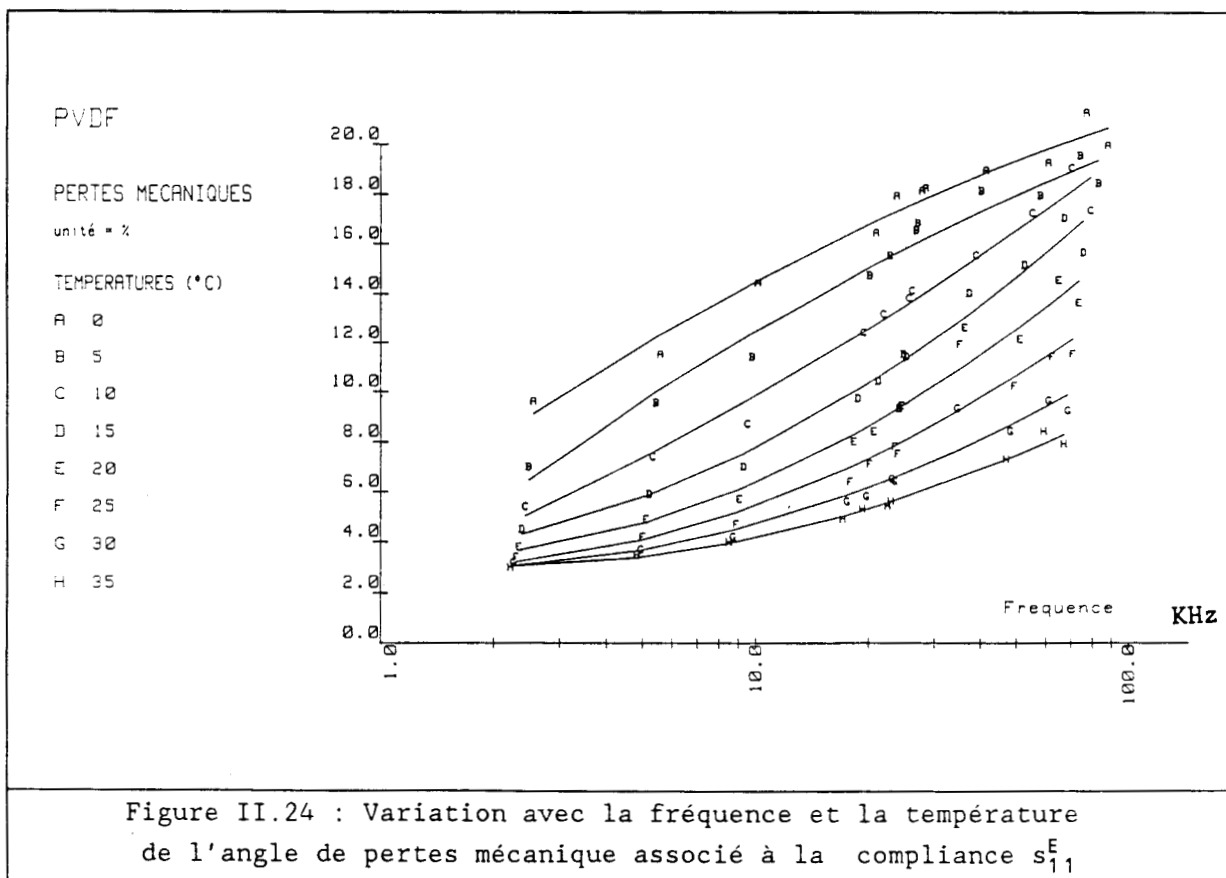
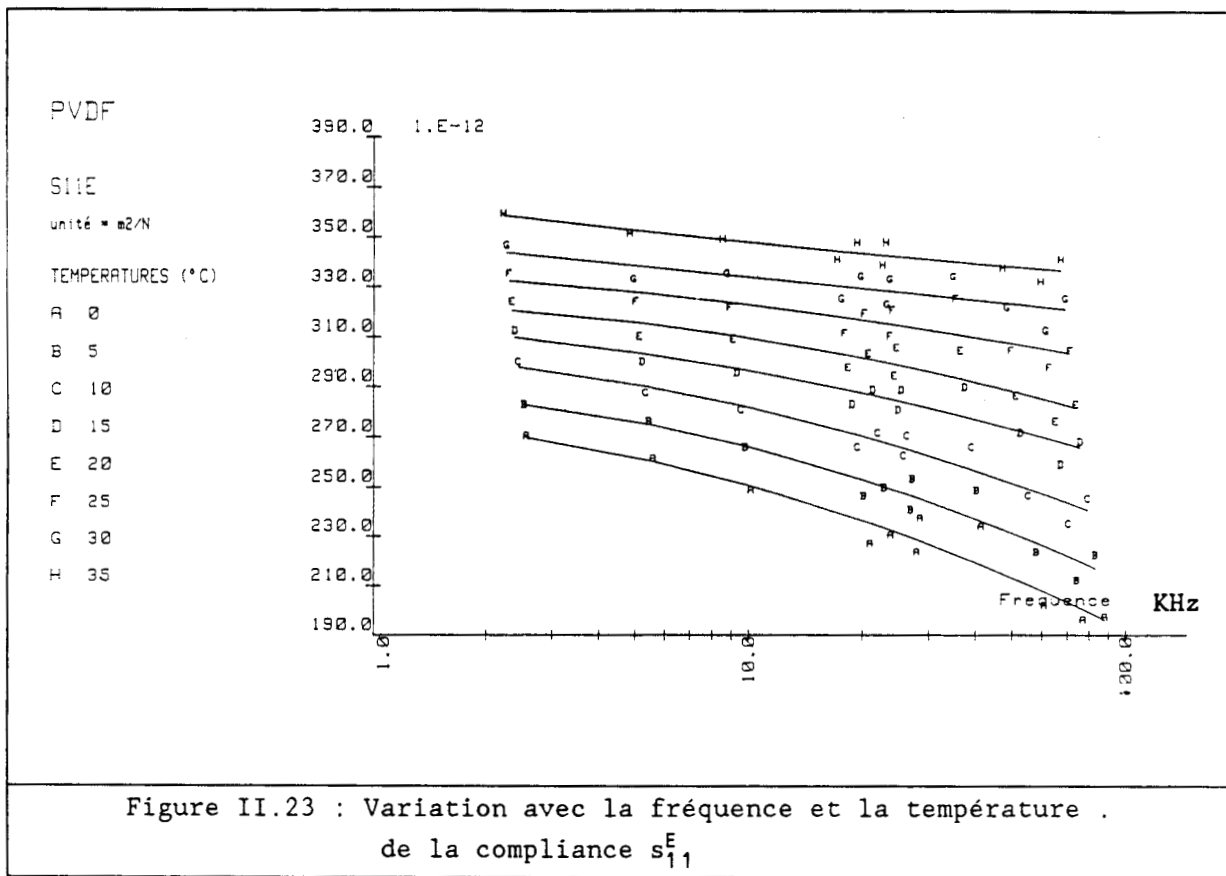


Figure II.20 bis : Dispositif expérimental



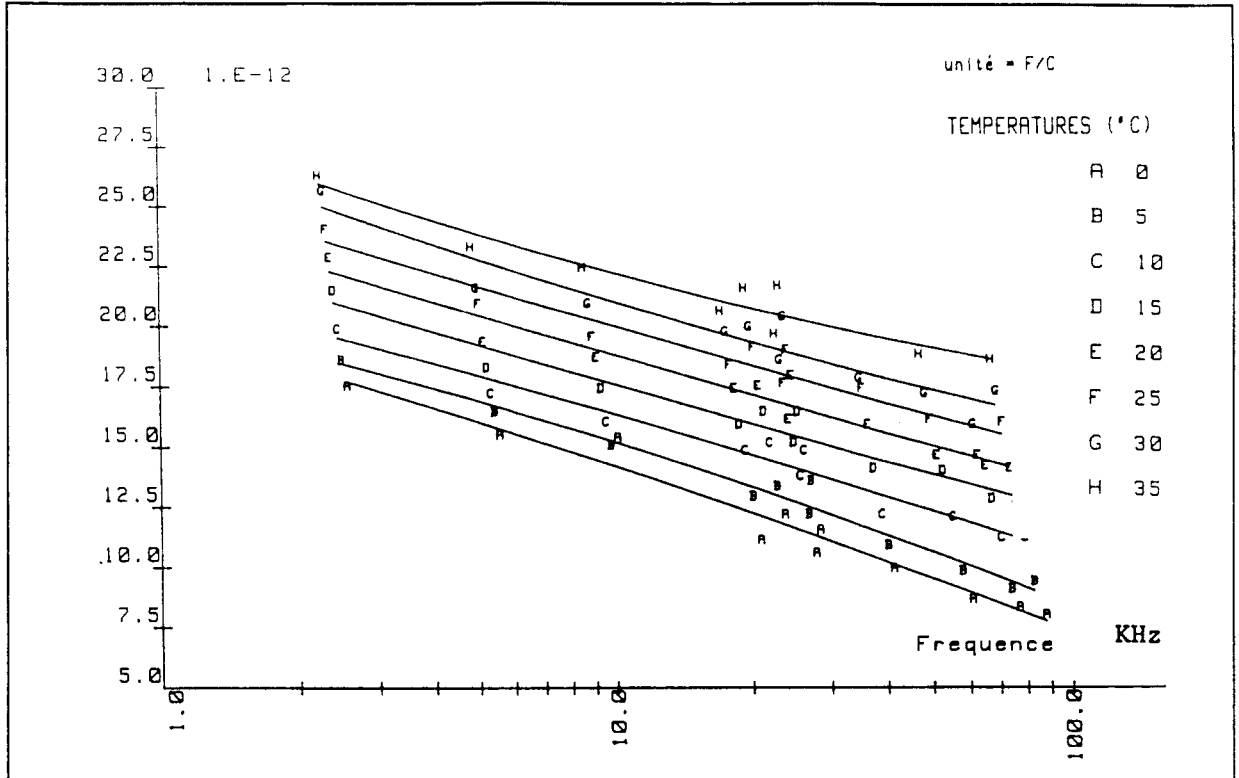


Figure II.25 : Variation avec la fréquence et la température du coefficient piézoélectrique d_{31}

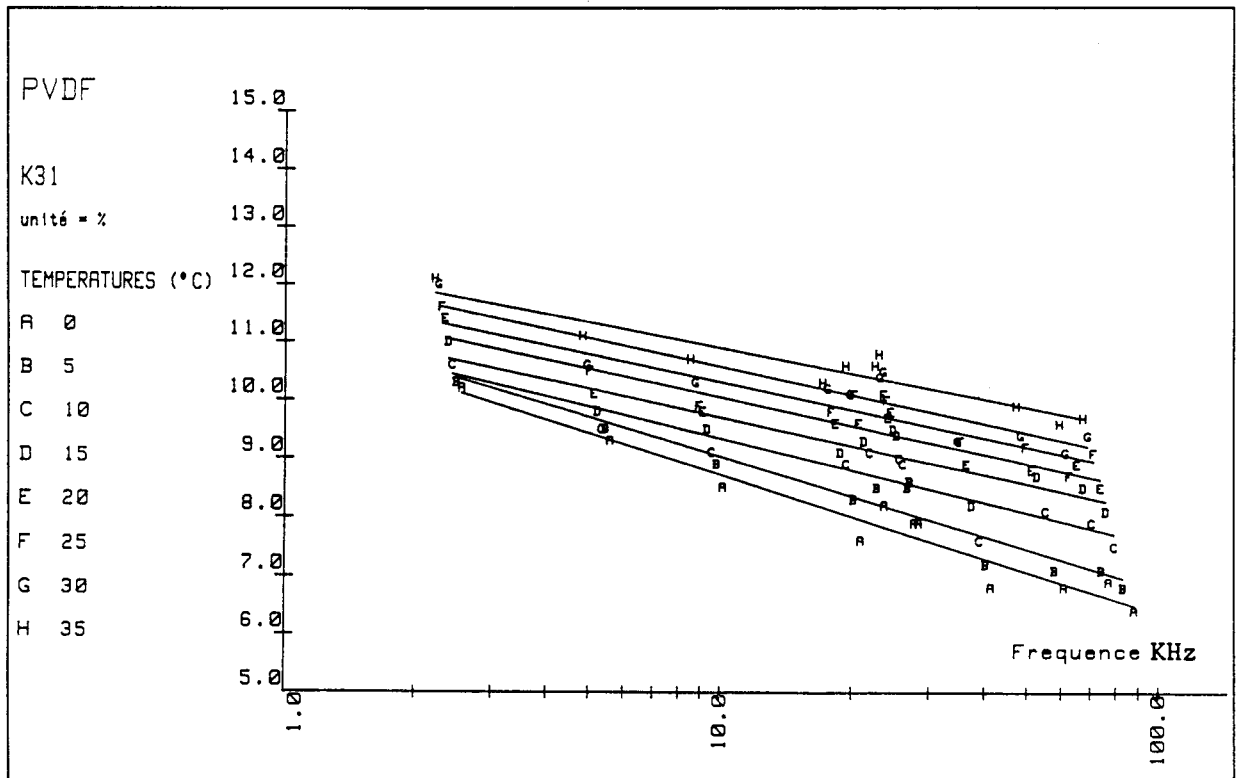
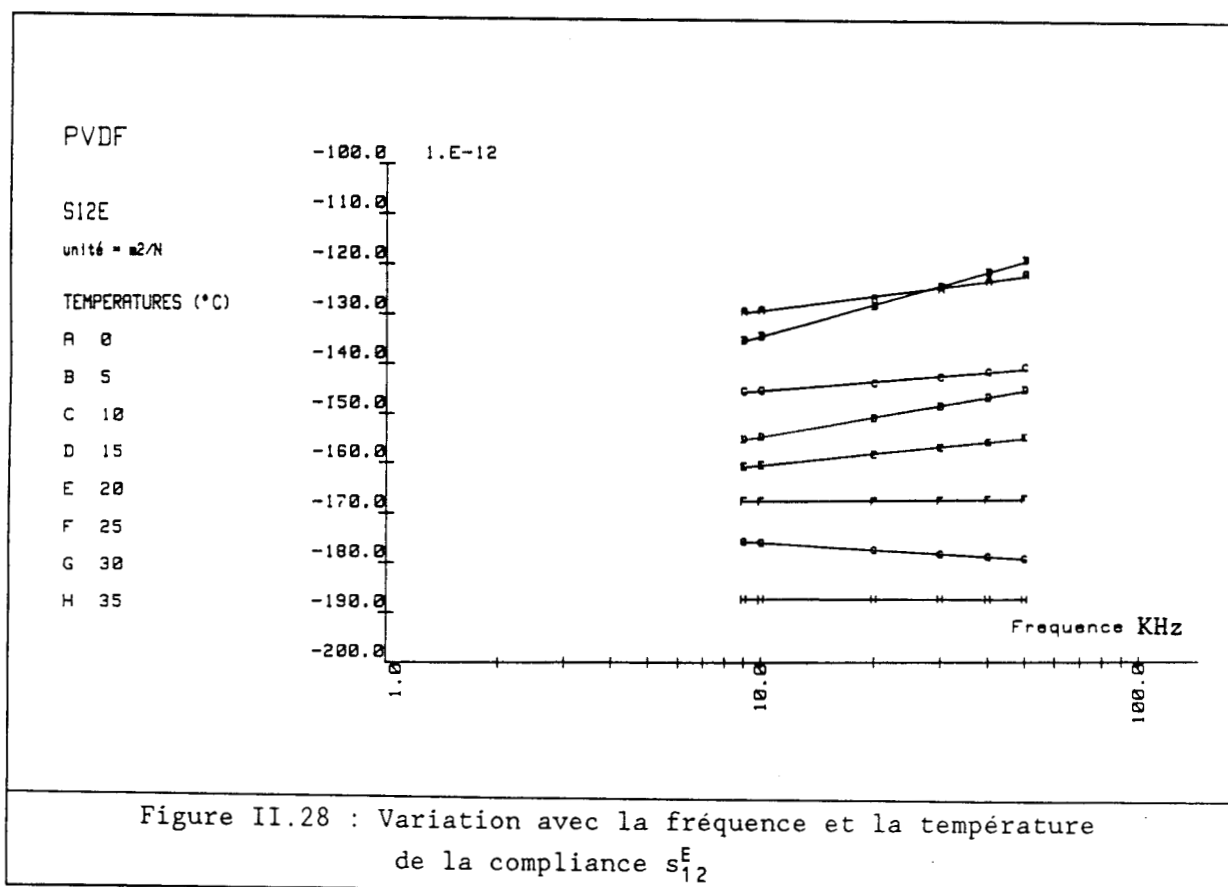
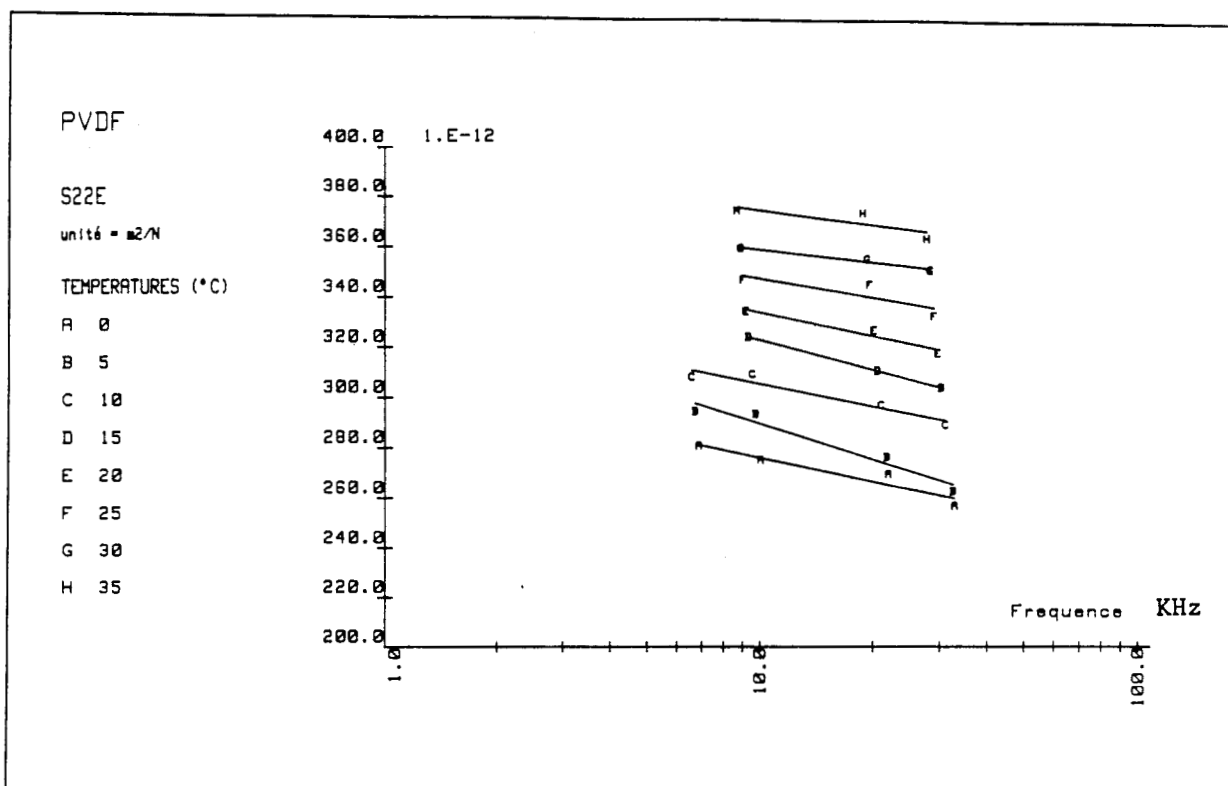
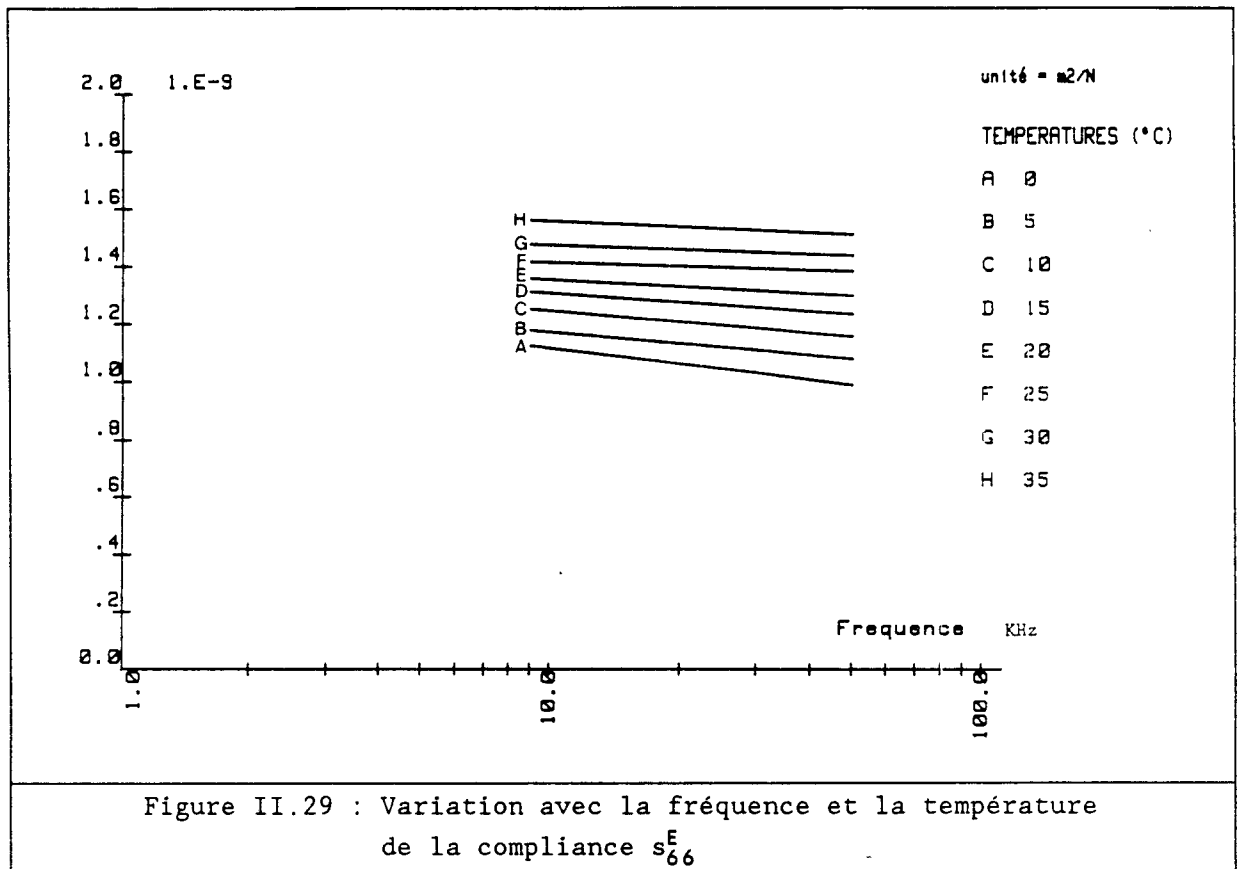


Figure II.26 : Variation avec la fréquence et la température du coefficient de couplage piézoélectrique k_{31}





II.2.2.4. Analyse de la source des erreurs

La principale source des erreurs réside dans la séparation des branches électrique et motionnelle. L'extraction du fond continu joue peu sur la position de la résonance et la détermination des coefficients de flexibilité est donc précise. Toutefois, elle joue beaucoup sur la valeur du maximum de G_M . Elle influence donc fortement la détermination de $\text{tg}\delta_m$ et, par suite, la détermination du coefficient piézoélectrique qui est fonction de $\text{tg}\delta_m$ et du maximum de G_M . La précision sur la mesure des dimensions des éprouvettes diminue à mesure que la fréquence augmente, puisque les éprouvettes deviennent de plus en plus petites.

CHAPITRE III

CARACTERISATIONS DE TYPE ELECTRIQUE

METHODES DE MESURE SPECIFIQUES

Ce chapitre complète le chapitre II en présentant la mise au point de méthodes de mesure électrique permettant une caractérisation de systèmes précis.

Dans un premier temps, on envisage l'utilisation d'une segmentation des électrodes de la plaque piézoélectrique pour étendre la gamme de fréquence de mesure vers des fréquences plus élevées. Une seconde partie présente l'utilisation d'une méthode d'ajustage pour caractériser le mode d'épaisseur des plaques minces piézoélectriques. Ensuite, on s'intéresse aux informations contenues dans les résonances caractéristiques des modes de contour des plaques minces de matériaux de classe 2mm. Une méthode originale d'extraction de coefficient de flexibilité s_{66}^E et du coefficient de Poisson est présentée, avec les résultats obtenus. Enfin, la dernière partie concerne le cisaillement dans une plaque mince. Elle présente une étude de faisabilité, effectuée à l'aide de modélisations par éléments finis.

III.1. CARACTERISATION DU MATERIAU A L'AIDE DE PEIGNES INTERDIGITES

Une éprouvette de MASON du type mode de longueur est couverte sur toute sa surface par l'électrode. Pour cette éprouvette, le mode fondamental en $\frac{\lambda}{2}$ est donc le mode dont l'énergie de couplage est maximale, puisque toutes les charges sont collectées par la même électrode. Le mode en λ n'est pas couplé puisqu'il y a compensation des charges induites par l'effet piézoélectrique de la zone dilatée du matériau par celles induites par l'effet piézoélectrique de la zone comprimée. C'est en outre le cas de tous les modes comportant un nombre pair de demi-longueurs d'onde. Pour les modes comportant un nombre impair de demi-longueurs d'onde, l'énergie du couplage macroscopique est inversement proportionnelle à l'ordre k du mode considéré. Pour le PVDF, les modes harmoniques sont de ce fait tellement peu couplés qu'ils ne sont pas détectables. Segmenter les électrodes et exciter chaque segment de manière différenciée doit permettre, selon toute vraisemblance, de coupler électriquement les différentes harmoniques. Cette technique doit permettre, de plus, de suivre les évolutions des coefficients du matériau en fonction de la fréquence à l'aide d'une même éprouvette.

III.1.1. Le modèle analytique

La méthode utilisée pour calculer l'impédance électrique d'un peigne s'appuie sur l'utilisation des matrices de transfert. En effet, soit le peigne décrit à la figure III.1. La charge recueillie sur l'électrode n est fonction des potentiels Φ , appliqués sur les différentes zones, des forces exercées de part et d'autre de la zone n , ainsi que des vitesses vibratoires de ses faces. La sommation des charges portées par chacune des électrodes permet d'obtenir l'expression de l'admittance du système. Le calcul est détaillé en annexe C et produit l'expression exacte de l'admittance du peigne.

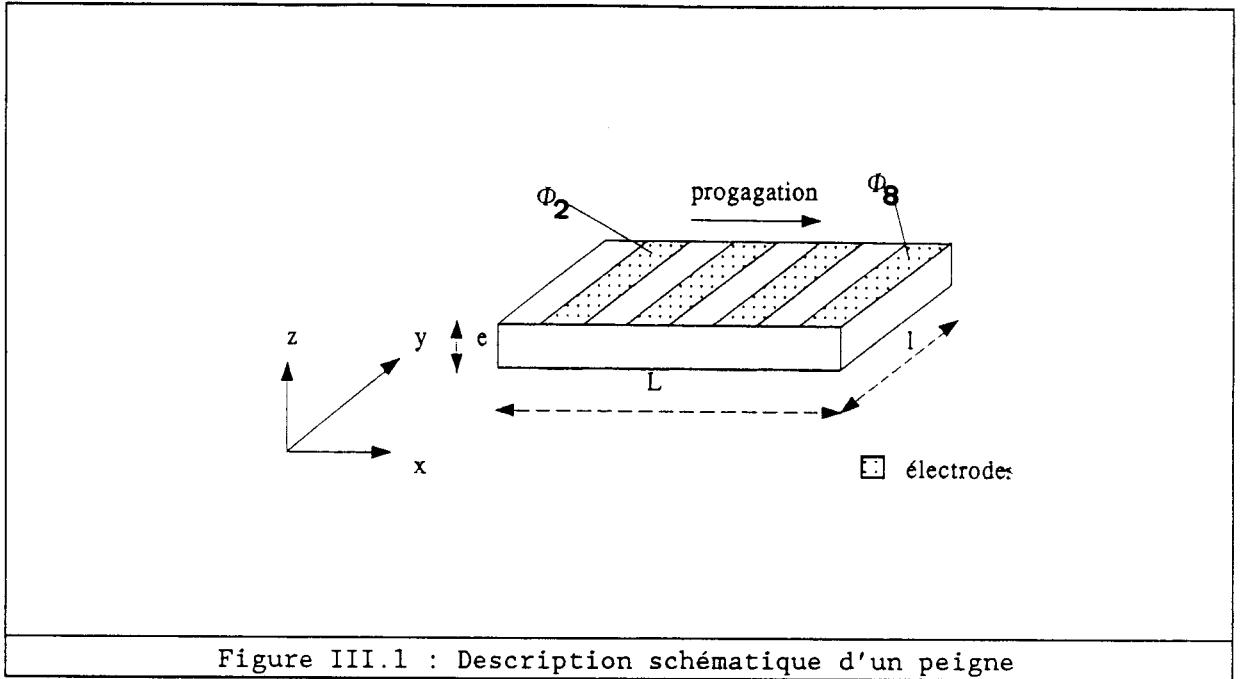


Figure III.1 : Description schématique d'un peigne

Dans le cas particulier de l'éprouvette représentée en figure III.2, l'admittance s'écrit :

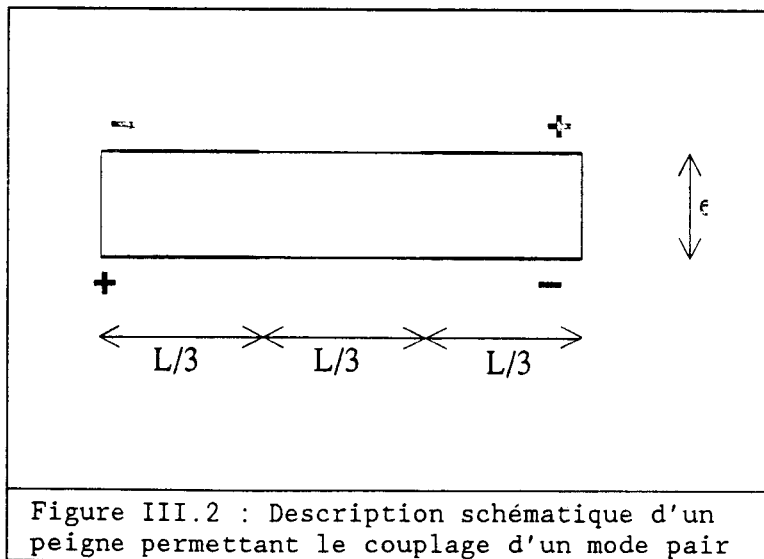


Figure III.2 : Description schématique d'un peigne permettant le couplage d'un mode pair

$$Y(\omega) = 2 j C_o^I \omega \left(1 - K^2 + K^2 \cdot \frac{3 \cdot \sin\left(\frac{2 k L}{3}\right) \cdot \left(2 \cos\left(\frac{k L}{3}\right) - 1\right)}{\frac{k L}{3} \cdot \sin(k L)} \right) \quad (\text{III.1})$$

avec :

$$C_o^I = \epsilon_{33}^I \cdot \frac{L \cdot \text{largeur}}{3 \cdot e} \quad (\text{III.2})$$

et :

$$K^2 = \frac{d_{31}^2}{\epsilon_{33}^T \cdot s_{11}^E} \quad (\text{III.3})$$

On vérifie aisément que le premier mode couplé est un mode dont la longueur d'onde est égale à L et que tous les modes pairs dont le numéro d'ordre n n'est pas multiple de 3 sont couplés également.

L'avantage de ce modèle réside dans le fait qu'il s'applique à toutes les configurations d'électrodes possibles, alors qu'un modèle à base de schémas équivalents nécessiterait des simplifications importantes.

III.1.2. Extraction des coefficients

Si le modèle analytique développé ci-dessus permet de calculer l'admittance d'un peigne de caractéristiques connues, la complexité de l'expression obtenue empêche une extraction simple des constantes du matériau. Par ailleurs, une technique d'ajustage des impédances (cf paragraphe III.2) serait longue et fastidieuse dans le cas de peignes possédant de nombreuses électrodes. La méthode proposée ci-après s'apparente à la méthode utilisée pour les éprouvettes de MASON. Les peignes sont des éprouvettes qui diffèrent de celles-ci uniquement par la segmentation des électrodes. Si on considère que la propagation est toujours unidimensionnelle, elle ne met en jeu qu'un coefficient de flexibilité s , une constante piézoélectrique d , et la permittivité diélectrique ϵ_{33} . Alors, la séparation de la branche diélectrique et de la branche motionnelle de la conductance doit permettre d'obtenir s et d . En effet, si f_0 est la fréquence de résonance, le coefficient de flexibilité s'écrit :

$$s = \frac{k^2}{\rho (2 L f_0)^2} \quad (\text{III.4})$$

où k est l'ordre du mode considéré et L la longueur totale de l'éprouvette dans le sens de propagation. De plus, la capacité motionnelle s'écrit :

$$C_M = C \cdot \frac{d^2}{s} \cdot \frac{S}{\epsilon} \quad (\text{III.5})$$

où C est une constante caractéristique du peigne interdigité, S représente

la surface de ce peigne et \bar{e} son épaisseur. La constante C , égale à $8/\pi^2$ dans le cas d'une éprouvette de MASON, est déterminée ici par simulation sur ordinateur. Pour une configuration d'électrodes donnée, on introduit dans le modèle des valeurs variées de la constante de flexibilité, de l'angle de pertes mécaniques et du coefficient piézoélectrique ainsi que des dimensions. On calcule les valeurs correspondantes de l'admittance du système et de sa capacité motionnelle C_M , on en déduit une valeur de la constante C correspondant aux paramètres introduits. On montre ainsi que cette constante ne dépend ni des dimensions de l'échantillon, ni des coefficients piézoélectrique et élastique. Elle ne dépend pas non plus de l'angle de pertes mécaniques. Cependant, si l'on introduit des coefficients de qualité mécanique trop élevés, pour une conductance calculée sur un nombre fixe de points de fréquence, l'imprécision sur cette constante C est importante. Nous avons donc systématiquement effectué le calcul pour différents angles de pertes. Le tableau III.1 présente différentes valeurs de la constante calculées pour des configurations d'électrodes variées. La connaissance de la valeur de cette constante permet alors de mener le même type de mesure que sur les éprouvettes de MASON.

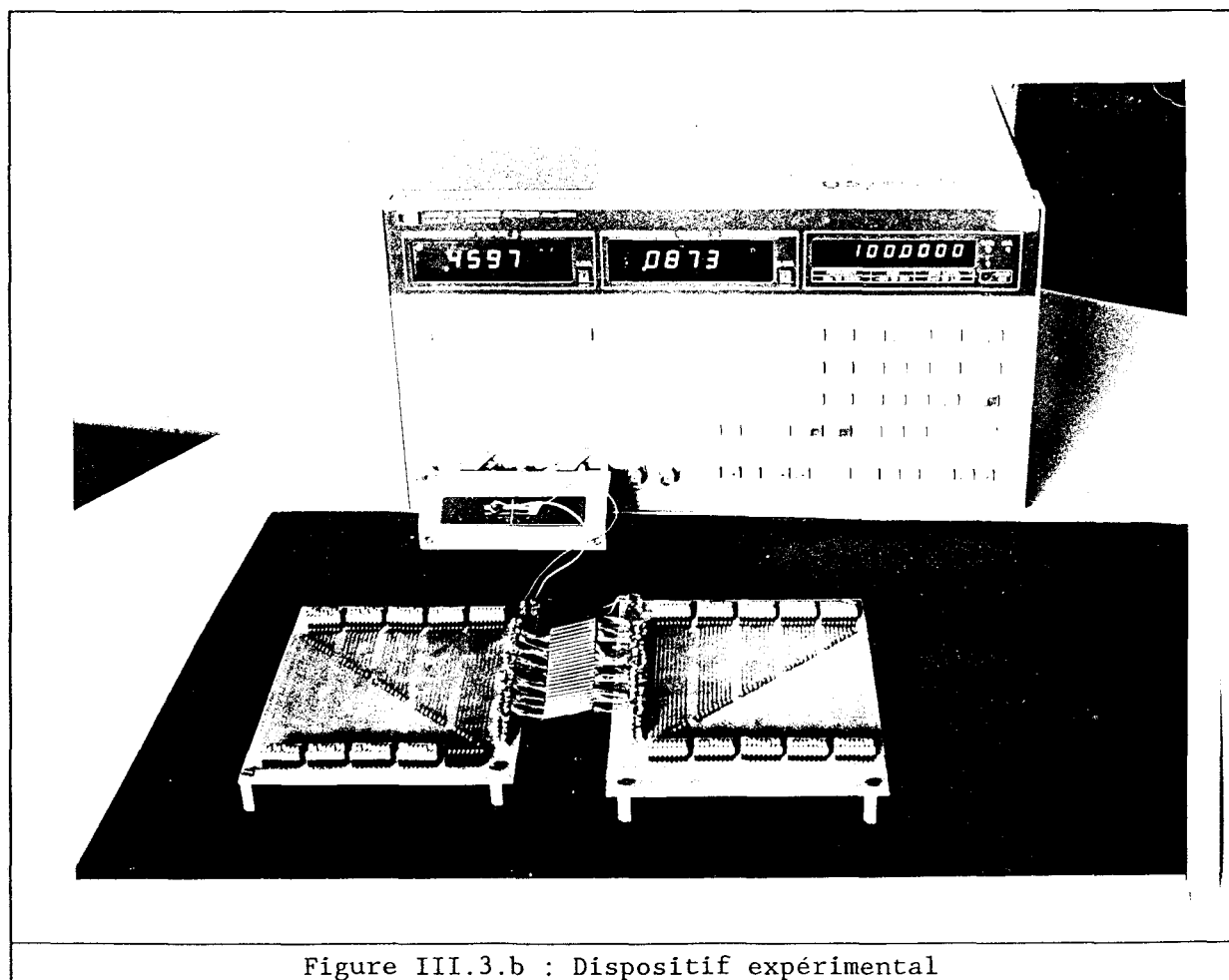
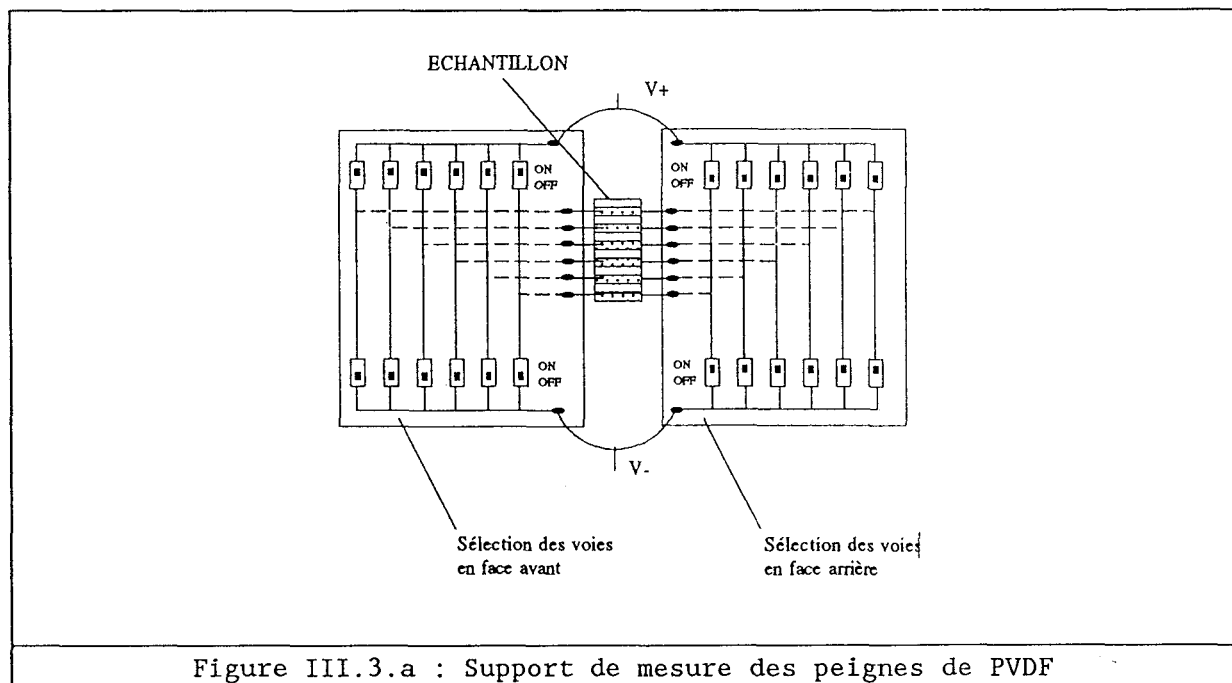
nombre d'électrodes	nombre d'espaces interélectrodes	rapport de dimensions	config. de potentiel	longueur =	constante
2	3	1	- +	λ	0.128
2	2	1	- +	λ	0.103
2	1	1	- +	λ	0.231
4	5	1	- + - +	2λ	0.0558
4	4	1	- + - +	2λ	0.0522

Tableau III.1 : Constantes caractéristiques C de quelques peignes.

En toute rigueur, il faudrait tenir compte du champ électrique dans le sens 1, qui correspond à une augmentation sensible de la capacité totale du système. Cependant, étant donné que le calcul de la capacité motionnelle ne fait pas intervenir de termes de permittivité diélectrique, ϵ_{11} peut être négligé dans le calcul de l'admittance. Par ailleurs, l'existence d'un champ électrique dans le sens 1 pourrait permettre le couplage piézoélectrique avec des modes de déformation en cisaillement. Nous n'avons rien détecté de semblable sur les éprouvettes mesurées. Le champ électrique étant un champ électrique de surface, ces modes sont probablement insuffisamment couplés.

III.1.3. Préparation des éprouvettes

Le PVDF que nous caractérisons est recouvert par deux électrodes d'environ 800 angströms d'épaisseur, comportant trois couches de métal (chrome, aluminium, chrome). Pour obtenir des électrodes interdigitées, nous avons d'abord cherché à attaquer les électrodes d'origine de manière différenciée, en protégeant les dents par une résine photosensible. Cette technique s'est avérée difficile à mettre en oeuvre et peu concluante. En effet, les électrodes d'origine du PVDF présentent des microcoupures gênantes dans le cas de peignes. Nous avons donc utilisé la technique suivante. Dans un premier temps, les électrodes sont enlevées par attaque chimique à l'aide d'un mélange d'acide perchlorique et de nitrate d'ammonium cérique. Un masque est ensuite collé sur le matériau, sur lequel on effectue une pulvérisation de nouvelles électrodes. Cette pulvérisation a été effectuée à l'Institut Franco-Allemand Saint-Louis dans l'équipe du professeur F. BAUER. Le contact électrique doit être assuré avec chaque bande. La solution retenue consiste en l'utilisation de nappes de fins fils de cuivre. Chaque fil est collé avec une goutte de colle cyanocrilate, une goutte de laque à l'argent assurant la qualité du contact électrique. Chaque fil est relié à un support d'échantillon sur lequel des interrupteurs permettent de modifier la configuration électrique et de ramener les électrodes au potentiel V^+ ou V^- (figure III.3). L'échantillon étant maintenu uniquement par ces fils, les hypothèses de faces libres sont respectées le mieux possible.



III.1.4. Résultats et interprétation

Quatre éprouvettes ont été mesurées, leurs caractéristiques sont rapportées dans le tableau III.2:

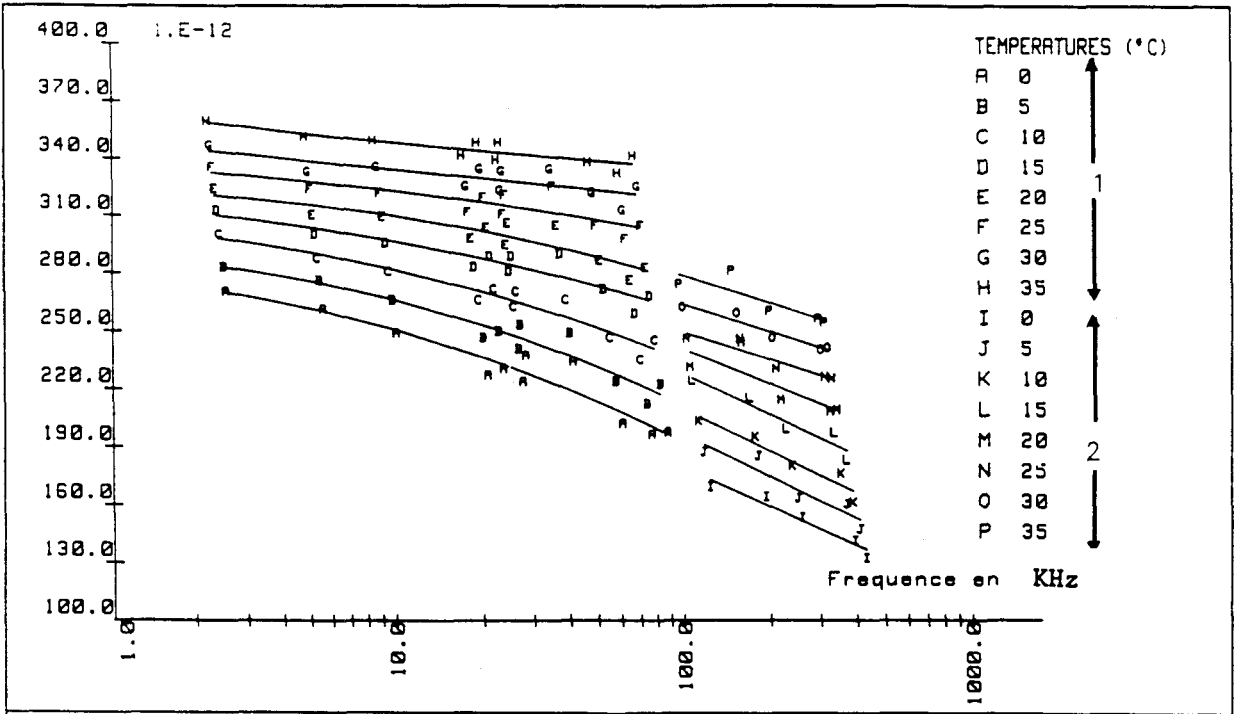
numéro	nombre de dents	largeur de dents (mm)	largeur entre les dents (mm)	nombre de configurations	gamme de fréquence en kHz
1	4	2	2	3	40-180
2	7	1	1.5	5	40-330
3	24	2	2	8	7-216
4	36	1	1.5	12	7-330

Tableau III.2 : Récapitulatif des caractéristiques des éprouvettes mesurées

Le schéma III.4 ainsi que le tableau III.3 présentent les valeurs obtenues pour des fréquences variant de 7kHz à 350kHz.

Sur une même éprouvette, on mesure successivement des modes de longueur puis des modes de largeur. Pour l'échantillon 4, le mode fondamental en $\lambda/2$ est un mode de longueur puisque la demi-longueur d'onde est grande devant la largeur. Le mode harmonique numéro 36 (la longueur est égale à $36 \lambda/2$) est un mode de largeur puisque la demi-longueur d'onde égale à la longueur-divisée par 36 est petite devant la largeur. Certains modes harmoniques intermédiaires ne doivent pas être pris en compte : la demi-longueur d'onde correspondant étant de l'ordre de grandeur de la largeur, ce ne sont pas des modes de propagation unidimensionnelle. Comme pour les éprouvettes de MASON, la précision la plus grande est obtenue pour le coefficient de flexibilité. Le coefficient de qualité mécanique et le coefficient piézoélectrique sont obtenus de manière moins précise, pour plusieurs raisons. Les fils de connection amortissent le système, en particulier dans le cas des éprouvettes 3 et 4, qui sont étroites. Cet amortissement se traduit par une augmentation de l'angle des pertes mécaniques et par conséquent, par une imprécision sur le coefficient piézoélectrique.

En conclusion, nous avons montré la faisabilité d'une mesure des coefficients d'un matériau piézoélectrique à l'aide d'éprouvettes à électrodes interdigitées. Ce type de mesure permettrait, pourvu que les caractéristiques géométriques des éprouvettes soient connues précisément et que les conditions de suspension des éprouvettes perturbent peu, de suivre en fréquence des résonances d'amplitude non négligeable.



numéro de l'échantillon	Fréquence de mesure KHz	Constante de flexibilité en nm ² /N	angles des pertes mécaniques (%)	Constante piézoélectrique d (en pm/V)
3	7.5	0.314	11.0	22.8
4	7.5	0.334	10.6	24.3
4	30.5	0.327	11.1	24.1
3	33.1	0.263	12.0	20.2
1	42.8	0.268	17.0	24.4
2	42.2	0.265	16.0	30.4
3	68.	0.250	14.0	20.1
4	75	0.274	12.1	19.8
1	90	0.240	14.4	20.4
4	97	0.228	14.7	18.9
3	104	0.240	16.0	19.2
2	133	0.227	15.0	21.0
4	157	0.250	24.0	22.6
1	186	0.227	16.4	17.7
3	216	0.221	19.0	18.1
1	228	0.216	18.5	20.0
2	323	0.211	20.0	18.8
4	332	0.228	27.0	20.8

Tableau III.3 : Coefficients du PVDF mesurés à température ambiante, en fonction de la fréquence.

III.2. CARACTERISATION DE MODES DE TYPE EPAISSEUR

On appelle mode d'épaisseur le mode de dilatation-compression selon l'épaisseur d'une plaque de PVDF dont les dimensions latérales sont grandes devant cette épaisseur. Les déformations selon les directions 1 et 2 sont alors bloquées et S_3 est la seule composante non nulle du tenseur des déformations. On peut alors calculer l'impédance électrique du système en utilisant le tenseur suivant :

$$\begin{aligned} [T] &= [C^D] \cdot [S] - [h] \cdot [D] \\ [E] &= -[h] \cdot [S] + [\beta^S] \cdot [D] \end{aligned} \quad (\text{III.6})$$

L'impédance de l'éprouvette, décrite sur la figure III.5 s'écrit :

$$Z(\omega) = \frac{1}{jC_0\omega} \left(1 - k_t^2 \frac{\text{tg}(X)}{X} \right) \quad (\text{III.7})$$

avec :

$$- C_0 = \epsilon_{33}^S \frac{L^2}{e}, \text{ capacité à déformation constante,}$$

$$- X = \frac{\omega e}{2 v_b^*},$$

$$- v_b^* = \left(C_{33}^{D*} / \rho \right)^{1/2},$$

$$- k_t^{*2} = \frac{h_{33}^2}{C_{33}^{D*} \cdot \beta_{33}^{S*}}, \text{ coefficient de couplage piézoélectrique.}$$

L'astérisque indique le caractère complexe des coefficients. Le schéma équivalent de ce système est donné figure III.6.

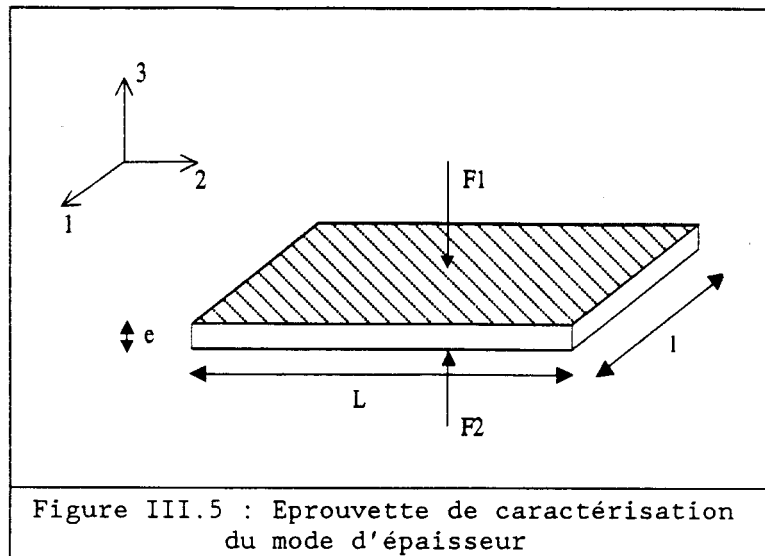


Figure III.5 : Epruvette de caractérisation du mode d'épaisseur

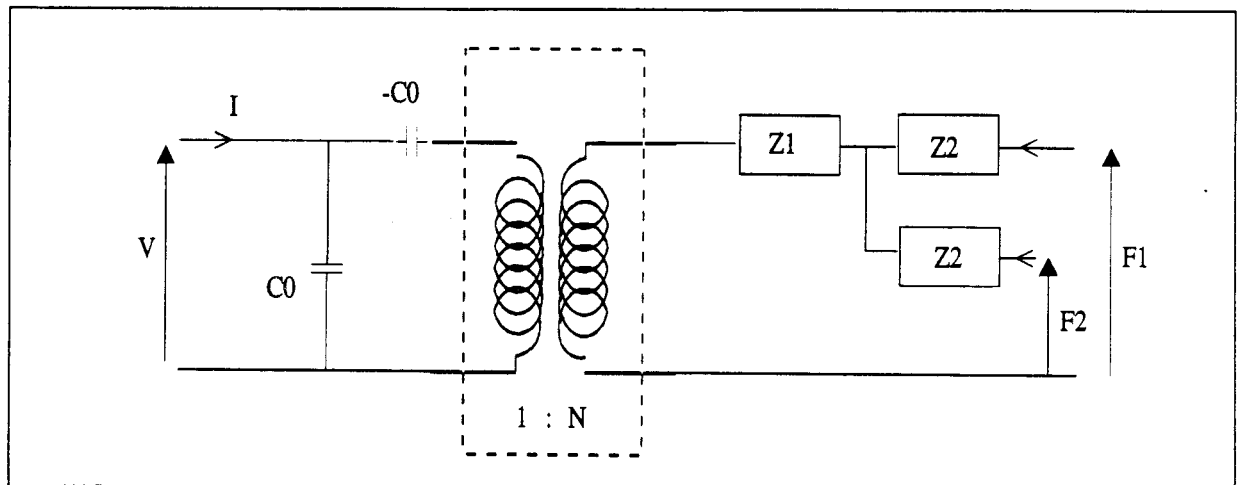


Figure III.6 : Schéma équivalent modélisant le mode d'épaisseur

$$C_0 = \epsilon_{33}^s \cdot \frac{L^2}{e}, \quad N = C_0 \cdot h_{33}, \quad v_t^D = \sqrt{\frac{C_{33}^D}{\rho}}, \quad Z_0 = \rho \cdot L^2 \cdot v_t^D$$

$$Z_1 = Z_0 / (j \cdot \sin(\omega e / v_t^D)), \quad Z_2 = j \cdot Z_0 \cdot \text{tg}(\omega e / 2 v_t^D)$$

La présence de la capacité négative $-C_0$ empêche l'utilisation d'un traitement analogue à celui employé pour les modes de longueur. En effet, il est impossible de séparer exactement la branche diélectrique de la branche motionnelle.

Classiquement, pour les matériaux sans perte, les coefficients sont extraits de la manière suivante :

- à la fréquence d'antirésonance ω_A , l'impédance tend vers l'infini et X est égal à $\pi/2$. Alors :

$$C_{33}^D = \rho (2 e F_A)^2 \quad (\text{III.8})$$

- à une fréquence double de ω_A , l'impédance s'écrit :

$$Z(2\omega_A) = \frac{1}{jC_0\omega} \quad (\text{III.9})$$

On en déduit la valeur de la permittivité ϵ_{33}^S .

- à la fréquence de résonance ω_R , l'impédance s'annule et

$$1 - k_t^2 \frac{\text{tg}(X_R)}{X_R} = 0 \quad (\text{III.10})$$

On en déduit donc la valeur du coefficient de couplage k_t .

Dans le cas de matériaux présentant des pertes importantes, il est impossible de déterminer ω_R précisément et on commet une erreur importante sur la détermination de k_t . La méthode présentée consiste en une technique d'ajustage des impédances modélisées et mesurées.

III.2.1. Technique d'ajustage

Cette technique consiste à chercher à rapprocher la courbe d'impédance théorique $Z_T(\omega)$ de la courbe mesurée $Z_E(\omega)$, en faisant varier les paramètres du matériau introduits dans $Z_T(\omega)$. Divers auteurs ont utilisé cette technique [67,72,73]. Les deux premiers ajustent les impédances en trois fréquences caractéristiques. Le dernier utilise de plus l'information fournie par l'amplitude de la variation de la capacité autour de la résonance.

Le programme d'ajustage que nous avons utilisé fait appel à un algorithme de minimisation d'une somme de carrés. La technique de convergence utilisée est un compromis entre la méthode de "descente rapide" [74], celle de NEWTON-RAPHSON et celle de MARQUARDT [75]. Pour utiliser ce programme, il est nécessaire d'introduire :

- une estimation grossière des paramètres à ajuster,
- le jeu des résultats expérimentaux,
- une fonction permettant de calculer le jeu de résultats théoriques,
- une indication de précision demandée.

Les paramètres A_i que nous avons cherché à ajuster sont représentés sur la figure III.7. Ils sont au nombre de 15.

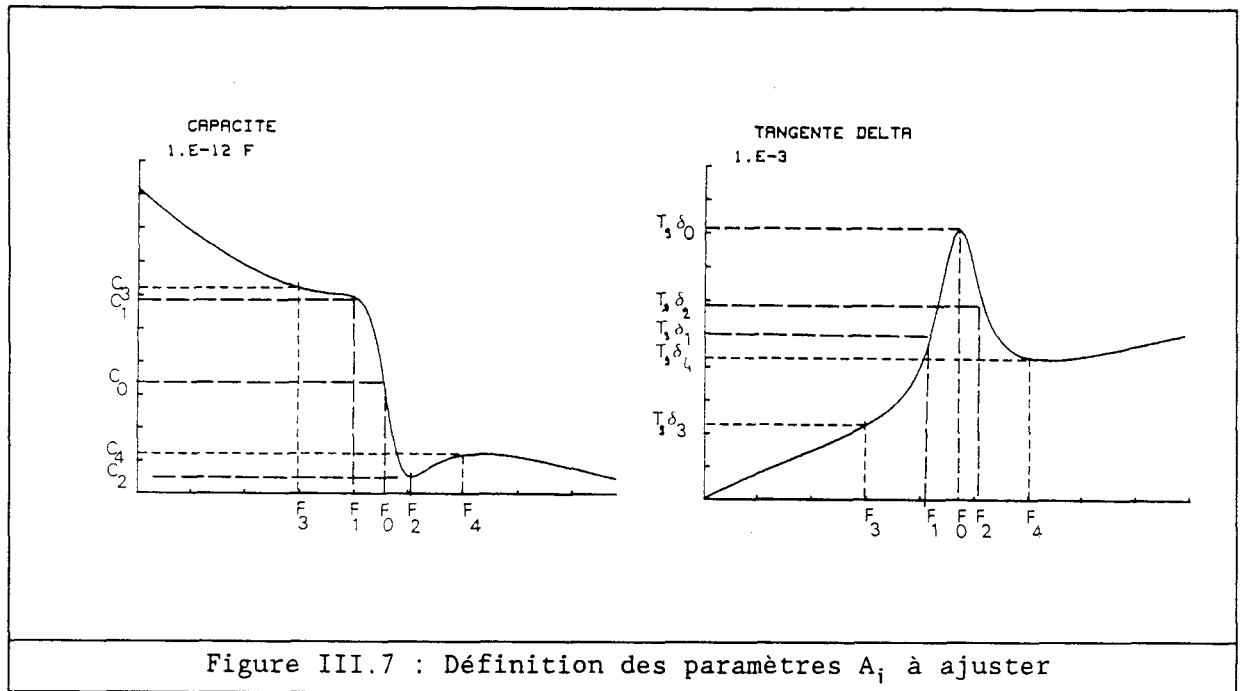


Figure III.7 : Définition des paramètres A_i à ajuster

$(f_0, C_0, \text{tg}\delta_0)$ correspondent à la résonance, $(f_1, C_1, \text{tg}\delta_1)$ et $(f_2, C_2, \text{tg}\delta_2)$ aux positions des fréquences quadrantales et $(C_3, \text{tg}\delta_3)$ et $(C_4, \text{tg}\delta_4)$ sont des couples définis à deux fréquences situées de part et d'autre de la résonance, ces fréquences étant suffisamment proches pour que les paramètres du matériau ne varient pas en fréquence.

On cherche à minimiser la somme des écarts relatifs :

$$\Delta = \sum_{i=1}^{15} \Delta_i = \sum_{i=1}^{15} \left(\frac{A_i \text{ calculé} - A_i \text{ expérim}}{A_i \text{ expérim}} \right)^2 \quad (\text{III.11})$$

en faisant varier les valeurs de C_{33}^0 , de $\text{tg}\delta_m$ et de k_t . La démarche suivie se décompose suivant les étapes décrites ci-dessous:

Etape 1 : Mesure de $C_{\text{exp}}(\omega)$ et de $\text{tg}\delta_{\text{exp}}(\omega)$. On écrit alors :

$$C_{\text{exp}}(\omega) = C_{E \text{ exp}}(\omega) + C_{M \text{ exp}}(\omega) \quad (\text{III.12})$$

$$\text{tg}\delta_{\text{exp}}(\omega) = \text{tg}\delta_{E \text{ exp}}(\omega) + C_{M \text{ exp}}(\omega) \quad (\text{III.13})$$

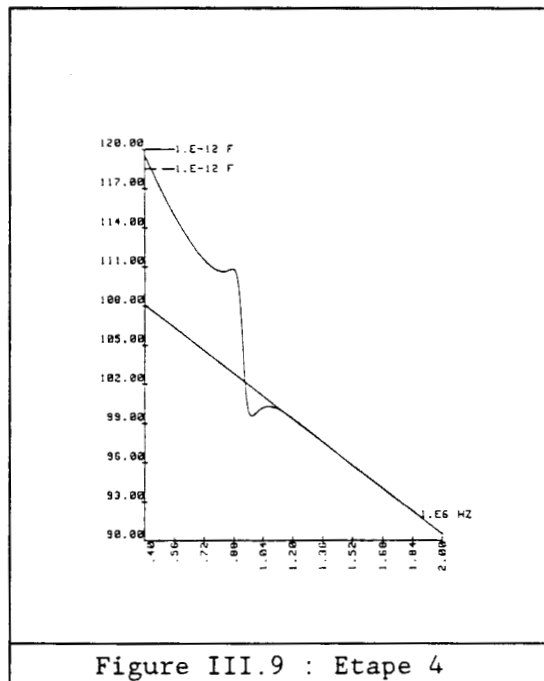
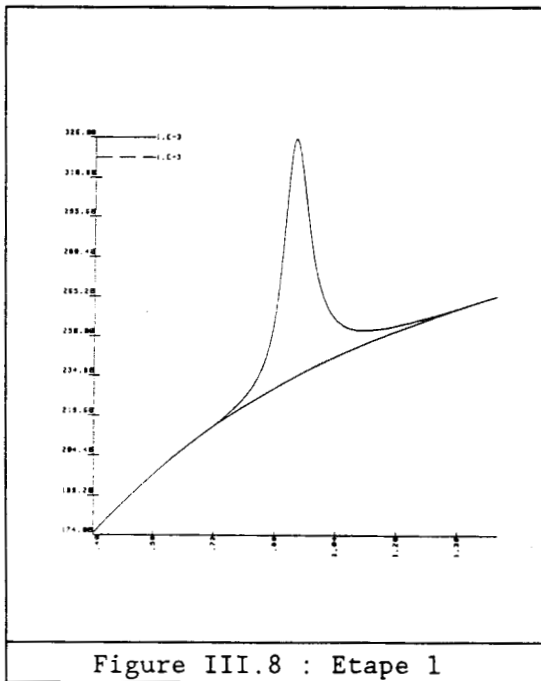
E et M désignant respectivement la partie diélectrique de l'expression et sa branche motionnelle (figure III.8).

Etape 2 : Calcul des A_i exp.

Etape 3 : Initialisation des constantes à ajuster par :

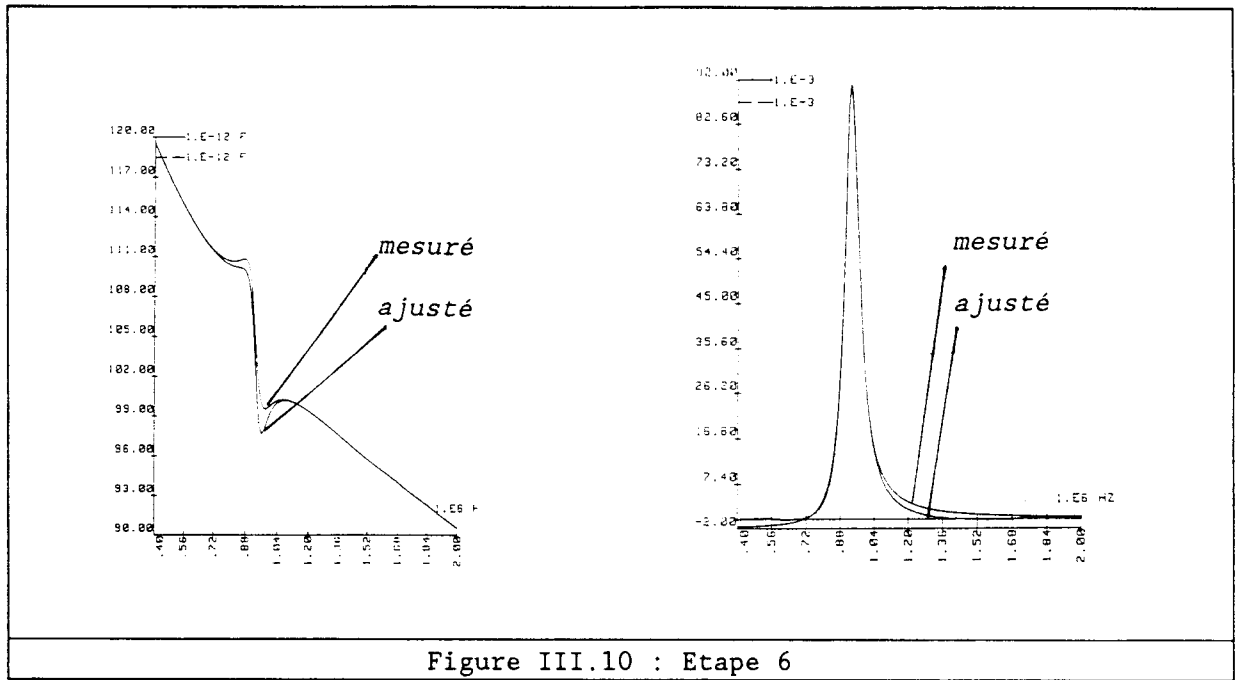
- $C_{33}^D = \rho \cdot (2 e f_0)^2$
- $Tg\delta_m = \frac{\omega_2 - \omega_1}{\omega_0}$
- $k_t = 10\%$ (ce choix est arbitraire)

Etape 4 : Interpolation des variations en fréquence de C_E exp par une régression linéaire (figure III.9).



Etape 5 : Remplacement dans le modèle théorique de C_E théor(ω) par C_E exp(ω).

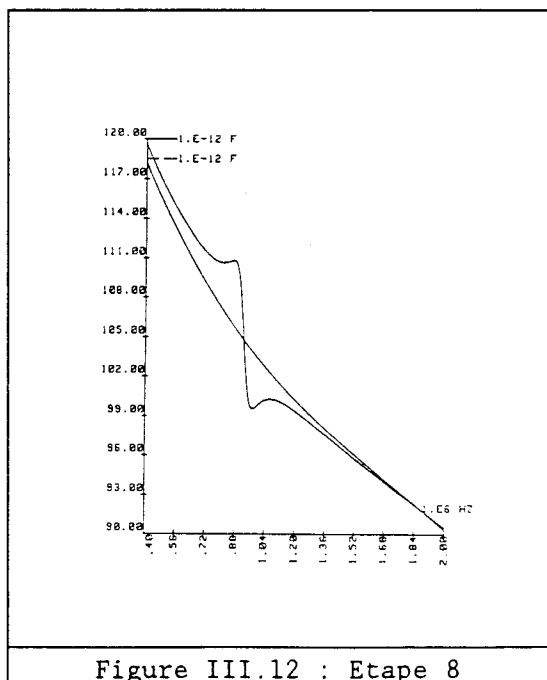
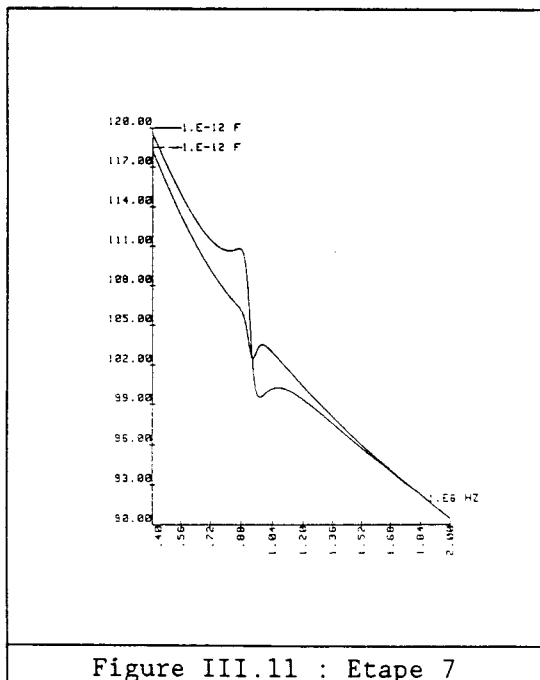
Etape 6 : Passage par le programme d'ajustage et première estimation des coefficients (figure III.10).



Etape 7 : Calcul de $C_E \text{ théor.}(\omega)$ (figure III.11) suivant la relation :

$$C_E \text{ théor.}(\omega) = C_{\text{exp}}(\omega) \cdot \left(1 - k_t^2 \cdot \frac{\text{tg}(X)}{X} \right) \quad (\text{III.14})$$

Etape 8 : Interpolation de $C_E \text{ théor.}(\omega)$ par un polynôme d'ordre 3 (figure III.12).

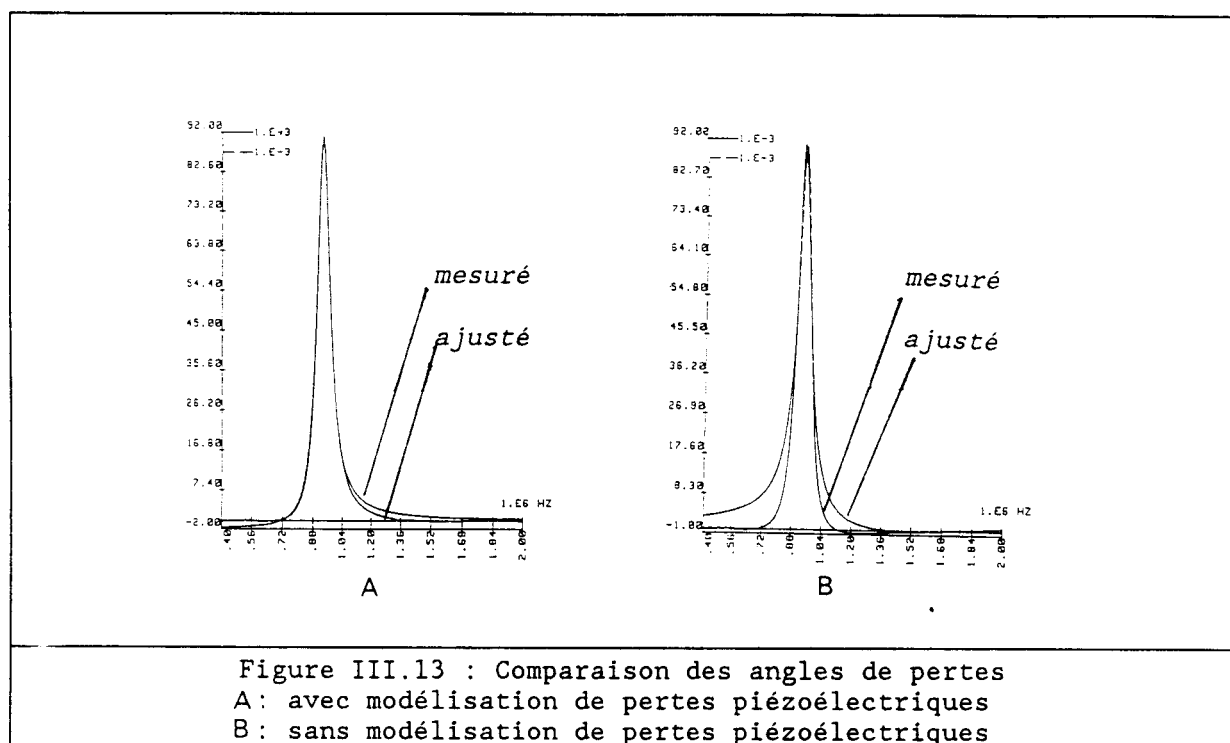


A la fin de l'étape 8, on reprend le calcul à l'étape 5. La sortie de la

boucle se situe à la fin de l'étape 6, si la convergence est suffisante.

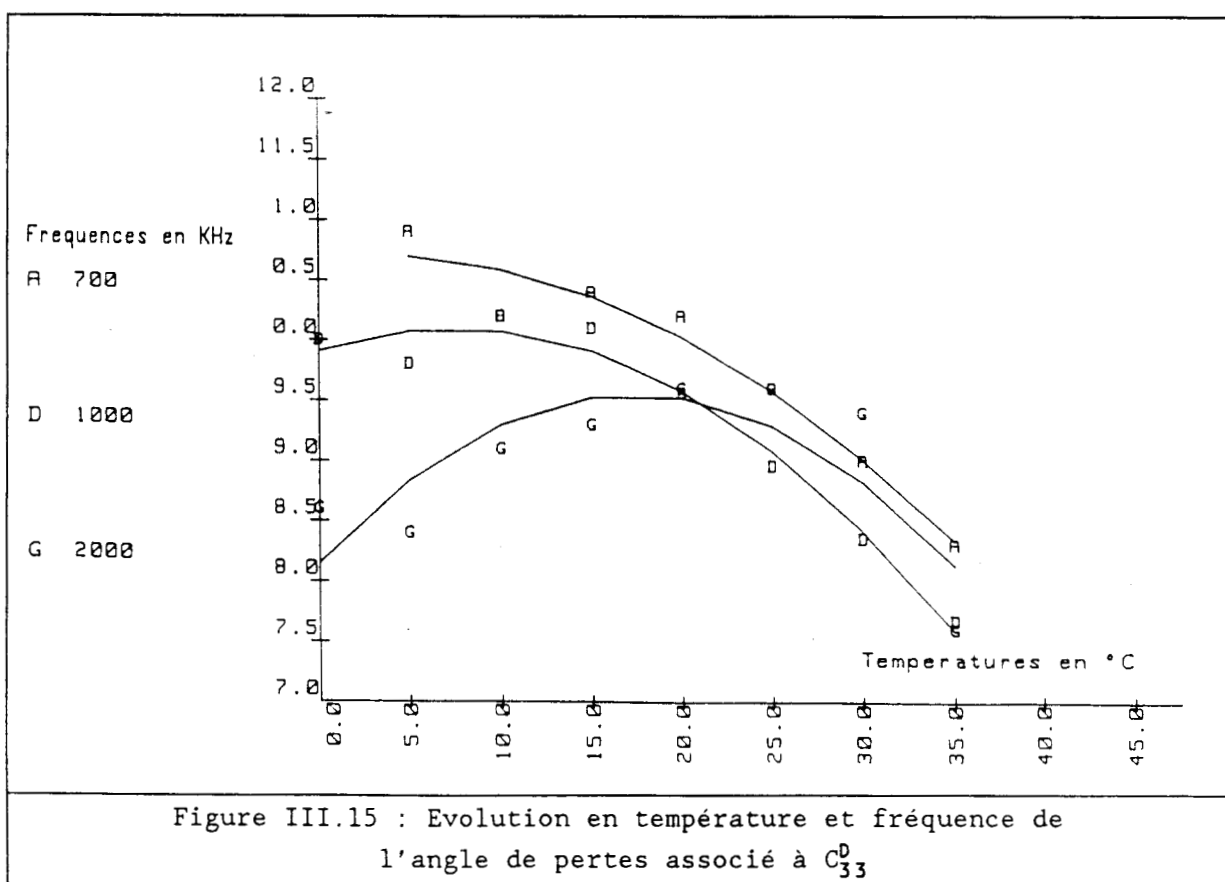
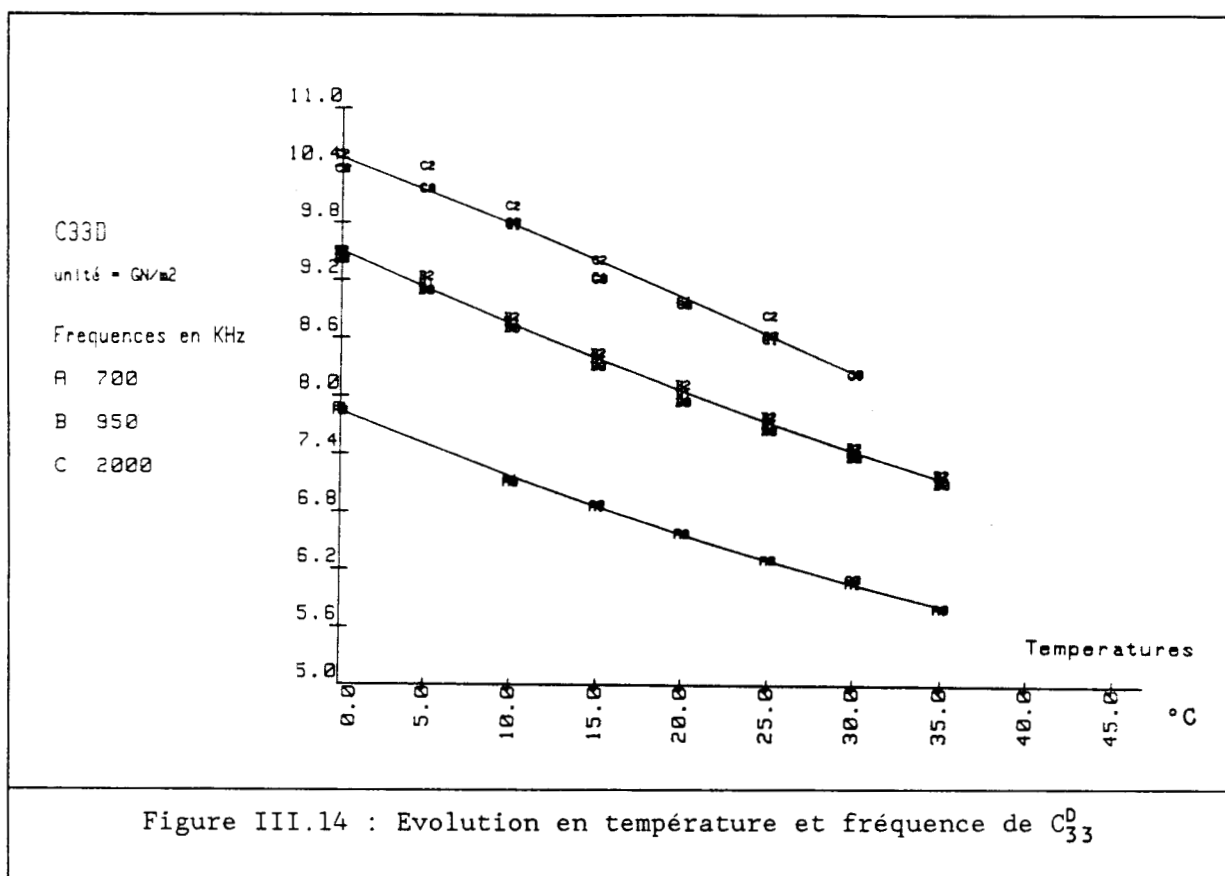
III.2.2. Résultats

Ce type de calcul a été utilisé pour des éprouvettes d'épaisseur 1.5mm, 1mm et 0.6mm. Les résultats sont présentés par le tableau III.4 et les figures III.15 à III.18. On remarque que ces résultats ont été calculés selon deux modes de calcul. Le premier suppose que le coefficient piézoélectrique h_{33} est réel, c'est à dire qu'il n'existe pas de pertes piézoélectriques dans le matériau. Le second suppose que les pertes piézoélectriques existent et que h_{33} est complexe, avec un angle de pertes piézoélectriques $tg\delta_p$. Pour chacune de courbes, les labels indiquent les valeurs effectivement calculées. Les labels affectés d'un "1" indiquent les valeurs des constantes initialisées, les labels affectés d'un "2" les valeurs obtenues en supposant que $tg\delta_p$ est nul, les derniers affectés d'un "3" indiquent les résultats obtenus avec un angle de pertes piézoélectriques non nul. Lorsque ces pertes sont introduites dans le modèle, les courbes expérimentales et théoriques de l'angle des pertes sont bien plus proches (figure III.14), poussant à conclure que les pertes piézoélectriques existent réellement. Il nous semble toutefois que cette conclusion soit rapide, bien que certains auteurs l'aient tirée [67,72], nous pensons que le simple fait d'ajouter un degré de liberté supplémentaire permet naturellement un ajustage plus précis. Par ailleurs, le modèle employé ne tient pas compte des évolutions en fréquence des coefficients mécaniques et piézoélectriques. Ces évolutions peuvent avoir un effet non négligeable sur l'allure des courbes, comme c'est le cas pour les pertes diélectriques. Par ailleurs, si l'ajout du terme de pertes piézoélectriques facilite l'ajustage, les valeurs calculées ne varient pas de manière monotone avec la fréquence ou la température, indiquant ainsi le caractère mal défini de ce terme. Il prend cependant une valeur moyenne de 12% pour les éprouvettes en notre possession. Les valeurs du coefficient de couplage k_t dépendent peu de la température. Elles sont respectivement de 7.5% pour les éprouvettes de 1.5mm d'épaisseur, de 5.2% pour celles de 1.2mm et de 8.5% pour les dernières de 0.6mm d'épaisseur. Les valeurs obtenues pour les échantillons d'épaisseur 1.2mm sont beaucoup plus faibles que celles obtenues pour les autres éprouvettes. Elles peuvent indiquer une différence des propriétés piézoélectriques du PVDF selon l'épaisseur de la plaque, ou simplement une détérioration de la plaque en notre possession.



	C_{33}^D	$\text{tg}\delta_m$	k_t	$\text{tg}\delta_p$
unités	GN/m ²	%	%	%
valeurs initialisées	8.02	9.6		
$\text{tg}\delta_p = 0$	8.12	7.5	4.9	
$\text{tg}\delta_p = 0$	7.94	9.2	5.3	12.4

Tableau III.4 : résultats à 20°C et à 1MHz



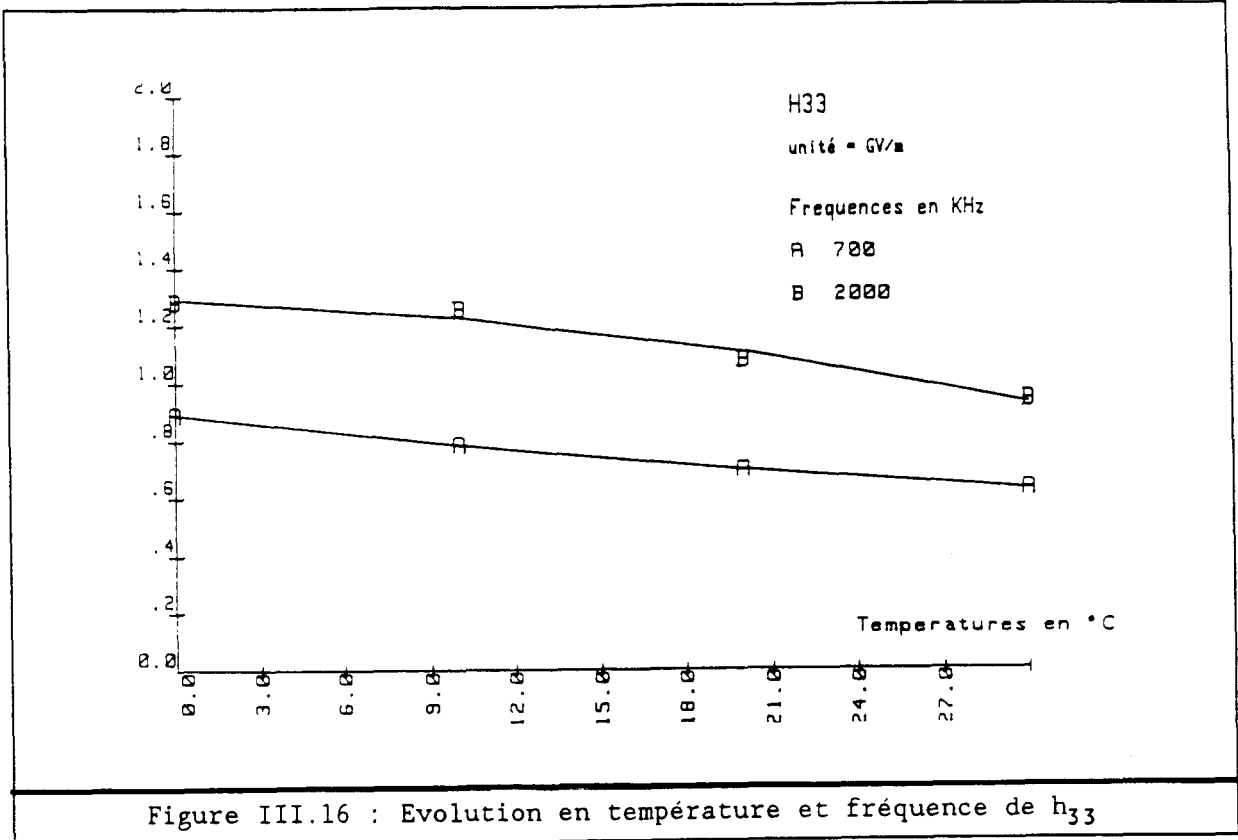


Figure III.16 : Evolution en température et fréquence de h_{33}

III.3. DETERMINATION DU COEFFICIENT DE POISSON

Au paragraphe II.2.2.1, est décrite une méthode de calcul du coefficient de flexibilité s_{12}^E à partir de trois mesures de résonances électriques d'éprouvettes taillées selon des configurations différentes. L'évolution des coefficients du polymère avec la fréquence et le couplage faible du mode 32 ne permettent d'effectuer ce calcul de manière précise que sur une plage réduite de fréquence. Par ailleurs, le calcul résulte de la mesure sur trois éprouvettes différentes, et des inhomogénéités sur les lots d'échantillons peuvent accroître les imprécisions.

Pour les matériaux relevant du système trigonal 3m ou hexagonal 6mm, la méthode standard de caractérisation du coefficient de Poisson ν_{12}^E consiste en l'identification des modes de contour d'éprouvettes en forme de disques ou de plaques carrées. Dans le premier cas, le coefficient de Poisson est calculé à partir du coefficient de couplage k_p du mode radial. Dans le second cas, l'identification des modes de contour III et IV dont les déformées sont représentées en figure III.18 permet le calcul du rapport des constantes de fréquence de résonance F_{IV} / F_{III} . La tabulation [64] de ce rapport en fonction de ν^E permet une détermination rapide de ce coefficient. Ces deux méthodes ne peuvent être appliquées directement au cas du PVDF qui n'est pas orthotrope. E. L. NIX [41] a proposé une méthode originale de détermination de ν_{12} et ν_{21} . On grave sur la surface d'une plaque de PVDF un treillis de lignes équidistantes. L'application d'une traction unidirectionnelle statique dans le sens 1 ou 2 sur le matériau induit une déformation de ce treillis. La photographie de cette carte des déformations permet le calcul des coefficients de Poisson statiques. Cette méthode requiert l'utilisation de techniques de gravure précises et d'un dispositif de photographie. Elle ne permet évidemment que des mesures statiques. Nous avons préféré utiliser une méthode dérivée de celle de C. LIBOVE et H.G. BAERWALD [64] pour les plaques carrées.

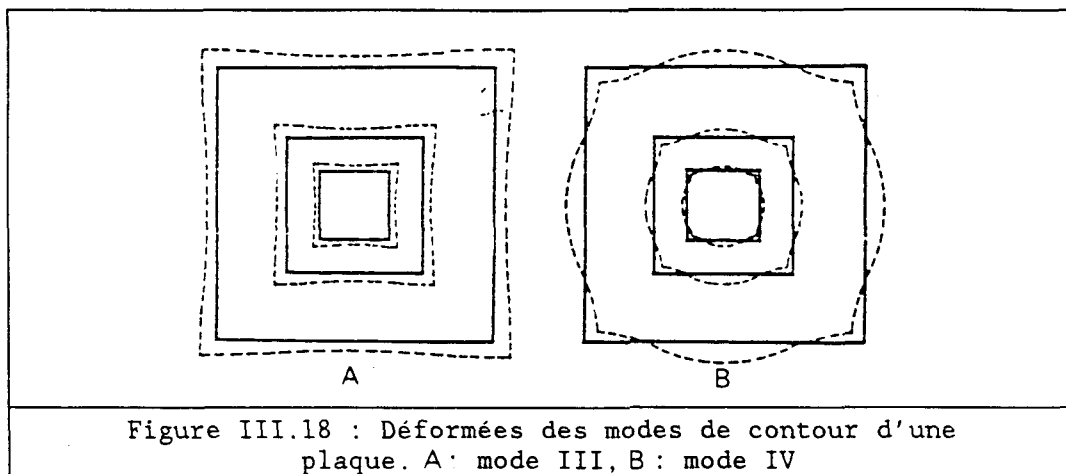


Figure III.18 : Déformées des modes de contour d'une plaque. A: mode III, B: mode IV

III.3.1. Modélisations

Le PVDF, de classe 2mm, présente des caractéristiques mécaniques se rapprochant de celles de matériaux 6mm. En effet, si le tenseur des flexibilités contient 9 termes différents, le coefficient s_{22}^E est cependant de l'ordre de grandeur de s_{11}^E . Pour un matériau de classe 6mm, le coefficient de cisaillement s_{66}^E est une combinaison linéaire simple des coefficients s_{11}^E et s_{12}^E :

$$s_{66}^E = 2 \cdot (s_{11}^E - s_{12}^E) \quad (\text{III.15})$$

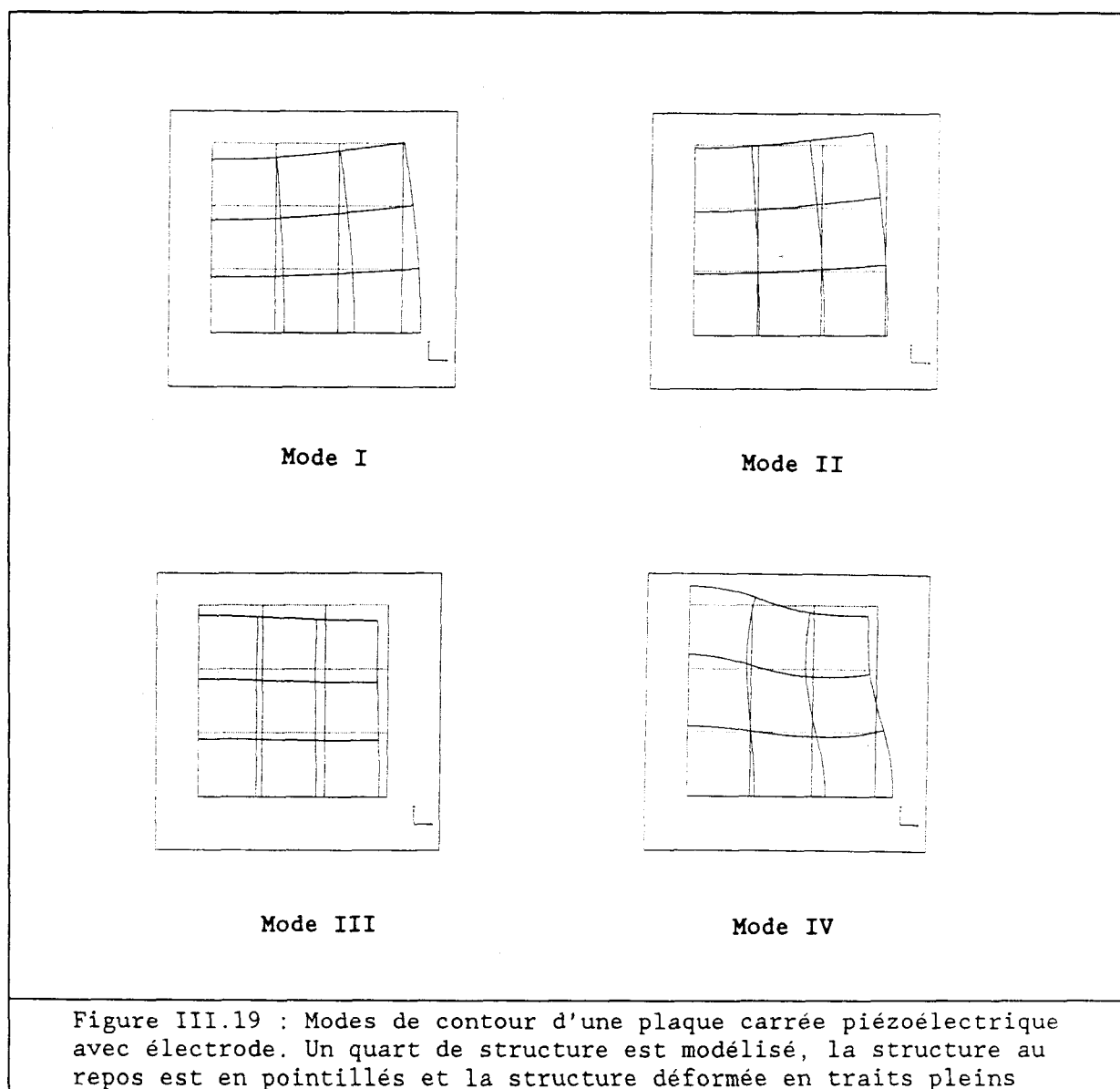
Pour le PVDF, s_{66} n'est pas lié à s_{11} , s_{22} et s_{12} par une relation simple.

Une modélisation par éléments finis nous a permis de vérifier la précision de la tabulation de F_{IV} / F_{III} en fonction de ν pour les matériaux de classe 6mm. Elle a confirmé le fait que ce rapport est rigoureusement indépendant des valeurs de flexibilité s_{11} et des amplitudes des coefficients piézoélectriques. Les résultats obtenus par simulation à l'aide des éléments finis diffèrent des résultats de H.G. BAERWALD et C. LIBOVE [64] de moins de 5%. Ces résultats peuvent être étendus à des coefficients de Poisson variant entre 0.20 et 0.45.

Ces vérifications préliminaires de la validité des résultats obtenus par éléments finis nous ont autorisé à étendre les calculs à des matériaux de classe 2mm. Les constantes des fréquences de résonance des quatre premiers modes de contour d'une plaque carrée, qui sont représentés aux figures III.19 et III.20 ont été tabulées en fonction des coefficients

de flexibilité s_{11} , s_{22} , s_{12} et s_{66} . Ces constantes sont le produit des fréquences de résonance par le côté de la plaque. Ces valeurs sont rassemblées dans les tableaux III.5 à III.6. Le rapport F_{III} / F_I dépend uniquement du coefficient de Poisson, alors que le rapport F_{IV} / F_{III} dépend aussi de s_{66} . Il est donc possible d'estimer les coefficients de Poisson et la constante s_{66}^E à l'aide des courbes III.21 et III.22. Dans un premier temps, la courbe III.21 permet l'estimation de ν_{21}^E . A l'aide de cette estimation, on peut ensuite calculer l'écart de s_{66}^E à sa valeur nominale que l'on suppose être :

$$s_{66}^E \text{ nom.} = s_{11}^E + s_{22}^E - 2 \cdot s_{12}^E = s_{11}^E \cdot (1 + \nu_{21}^E) + s_{22}^E \cdot (1 + \nu_{12}^E) \quad (\text{III.16})$$



$s_{11}^E = 0.2 \text{ nm}^2 / \text{N}$								
		$s_{22}^E = s_{11}^E$	$s_{22}^E = 105\% s_{11}^E$			$s_{22}^E = 110\% s_{11}^E$		
$\nu_{21} =$		$s_{66}^E (*)$	$s_{66}^E (*)$	$105\% s_{66}^E$	$110\% s_{66}^E$	$s_{66}^E (*)$	$105\% s_{66}^E$	$110\% s_{66}^E$
0.25	F I	798.	790.	790.	790.	781.	781.	781.
	F II	890.	880.	880.	880.	869.	869.	869.
	F III	1001.	986.	986.	986.	974.	974.	974.
	F IV	1524.	1507.	1488.	1471.	1491.	1473.	1455.
	R1	1.254	1.249	1.249	1.249	1.247		1.247
	R2	1.522	1.528	1.509	1.491	1.530	1.512	1.494
0.30	F I	783.	775.	775.	775.	767.	767.	767.
	F II	890.	879.	879.	879.	868.	868.	868.
	F III	1028.	1012.	1012.	1012.	998.	998.	998.
	F IV	1508.	1492.	1473.	1473.	1476.	1458.	1441.
	R1	1.313	1.366	1.305	1.305	1.302		1.302
	R2	1.467	1.423	1.456	1.456	1.479	1.461	1.444
0.35	F I	768.	761.	761.	761.	753.	753.	753.
	F II	889.	878.	878.	878.	868.	868.	868.
	F III	1056.	1039.	1038.	1038.	1024.	1024.	1023.
	F IV	1495.	1479.	1461.	1444.	1464.	1446.	1429.
	R1	1.373	1.366			1.360		1.360
	R2	1.416	1.423	1.407	1.391	1.429	1.412	1.397
0.40	F I	754.	747.	747.	747.	740.	740.	740.
	F II	887.	879.	879.	879.	867.	867.	867.
	F III	1086.	1067.	1067.	1066.	1051.	1051.	1050.
	F IV	1486.	1470.	1452.	1436.	1454.	1437.	1421.
	R1	1.440	1.428	1.427		1.420		1.420
	R2	1.388	1.376	1.361	1.347	1.382	1.367	1.353
0.45	F I	741.	735.	735.	735.	728.	728.	728.
	F II	886.	876.	876.	876.	866.	866.	866.
	F III	1117.	1097.	1096.	1095.	1080.	1079.	1077.
	F IV	1482.	1465.	1448.	1433.	1448.	1432.	1417.
	R1	1.507	1.494			1.483		1.483
	R2	1.327	1.334	1.321	1.310	1.341	1.328	1.315

Tableau III.5 : Constantes de fréquence

l'astérisque indique que le coefficient s_{66}^E est calculé

$$\text{selon l'expression } s_{66}^E = [s_{11}^E + s_{22}^E - 2.s_{12}^E]$$

		$s_{11}^E = 0.3nm^2/N$					$- 0.3nm^2/N$				
		$s_{22}^E = 110\% s_{11}^E$					$s_{22}^E = s_{11}^E$		$s_{22}^E = 105\% s_{11}^E$		
$\nu_{21} =$		$s_{66}^E (*)$	$105\%s_{66}^E$	$110\%s_{66}^E$	$120\%s_{66}^E$	$150\%s_{66}^E$	$s_{66}^E (*)$	$s_{66}^E (*)$	$105\%s_{66}^E$	$110\%s_{66}^E$	
0.25	F I	638.	638.	638.	638.	638.	652.	645.	645.	645.	
	F II	710.	710.	710.	709.	709.	727.	718.	718.	718.	
	F III	795.	795.	795.	795.	794.	817.	805.	805.	805.	
	F IV	1218.	1203.	1188.	1162.	1100.	1244.	1230.	1215.	1201.	
	R1	1.248	1.248	1.247	1.247	1.245	1.239	1.249	1.249	1.249	
	R2	1.531	1.512	1.494	1.462	1.385	1.522	1.528	1.509	1.491	
0.30	F I	626.	626.	626.	626.	626.	639.	633.	633.	633.	
	F II	709.	709.	709.	709.	709.	726.	718.	718.	718.	
	F III	815.	815.	815.	814.	813.	839.	826.	826.	826.	
	F IV	1205.	1191.	1177.	1151.	1091.	1231.	1218.	1203.	1189.	
	R1	1.302	1.302	1.302	1.300	1.299	1.313	1.306	1.306	1.306	
	R2	1.479	1.461	1.444	1.414	1.342	1.467	1.474	1.456	1.440	
0.35	F I	615.	615.	615.	615.	615.	627.	621.	621.	621.	
	F II	708.	708.	708.	708.	708.	726.	717.	717.	717.	
	F III	836.	836.	836.	835.	832.	862.	848.	848.	848.	
	F IV	1195.	1181.	1167.	1143.	1085.	1220.	1207.	1193.	1179.	
	R1	1.360	1.360	1.360	1.358	1.353	1.375	1.366	1.366	1.366	
	R2	1.429	1.412	1.397	1.369	1.303	1.416	1.423	1.407	1.391	
0.40	F I	604.	604.	604.	604.	604.	616.	610.	610.	610.	
	F II	708.	708.	708.	708.	708.	725.	716.	716.	716.	
	F III	859.	858.	857.	856.	852.	887.	872.	871.	870.	
	F IV	1187.	1173.	1160.	1137.	1082.	1213.	1200.	1027.	1173.	
	R1	1.420	1.420	1.419	1.417	1.410	1.440	1.429	1.428	1.426	
	R2	1.382	1.367	1.353	1.328	1.271	1.368	1.376	1.361	1.347	
0.45	F I	594.	594.	594.	594.	594.	605.	599.	599.		
	F II	707.	707.	707.	707.	707.	724.	715.	715.		
	F III	882.	881.	880.	877.	870.	912.	896.	895.		
	F IV	1183.	1169.	1157.	1135.	1185.	1210.	1196.	1183.		
	R1	1.483	1.483	1.481	1.476	1.465	1.508	1.494	1.494		
	R2	1.341	1.328	1.315	1.294	1.246	1.327	1.335	1.322		

Tableau III.6 : Constantes de fréquence

l'astérisque indique que le coefficient s_{66}^E est calculé

$$\text{selon l'expression } s_{66}^E = [s_{11}^E + s_{22}^E - 2.s_{12}^E]$$

$s_{11}^E = 0.4 \text{nm}^2/\text{N}$								
		$s_{22}^E = s_{11}^E$	$s_{22}^E = 105\% s_{11}^E$			$s_{22}^E = 110\% s_{11}^E$		
$\nu_{21} =$		$s_{66}^E (*)$	$s_{66}^E (*)$	$105\%s_{66}^E$	$110\%s_{66}^E$	$s_{66}^E (*)$	$105\%s_{66}^E$	$110\%s_{66}^E$
0.25	F I	564.	559.	559.		552.		552.
	F II	630.	622.	622.		615.		614.
	F III	708.	697.	697.		689.		689.
	F IV	1077.	1066.	1052.		1055.		1029.
	R1	1.254	1.249	1.249		1.247		1.247
	R2	1.522	1.528	1.509		1.530		1.494
0.30	F I	553.	548.	548.	548.	542.	542.	542.
	F II	629.	621.	621.	621.	614.	614.	614.
	F III	727.	715.	715.	715.	706.	706.	706.
	F IV	1066.	1055.	1042.	1030.	1044.	1031.	1019.
	R1	1.313	1.306	1.305	1.305	1.302	1.302	1.302
	R2	1.467	1.474	1.456	1.441	1.479	1.461	1.441
0.35	F I	543.	538.	538.	538.	533.	533.	533.
	F II	628.	621.	621.	621.	614.	614.	614.
	F III	747.	755.	734.	734.	724.	724.	724.
	F IV	1057.	1039.	1033.	1021.	1035.	1022.	1011.
	R1	1.375	1.366	1.365	1.365	1.360	1.360	1.360
	R2	1.416	1.423	1.407	1.392	1.429	1.413	1.397
0.40	F I	533.	528.	528.	528.	523.	523.	523.
	F II	628.	620.	620.	620.	613.	613.	613.
	F III	768.	755.	754.	754.	744.	743.	742.
	F IV	1051.	1039.	1027.	1015.	1028.	1016.	1005.
	R1	1.440	1.429	1.428	1.428	1.420	1.421	1.419
	R2	1.368	1.376	1.361	1.347	1.383	1.367	1.353
0.45	F I	524.	519.	519.	519.	515.		
	F II	627.	619.	619.	619.	612.		
	F III	790.	776.	775.	774.	764.		
	F IV	1048.	1036.	1024.	1014.	1024.		
	R1	1.508	1.494	1.494	1.491	1.483		
	R2	1.327	1.335	1.322	1.310	1.341		

Tableau III.7 : Constantes de fréquence

l'astérisque indique que le coefficient s_{66}^E est calculé

$$\text{selon l'expression } s_{66}^E = [s_{11}^E + s_{22}^E - 2 \cdot s_{12}^E]$$

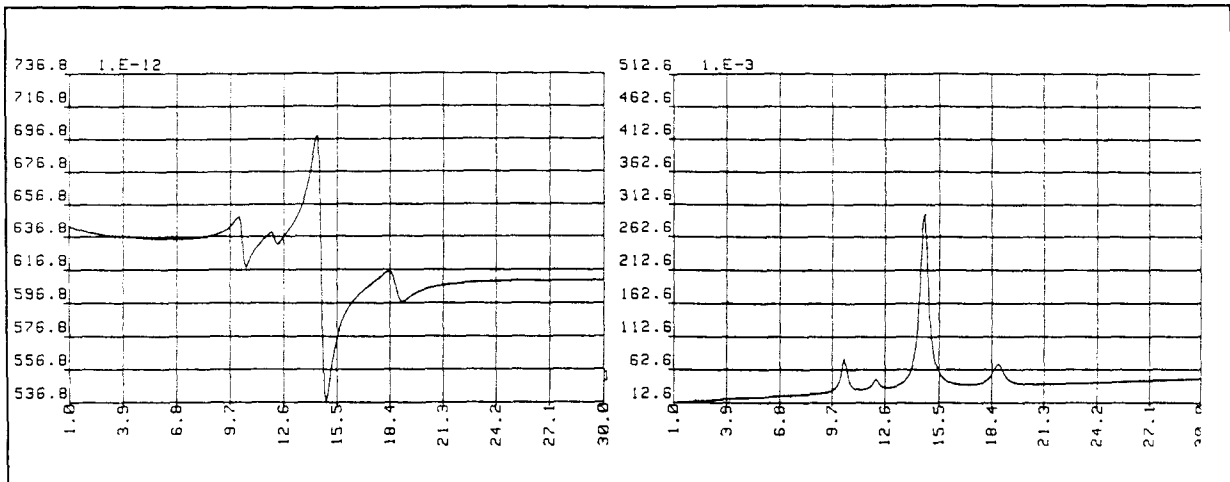


Figure III.20 : plaque carrée de PVDF
 a : Capacité
 b : angle de pertes associé à la capacité

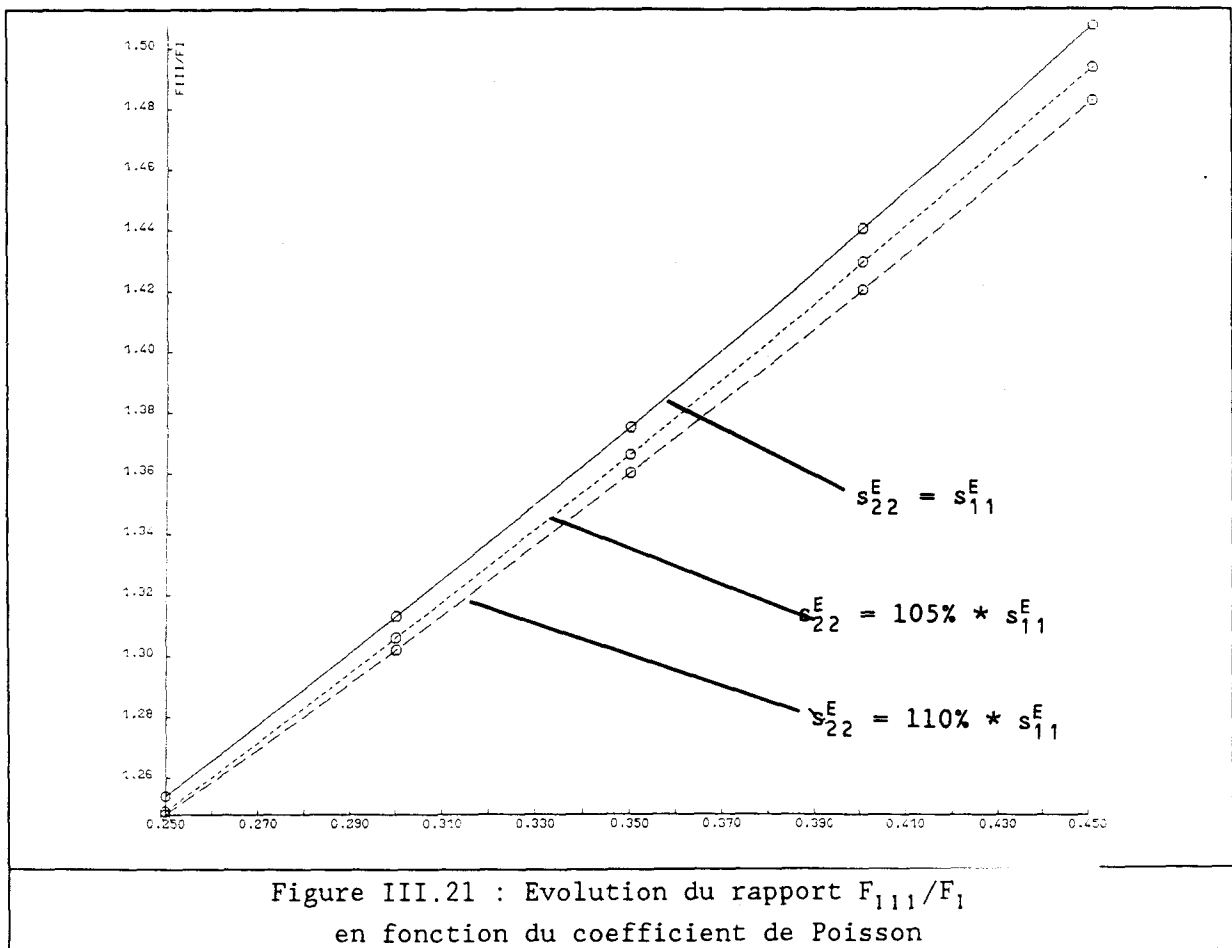
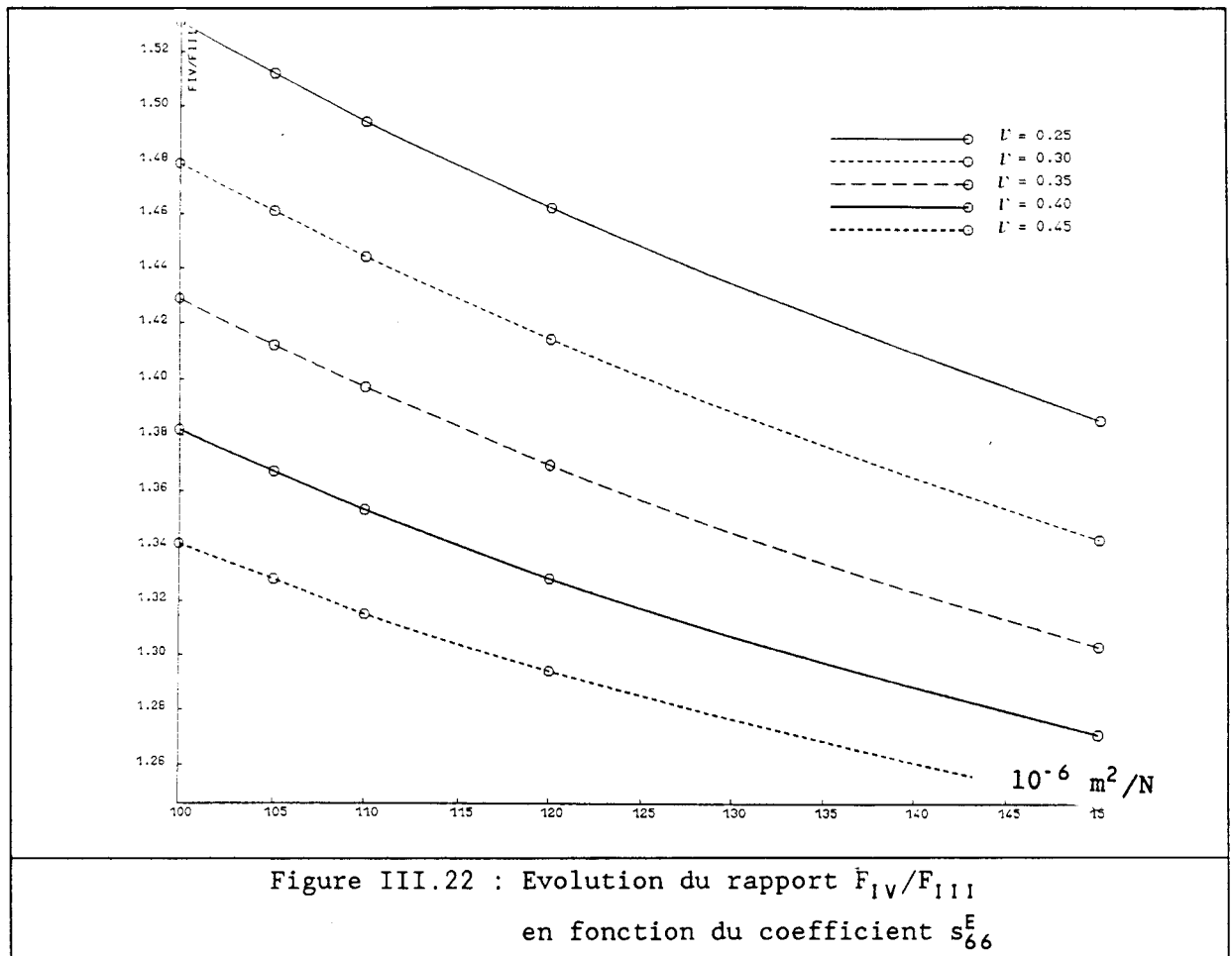


Figure III.21 : Evolution du rapport F_{111}/F_1
 en fonction du coefficient de Poisson



III.3.2. Mesures et résultats

Les quatre modes de contour qui ont été identifiés sont suffisamment couplés électriquement pour pouvoir être mesurés. La figure III.20 présente la capacité de ces modes ainsi que l'angle de pertes associé pour une éprouvette de PVDF de 50.5mm de côté et de 0.6mm d'épaisseur. Le mode II n'est pas toujours détectable, en particulier pour des températures inférieures à 15°C. Les résultats obtenus pour cette éprouvette sont représentés dans les tableaux III.8 et III.9.

Températures °C	$\frac{F_{III}}{F_I}$	ν_{21}^E	$\frac{F_{IV}}{F_{III}}$	$\frac{s_{66}^E}{s_{66}^E \text{ nominal}}$
	0	1.415	0.395	1.299
5	1.409	0.389	1.302	1.36
10	1.413	0.393	1.299	1.37
15	1.413	0.393	1.288	1.42
20	1.416	0.396	1.281	1.46
25	1.414	0.394	1.280	1.47
30	1.397	0.379	1.278	1.48
35	1.420	0.398	1.276	1.49

Tableau III.8 : Rapports de Fréquence mesurés
pour une plaque de PVDF de 50.5*50.5*0.6mm

Température °C	s_{11}^E	s_{22}^E	s_{12}^E	s_{66}^E	ν_{21}^E	s_{12}^E	erreur relative $\Delta s_{12}^E / s_{12}^E$	s_{66}^E	erreur relative $\Delta s_{66}^E / s_{66}^E$
	0	0.242	0.272	-0.128	1.08	0.53	-0.0956	25%	0.966
5	0.259	0.284	-0.131	1.16	0.505	-0.101	23%	1.01	13%
10	0.275	0.302	-0.145	1.23	0.525	-0.108	26%	1.09	12%
15	0.291	0.317	-0.153	1.28	0.525	-0.114	26%	1.19	7%
20	0.305	0.330	-0.159	1.35	0.520	-0.121	24%	1.28	5%
25	0.312	0.345	-0.167	1.42	0.53	-0.123	27%	1.33	7%
30	0.331	0.356	-0.177	1.47	0.535	-0.125	30%	1.39	6%
35	0.345	0.373	-0.187	1.55	0.54	-0.137	27%	1.48	5%

	MASON	Modes de Plaque
--	-------	-----------------

(*) Les coefficients de flexibilité sont exprimés en nm^2/N .

Tableau III.9 : Comparaison des résultats obtenus par méthode de MASON
et par mesure des modes de contour d'une plaque.

Pour une plaque de dimensions données, la mesure en température de ses quatre modes de contour permet d'identifier les constantes de fréquence F_I , F_{II} , F_{III} , F_{IV} et de quantifier les rapports F_{III}/F_I et F_{IV}/F_{III} . Les mesures effectuées par méthode de MASON permettent de connaître un ordre de grandeur du rapport s_{22}^E/s_{11}^E , dans la gamme de fréquence considérée. Ce rapport permet d'utiliser la tabulation de F_{III}/F_I en fonction de ν_{21}^E . Enfin, connaissant ν_{21}^E , on peut quantifier s_{66}^E .

Les coefficients de flexibilité obtenus par mesure de plaque sont

en bon accord avec ceux obtenus par mesure de MASON. Pour les températures inférieures à 15°C, les résonances sont très peu marquées et une erreur importante est commise sur la position de F_{1V} .

III.4 : ETUDE DU CISAILLEMENT DANS LE PVDF

Peu d'études ont été effectuées sur le cisaillement dans le PVDF. Cependant, l'identification des modes correspondants permettrait d'obtenir des informations sur les deux constantes élastiques s_{44} et s_{55} et sur les deux constantes piézoélectriques d_{15} et d_{24} .

E.L. NIX [41], à partir de mesures électromécaniques, propose les valeurs suivantes :

$$\begin{aligned}d_{15}^m &= -15.7 \cdot 10^{-12} \text{C/N} \\d_{24}^m &= -38.3 \cdot 10^{-12} \text{C/N}\end{aligned}$$

Le matériau utilisé est un PVDF fortement étiré. La manipulation consiste à prendre le film de PVDF en étau entre deux blocs de matière plastique, à imposer à ceux-ci des mouvements opposés dans le plan du film et à mesurer la charge électrique recueillie sur les électrodes recouvrant ce film.

J.J. GAGNEPAIN et B.A. AULD [71] ont mesuré le coefficient k_{15} à l'aide d'une excitation par onde de surface. Deux électrodes parallèles sont déposées sur la surface du matériau. Un champ électrique dans la direction 1 est ainsi généré et des modes de résonance dont le champ de déplacement contient une composante de cisaillement sont susceptibles d'être détectés. Cette manipulation donne des valeurs approximatives du coefficient de couplage k_{15} , qui ont permis à F. MICHERON et al. [76] de déterminer les constantes piézoélectriques suivantes :

$$\begin{aligned}d_{15} &= 5.6 \cdot 10^{-12} \text{C/N} \\d_{24} &\cong 0\end{aligned}$$

Ces valeurs ne sont, à l'évidence, pas en accord avec les précédentes, d_{15} serait plus élevé que d_{24} , mais elles ont été obtenues par extrapolation des mesures réalisées à température beaucoup plus basse.

Par ailleurs, la caractérisation du cisaillement sur éprouvettes de MASON consiste à tailler des éprouvettes suivant la géométrie décrite à la figure III.23. Mais le PVDF, de par sa présentation en films minces, ne se prête pas à cette manipulation.

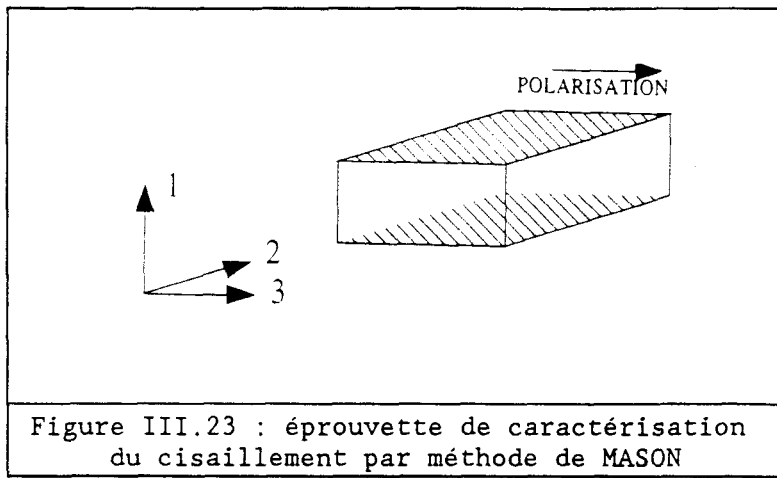


Figure III.23 : éprouvette de caractérisation du cisaillement par méthode de MASON

Dans les paragraphes qui suivent sont décrites différentes méthodes que nous avons testées pour caractériser le cisaillement dans le PVDF.

III.4.1. Etude à l'aide d'électrodes segmentées

La segmentation d'électrodes indiquée sur le schéma de la figure III.24 pourrait permettre, selon les potentiels appliqués, d'induire un champ électrique dans la direction 1 et de le coupler à une composante de cisaillement du champ de déformation ou de contrainte. Trois possibilités sont envisageables, comme indiqué sur la figure III.24. Pour sélectionner la configuration ad hoc, l'étude de la symétrie des champs est un bon outil. Admettant que le champ de déplacement \underline{u} est symétrique par rapport au plan T , quatre cas sont à considérer, correspondant à des champs de déplacement symétriques ou antisymétriques par rapport aux plans π et Σ . Si Σ est un plan de symétrie du champ de déplacement, la composante u_3 de \underline{u} est une fonction impaire de x_3 et la composante S_3 du tenseur des déformations est alors une fonction paire. En conséquence, E_3 est une fonction paire et les lignes de champ électrique doivent être normales à Σ . Si, alors, π est un plan de symétrie du champ de déplacement, u_3 est une fonction paire de x_1 et S_5 est une fonction impaire. En conséquence, E_1 est une fonction impaire et le flux du champ électrique à travers π est nul. Cette situation correspond au cas A de la figure III.24, et le mouvement est un mouvement de dilatation-compression. Si Σ reste un plan de symétrie mais que π devient un plan d'antisymétrie du champ de déplacement, E_1 est alors une fonction paire de x_1 et les lignes de champ sont normales à π , ce qui correspond au cas B de la figure III.24. Si Σ est un plan d'antisymétrie du champ de déplacement, E_3 est une fonction impaire de x_3 et le flux du champ électrique à travers Σ est nul. Si, alors, π est un

plan d'antisymétrie, le flux du champ électrique à travers π est aussi nul et c'est la situation C de la figure III.24 qui prévaut. Enfin, le quatrième cas pour lequel Σ est plan d'antisymétrie et π plan de symétrie, ne peut être produit par aucune excitation électrique. Ainsi, seuls les cas B et C sont susceptibles de produire une composante du champ électrique dans le sens 1. Toutefois, le cas C, qui peut correspondre mécaniquement à des effets de cisaillement, reste le seul intéressant.

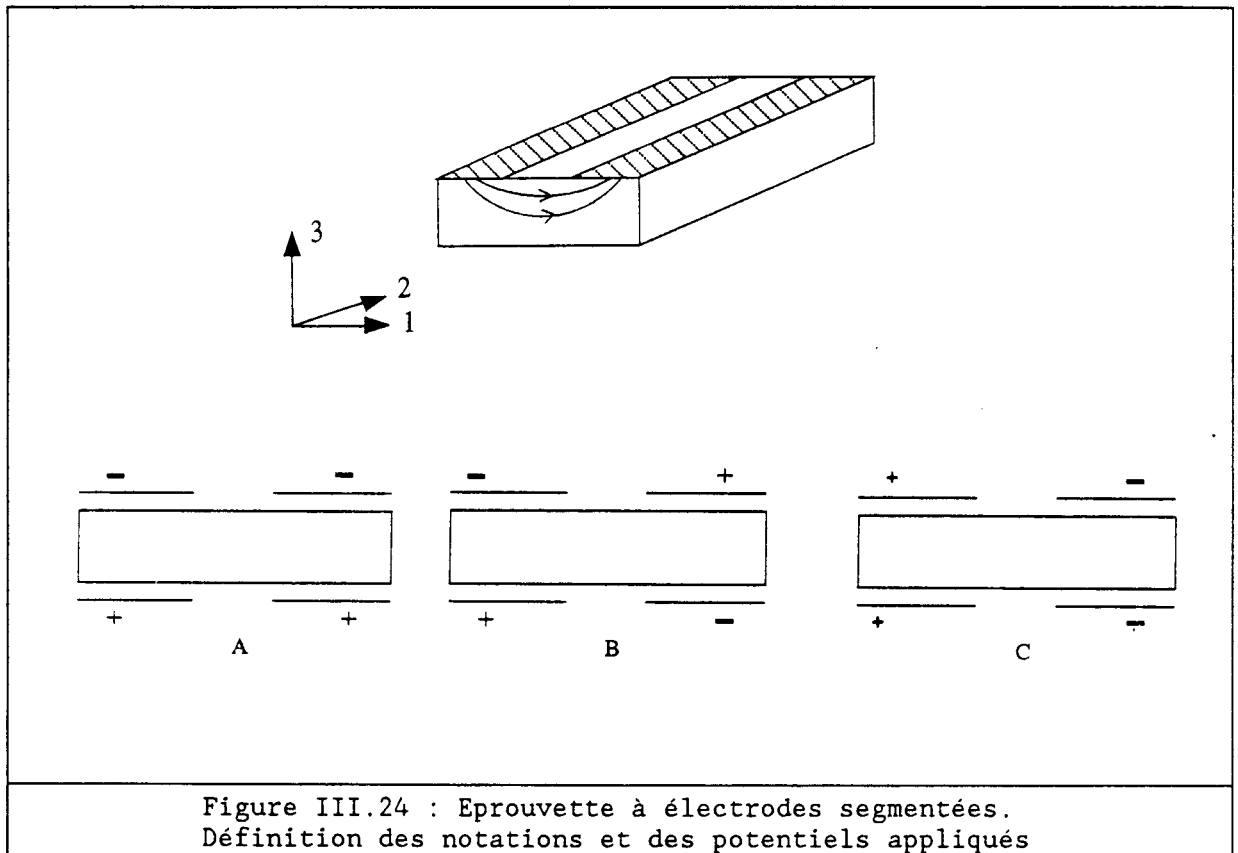


Figure III.24 : Epreuve à électrodes segmentées.
Définition des notations et des potentiels appliqués

L'étude de cette éprouvette a été menée de manière expérimentale et par simulation à l'aide des éléments finis [77]. La simulation consiste en l'analyse de la sensibilité des coefficients de couplage des modes de vibration calculés à une variation des coefficients piézoélectriques associés au cisaillement, à savoir d_{15} et d_{24} . Si, pour un matériau tel que la céramique piézoélectrique, les coefficients de couplage de certains modes de vibration obtenus varient fortement, il n'en est pas de même pour le PVDF. Un essai d'optimisation des dimensions et des rapports de dimensions susceptibles de favoriser des modes de cisaillement a donc été menée. Elle ne permet pas de conclure positivement. La mesure sur quelques éprouvettes n'a pas non plus été concluante. Cependant, les études menées par J.J. GAGNEPAIN et B.A. AULD [71] sur des dispositifs semblables ont permis d'obtenir des résultats. Toutefois, les échantillons sur lesquels

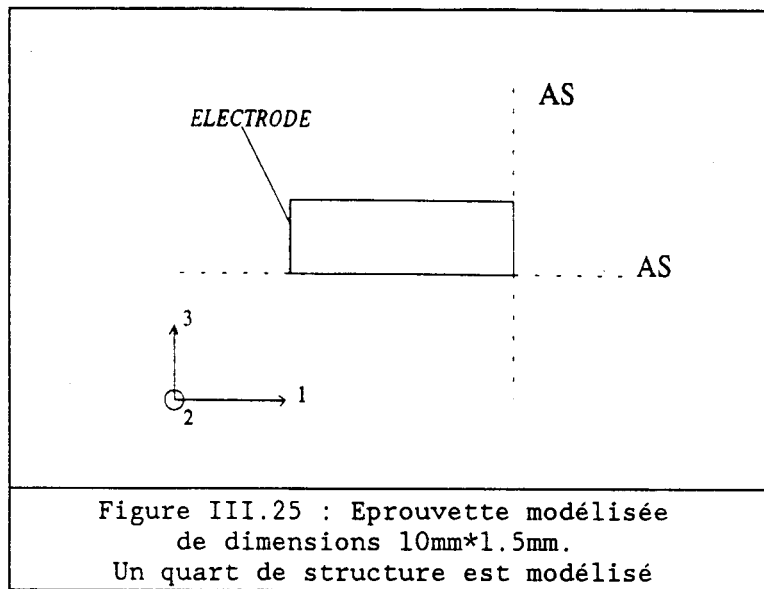
ils ont effectué leurs mesures étant très minces, on peut supposer que, dans notre cas, les champs électriques E_1 générés sont des champs de surface et sont trop faibles pour induire un cisaillement en volume.

III.4.2. Exploitation de la mesure des permittivités diélectriques

Dans la partie I.1 sont présentées les mesures d'évolution de ϵ_{11} et de ϵ_{22} en fonction de la fréquence. Sur ces courbes, apparaît une variation assez forte au voisinage de 450KHz. Cette variation est d'ailleurs présente autant sur les courbes de la permittivité diélectrique que sur les courbes de l'angle de pertes qui lui est associé. Etant donné que la configuration des électrodes n'autorise que l'existence d'un champ électrique selon la direction 1 ou 2, cette discontinuité est susceptible de révéler un mode de vibration du matériau en cisaillement. La structure ne pouvant être analysée de manière simple à l'aide d'un modèle de MASON, nous l'avons étudiée à l'aide des éléments finis.

III.4.2.1. Modélisation de la structure sans perte

Le quart de la structure, décrit en figure III.25, a été maillé. Une analyse modale a permis de déterminer les modes de vibration couplés électriquement et les constantes du matériau susceptibles de les modifier. Les valeurs nominales des constantes du matériau sont les mêmes que celles présentées en annexe E. Les tableaux III.10 et III.11 présentent les résultats obtenus. Les hypothèses simplificatrices consistent à admettre que les déformations sont planes, et que la déformation de cisaillement est antisymétrique par rapport aux deux plans médians Σ et Π . Un seul mode de vibration dont le champ de déplacement est décrit à la figure III.26 présente, par comparaison aux autres, un couplage significatif.



A

Fréquence de résonance KHz	Fréquence d'antirés. KHz	Coefficient de couplage %
57	57	0
138	138	0
227	227	0
274.7	274.8	3
317	317	0

B

Fréquence de résonance KHz	Fréquence d'antirés. KHz	Coefficient de couplage %
57	57	0
142	142	0
235	236	11
277	289	28
323	323	3

Tableau III.10 : Résultats de modélisation.

A : valeurs nominales des constantes du PVDF.

B : Le coefficient d_{15} a été multiplié par 10.

Variations des constantes du matériau	Variations des dimensions du matériau	Fréquence de résonance du mode couplé (en KHz)	coefficient de couplage du mode en %
nominales	nominales	275	3
$d_{15} * 10$	nominales	278	28
nominales	75% longueur	273	3
$d_{15} * 10$	75% longueur	276	28
nominales	66% épaisseur	404	3
$d_{15} * 10$	66% épaisseur	407	29
nominales	133% épaisseur	205	3
$s_{55} * 1.5$	nominales	227	2
$s_{11} * 1.5$	nominales	270	3
$s_{33} * 1.5$	nominales	273	3
$d_{31} * 10$	nominales	273	3

Tableau III.11 : Influence des propriétés du matériau et des dimensions de l'éprouvette sur le mode couplé

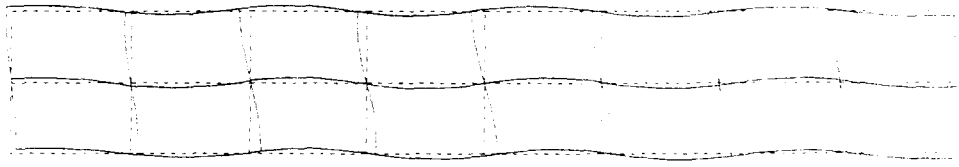


Figure III.26 : Champ de déplacement du mode couplé.
Les traits pleins correspondent à la structure déformée et les pointillés à la structure au repos.

Selon les résultats du tableau III.11, les seuls constantes du matériau ayant une influence significative sur le mode couplé sont le coefficient de flexibilité s_{55}^E et le coefficient piézoélectrique d_{15} . L'épaisseur du matériau a une influence sur la position de la résonance, alors que sa longueur en a peu, dans une gamme limitée cependant. Le mode étudié est donc suffisamment simple pour qu'une étude harmonique prenant en compte les pertes soit menée. Dans le cas contraire, si le mode s'était révélé dépendre de nombreux facteurs, l'extraction des coefficients de cisaillement aurait nécessité une analyse trop complexe.

III.4.2.2. Etude harmonique du système à l'aide des éléments finis

L'analyse harmonique du système consiste en l'étude de l'évolution de son admittance avec la fréquence. Comme dans le chapitre III.1, pour la caractérisation des peignes interdigités, on s'intéresse à la conductance. La séparation de la partie diélectrique et de la partie motionnelle permet le calcul de la position du maximum de G_M , de son amplitude et de la bande passante à -3dB de cette résonance. Dans cette section, on cherche à tirer des règles permettant l'extraction des coefficients de cisaillement. Dans chacun des cas étudiés, sont comparés :

- l'angle des pertes mécaniques associé au coefficient de flexibilité s_{55}^E avec l'inverse de la bande passante mesurée,

- la célérité $1/\sqrt{\rho \cdot s_{55}^E}$, avec la constante de fréquence N_{55} , produit de l'épaisseur par la fréquence de résonance,
- le maximum de G_M avec la quantité \mathcal{G} homogène à une conductance :

$$\mathcal{G} = C \cdot \frac{d_{15}^2}{s_{55}^E} \cdot \frac{S}{\mathcal{E}} \cdot \omega_0 \cdot \frac{1}{\text{tg}\delta_m} \quad (\text{III.17})$$

où S est la surface des électrodes et \mathcal{E} l'espace entre celles-ci. Cette comparaison cherche à mettre en évidence le fait que le coefficient de proportionnalité C reste constant.

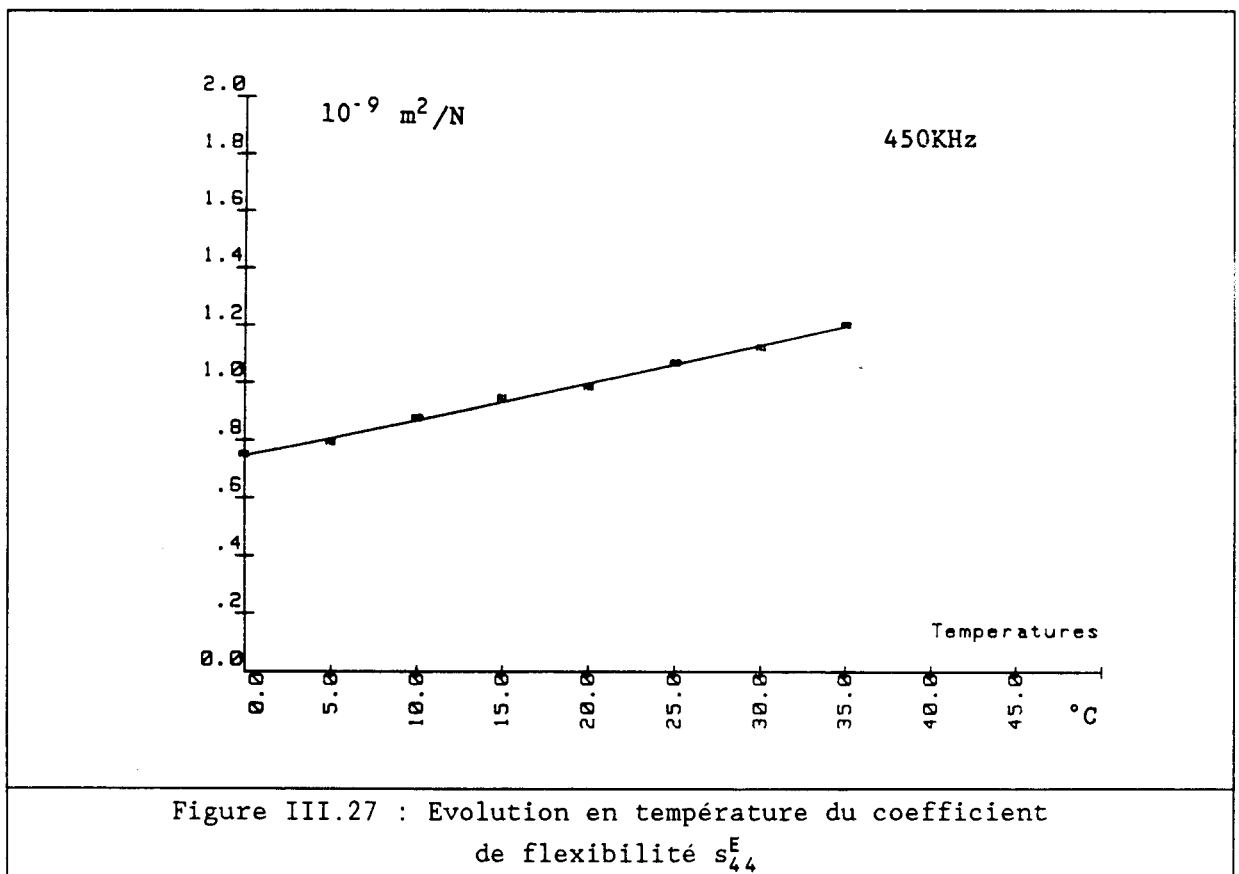
L'étude consiste à modifier les constantes du matériau susceptibles d'avoir une influence sur la position, l'amplitude et la bande passante de la résonance étudiée. Les valeurs nominales de ces constantes sont les mêmes que celles prises dans l'analyse harmonique. Les résultats de ces comparaisons sont présentés dans le tableau III.12. Ce tableau nous permet de tirer les conclusions suivantes. Il existe une relation de proportionnalité entre la célérité et la constante de fréquence N_{55} . La mesure de cette constante nous permet donc de calculer le coefficient de flexibilité s_{55}^E . La bande passante à -3dB est égale à l'inverse de l'angle des pertes mécaniques associé à s_{55}^E . Si l'on exclut les résultats où le coefficient piézoélectrique nominal est multiplié par 10, la constante C calculée varie de moins de 10% autour de la valeur moyenne de 0.63. La qualité de ces résultats permet donc de penser que la méthode peut être employée pour déterminer les coefficients caractéristiques du cisaillement dans le PVDF.

variation des propriétés introduites	N_{55} en m/s	célérité en m/s	angle des pertes mécaniques introduit (%)	angle des pertes mécaniques mesuré (%)	maximum de G_M en μS	C
	412.5	798	5	5.1	0.326	0.623
$d_{15} * 5$	414	798	5	5.1	8.03	0.617
$d_{15} * 10$	417	798	5	5.3	32.6	0.599
$tg\delta_m = 7\%$	412.5	798	7	7.0	0.326	0.637
$tg\delta_m = 10\%$	412.5	798	10	10.0	0.167	0.644
$d_{15} * 5$ $tg\delta_m = 7\%$	414	798	7	7.1	5.85	0.632
$s_{55}^E * 0.8$	459	892	6.2	6.3	0.376	0.652
$s_{55}^E * 0.8$ $d_{15} * 2$	459	892	5.0	5.1	1.86	0.643
$s_{55}^E * 0.8$ $d_{15} * 5$	460	892	5.0	5.1	11.6	0.641
$s_{55}^E * 0.8$ $d_{15} * 10$	463.5	892	5.0	5.2	46.1	0.637
$s_{55}^E * 0.8$	459	892	7.0	7.0	0.338	0.654
$s_{55}^E * 0.8$	459	892	10.0	10.1	0.238	0.658
$s_{55}^E * 0.8$ $d_{15} * 5$	460	892	10.0	10.1	5.95	0.658
$s_{55}^E * 1.2$	378	728	4.2	4.3	0.284	0.598
$s_{55}^E * 1.2$ $d_{15} * 2$	378	728	4.2	4.3	1.135	0.600
$s_{55}^E * 1.2$ $d_{15} * 5$	379.5	728	4.2	4.3	6.96	0.587
$s_{55}^E * 1.2$ $d_{15} * 10$	382.5	728	4.2	4.5	26.4	0.556
$s_{55}^E * 1.2$	378	728	5.0	5.1	0.24	0.606
$s_{55}^E * 1.2$	378	728	10.0	10.1	0.124	0.626
$s_{55}^E * 1.2$ $d_{15} * 5$	378	728	10.0	10.1	3.05	0.616

Figure III.12 : Résultats des simulations

III.4.2.3. Résultats expérimentaux

Les résonances des modes de vibration en cisaillement sont assez bruitées et l'extraction des coefficients pour certains paliers de température n'a pas été possible. Les figures III.27 à III.29 présentent les évolutions en température des coefficients autour de la fréquence de 420KHz. L'erreur sur les coefficients de flexibilité est inférieure à 5%, celle sur les angles de pertes mécaniques est de l'ordre de 10% et les coefficients piézoélectriques sont estimés à mieux que 20%.



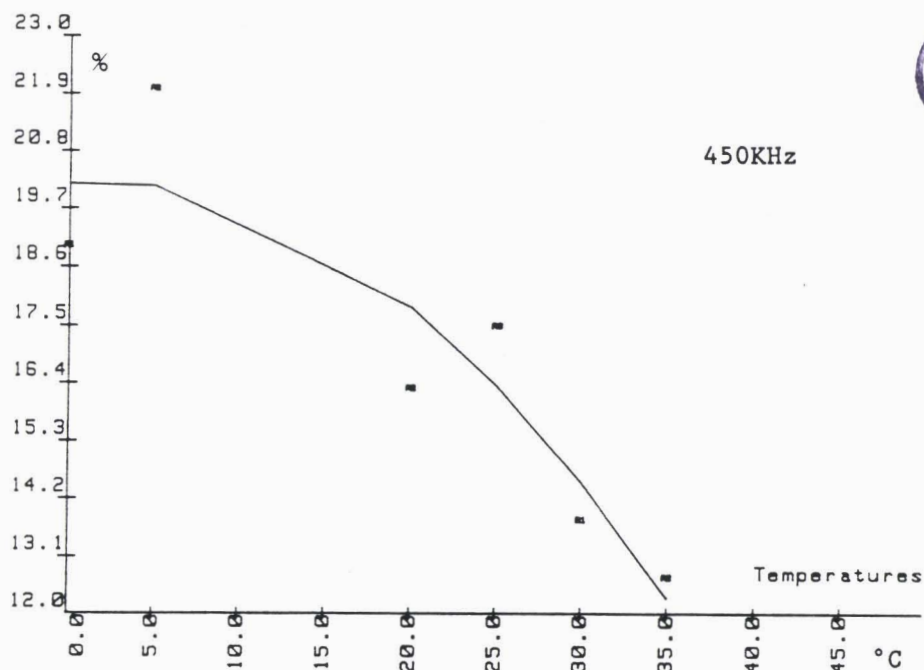


Figure III.28 : Evolution en température de l'angle de pertes associé au coefficient de flexibilité s_{44}^E

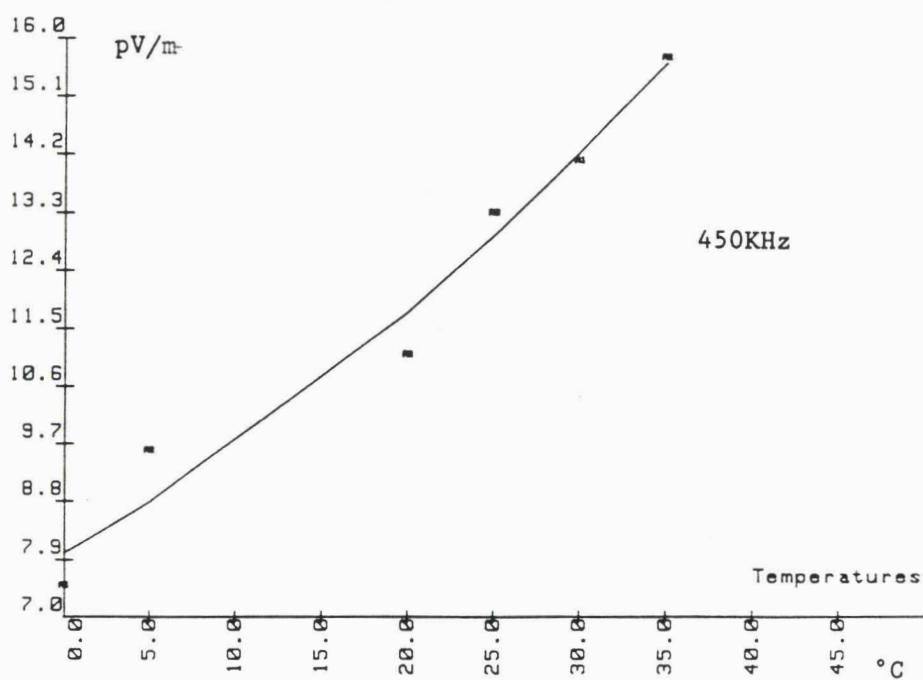


Figure III.29 : Evolution en température du coefficient piézoélectrique d_{24}

Le coefficient piézoélectrique d_{15} est notablement plus faible que le coefficient d_{24} , puisque les résonances qui lui sont associées ne sont pas détectables. C'est le résultat inverse de celui de F. MICHERON [76]. Par ailleurs, la méthode que nous avons employée ne permet pas de conclure sur le signe de ces coefficients. La qualité des résultats obtenus pourrait être améliorée par une nouvelle série de modélisations autour des valeurs qui ont été calculées, la constante C serait alors déterminée de manière plus précise. Néanmoins, la simplicité de la mise en oeuvre de cette méthode la rend attrayante.

CHAPITRE IV

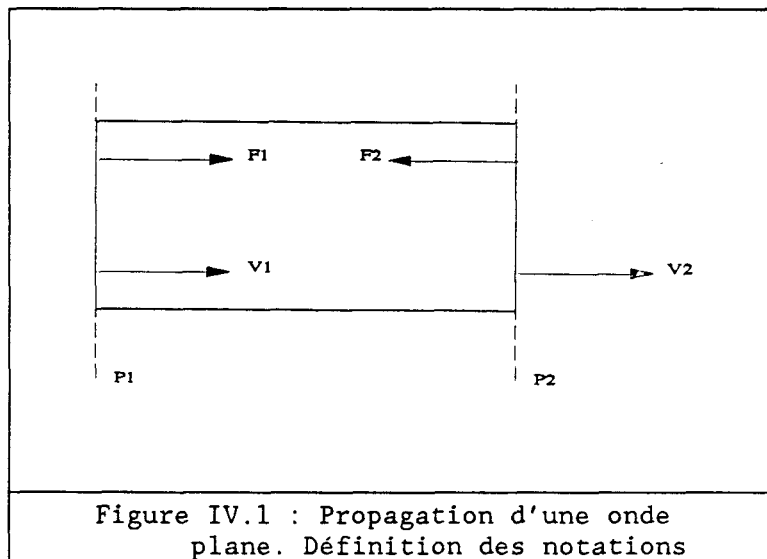
CARACTERISATIONS DE TYPE MECANIQUE

Les mesures de résonance électrique ne peuvent être effectuées en basse fréquence, parce les dimensions des éprouvettes ne le permettent pas. La quantification des propriétés des matériaux piézoélectriques en basse fréquence est cependant importante, puisque l'on cherche à construire des hydrophones travaillant dans ces gammes. Les méthodes de mesure applicables en basse fréquence sont de types mécanique ou électromécanique. L'excitation du système est alors mécanique, la réponse mesurée étant soit mécanique, soit électrique. Dans ce chapitre, deux types de vibration sont étudiés. La première partie traite des vibrations en dilatation-compression, la seconde des excitations en flexion. Dans chacun des cas, différents types de conditions limites mécaniques qu'il est possible d'utiliser sont considérés, ainsi que les techniques de mesure adaptées à celles-ci. Les résultats sont validés par confrontation avec les valeurs obtenues par d'autres types de mesure.

IV.1. MESURES EN ELONGATION

IV.1.1. Modèle d'ondes planes

Soit une structure dont l'une des dimensions est grande devant les deux autres. Si l'on considère une propagation de la vibration dans le sens de la plus grande longueur, et si les fréquences sont suffisamment basses, alors on peut estimer que les champs de déplacement (et par conséquent de vitesse et d'accélération) et de force sont uniformes dans les plans perpendiculaires à cette direction de propagation. On peut alors, connaissant la vitesse de vibration V_1 et le vecteur force F_1 dans le plan P_1 , en déduire les vitesse de vibration et force V_2 et F_2 dans le plan P_2 (figure IV.1).



Formellement, on peut écrire :

$$\begin{pmatrix} F_2 \\ V_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{11} & T_{12} \\ T_{21} & T_{22} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} F_1 \\ V_1 \end{pmatrix} \quad (\text{IV.1})$$

où $[T]$ représente la matrice de transfert du milieu situé entre les plans P_1 et P_2 . On peut associer ces matrices de transfert en série ou en parallèle. Dans le cas d'une masse pure M dont on néglige l'élasticité, la matrice de transfert s'écrit, avec ω comme pulsation :

$$[T] = \begin{bmatrix} 1 & -jM\omega \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (\text{IV.2})$$

Dans le cas d'un parallélogramme de section \mathcal{A} , de longueur L , de masse

volumique ρ , dans lequel la vitesse de propagation des ondes est c , la matrice de transfert s'écrit :

$$[T] = \begin{bmatrix} \cos\left(\frac{\omega L}{c}\right) & -j \cdot \mathcal{A} \cdot \rho \cdot c \cdot \sin\left(\frac{\omega L}{c}\right) \\ \frac{\sin\left(\frac{\omega L}{c}\right)}{j \cdot \mathcal{A} \cdot \rho \cdot c} & \cos\left(\frac{\omega L}{c}\right) \end{bmatrix} \quad (\text{IV.3})$$

Ces modèles vont être utilisés dans le calcul des impédances mécaniques F/V de différents systèmes. La mesure de ces impédances permettra l'obtention des coefficients de flexibilité du matériau.

IV.1.2. Mesure sur un barreau dont l'extrémité est libre

Le dispositif décrit figure IV.2 permet de caractériser les résonances mécaniques de dilatation-compression d'une barreau. Un pot vibrant Bruël et Kjaer impose un déplacement de type sinusoïdal à un équipage mobile comprenant le barreau dont on cherche à mesurer les propriétés, le mors par lequel il est fixé, une tête d'impédance qui permet de mesurer force F_T et accélération γ_T en un point. La fonction de transfert du système s'écrit :

$$\begin{pmatrix} F_T \\ V_T \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & -jM\omega \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \cos(X) & -j \cdot \mathcal{A} \cdot \rho \cdot c \cdot \sin(X) \\ \frac{\sin(X)}{j \cdot \mathcal{A} \cdot \rho \cdot c} & \cos(X) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ V \end{pmatrix} \quad (\text{IV.4})$$

avec :

- M la masse du mors et de l'équipage mobile de la tête d'impédance,
- $X = \omega L/c$
- V la vitesse de vibration de l'extrémité de l'éprouvette,
- L la longueur de l'éprouvette,
- \mathcal{A} sa section droite,

- c la vitesse de propagation dans le barreau, égale à $\sqrt{\frac{1}{\rho \cdot s_{ii}}}$, ($i=1,2$).

Alors :

$$Z = \frac{F_T}{V_T}(\omega) = -jM\omega - j\mathcal{A} \cdot \rho \cdot c \cdot \text{tg}(X) = -j \cdot M \cdot \omega \cdot \left(1 + \frac{M_{\text{PVD F}}}{M} \cdot \frac{\text{tg}(X)}{X} \right) \quad (\text{IV.5})$$

En mesurant l'impédance mécanique $Z(\omega)$ du système, on peut accéder à la

vitesse de propagation à l'intérieur du matériau. La figure IV.3 donne une représentation de cette impédance en fonction de la fréquence.

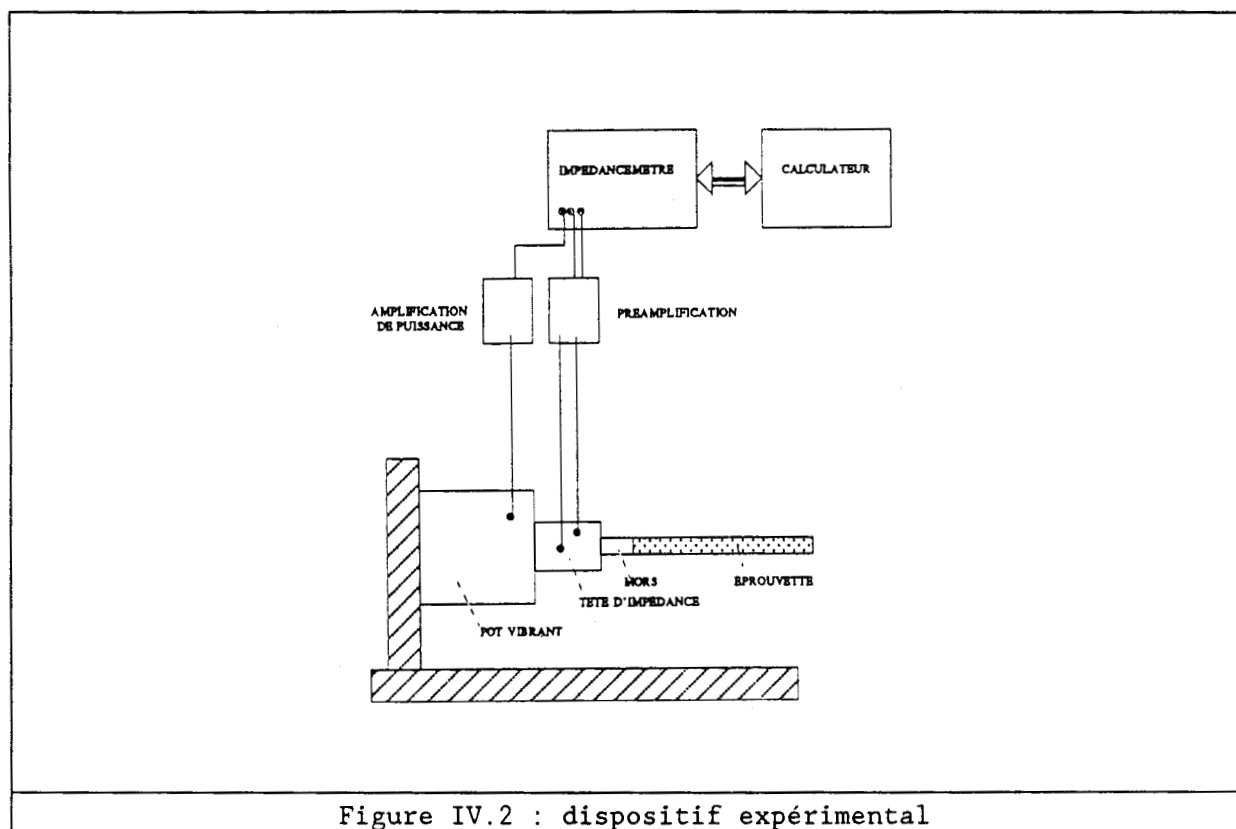


Figure IV.2 : dispositif expérimental

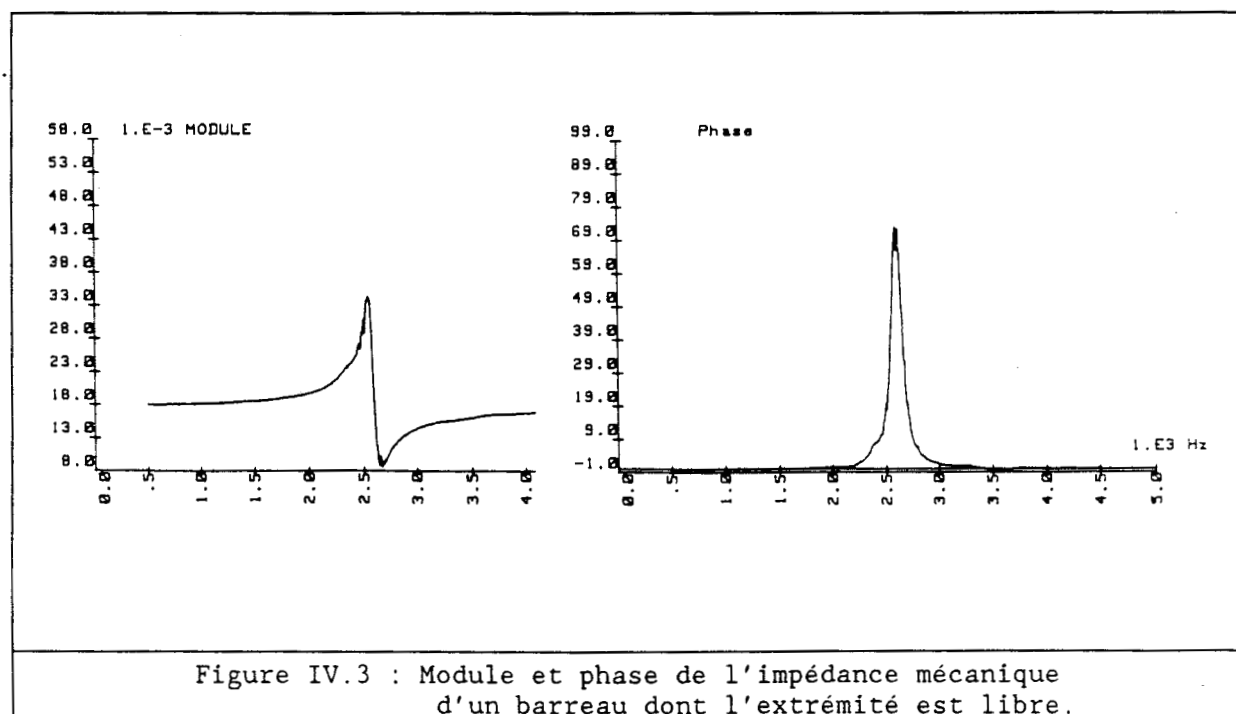


Figure IV.3 : Module et phase de l'impédance mécanique d'un barreau dont l'extrémité est libre.

Les fréquences d'antirésonance F_A sont les fréquences pour lesquelles l'impédance devient infinie. La bande passante à -3dB mesurée sur l'argument de cette impédance permet le calcul direct de l'angle des

pertes associées au coefficient de flexibilité. Pour des fréquences éloignées des F_A , l'impédance est dominée par le terme de masse M , si réduit soit-il. On ne peut donc pas calculer le coefficient de flexibilité s_{ij} ($i=1$ ou 2) de manière continue en fonction de la fréquence. Des mesures ont été effectuées sur ce système, afin de tester la validité de la manipulation et de confronter les résultats obtenus par mesure des résonances électriques aux résultats de mesures mécaniques simples. Le tableau IV.1 présente une telle confrontation pour une éprouvette de 14cm environ. Les résultats des mesures par méthode de MASON correspondent au mode 31.

Température	s_{11}^E Méca	s_{11}^E Mason	$\Delta s_{11}^E / s_{11}^E$	$tg\delta_m$ méca	$tg\delta_m$ Mason	$\Delta tg\delta_m / tg\delta_m$
°C	nm^2/N	nm^2/N	%	%	%	%
0	0.253	0.270	7	8.9	9	1
5	0.268	0.283	6	7.3	7	4.5
10	0.282	0.297	5	5.4	5	8
15	0.288	0.310	7	5.1	4.4	16
20	0.301	0.320	6	4.6	3.7	24
25	0.309	0.332	7	4.0	3.3	21
30	0.322	0.343	7	3.8	3.1	23
35	0.338	0.358	6	3.9	3.05	30

Tableau IV.1 : Comparaison des résultats obtenus par méthode de MASON et par mesure mécanique d'un barreau à extrémité libre.

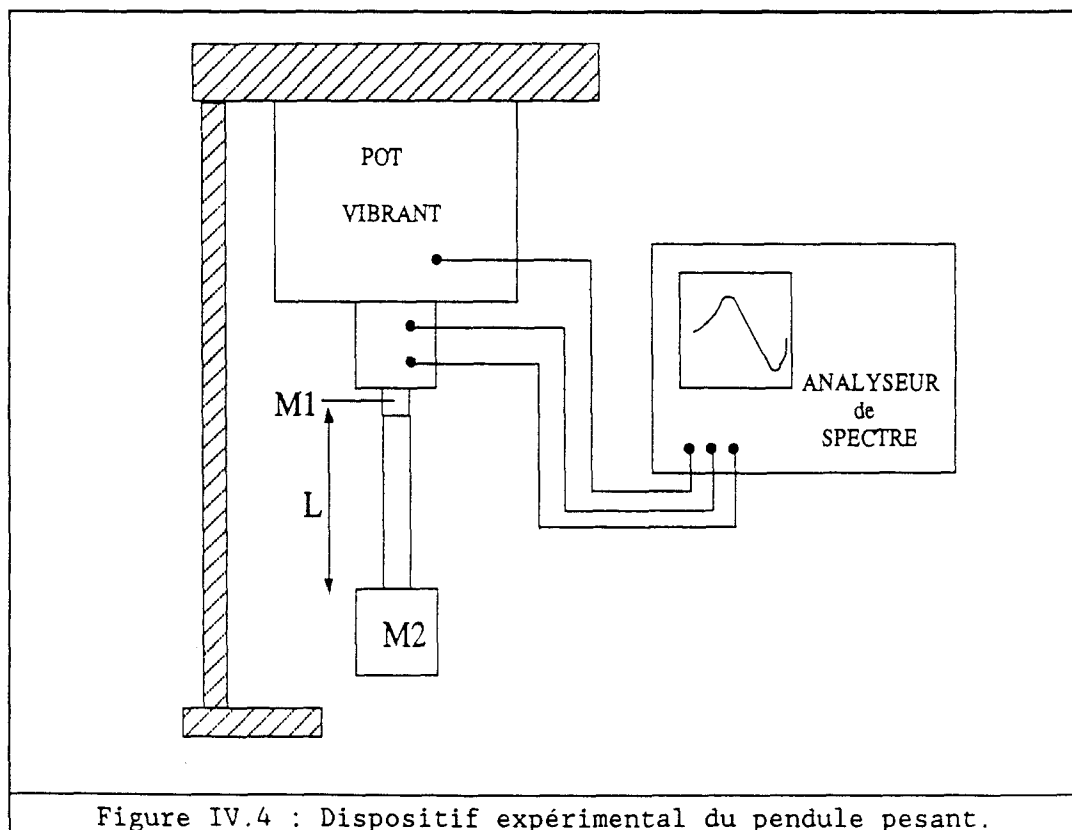
Les écarts relatifs entre les différentes valeurs de la constante de flexibilité ne dépassent pas 7%. Le recoupement entre ces deux types de manipulation est donc très bon, compte tenu des caractères très différents des systèmes. En particulier, il est difficile de quantifier précisément la longueur de l'éprouvette à mesurer par la méthode mécanique. En effet, étant donné que l'un des bords est encastré dans un mors, la longueur effective sur laquelle s'effectue la propagation dans le barreau étudié est probablement un peu plus grande que la longueur non encastrée, et donc les valeurs des constantes de flexibilité probablement plus élevées.

Toutefois, même si la mise en oeuvre de la méthode de mesure décrite ici ne présente pas de difficulté majeure, la manipulation ne présente qu'un intérêt limité. De fait, l'obtention de la variation des propriétés mécaniques du matériau en fréquence nécessiterait la découpe d'éprouvettes de longueurs variées. De plus, les dimensions des plaques de PVDF disponibles ne permettent pas d'effectuer ce type de mesure en dessous de 1KHz.

IV.1.3. Mesures avec un pendule pesant

La méthode décrite au paragraphe précédent présente l'inconvénient de ne pouvoir être exploitée en dessous de 1KHz. Pour diminuer la fréquence de résonance d'un tel système, il serait possible de fixer en extrémité de l'éprouvette des masses M de plus en plus lourdes et de constituer un système "masse-ressort" dont la fréquence de résonance est inversement proportionnelle à la masse [78]. C'est ce principe qui est étudié brièvement ici.

La figure IV.4 présente le dispositif expérimental. M_1 , M_2 et M sont respectivement les masses du mors couplé à l'équipage mobile de la tête d'impédance, de la masse en bout d'échantillon et du mors qui lui est associé, et enfin du PVDF. Un analyseur de spectre excite en bruit blanc le pot vibrant via un amplificateur de puissance et calcule la fonction de transfert F/V à partir des informations fournies par la tête d'impédance.



L'impédance mécanique vue par la tête d'impédance s'écrit :

$$\frac{F}{V}(\omega) = j \cdot \omega \cdot \frac{(M_1 + M_2) \cdot \cos\left(\frac{\omega \cdot L}{c}\right) + \left(\frac{M_2 \cdot c}{\omega \cdot L} - \frac{M_1 \cdot M_2}{M} \cdot \frac{\omega \cdot L}{c}\right) \cdot \sin\left(\frac{\omega \cdot L}{c}\right)}{\cos\left(\frac{\omega \cdot L}{c}\right) - \frac{M_2 \cdot \omega \cdot L}{M \cdot c} \cdot \sin\left(\frac{\omega \cdot L}{c}\right)} \quad (\text{IV.6})$$

Dans le cas où la fréquence d'étude est faible, l'équation peut se simplifier en:

$$\frac{F}{V}(\omega) = j \cdot \omega \cdot \left(M_1 + \frac{1}{\frac{1}{M_2} - \omega^2 \cdot \frac{L}{\mathcal{A}} \cdot s_{11}^E} \right) \quad (\text{IV.7})$$

Cette expression simplifiée permet de caractériser rapidement le comportement du système. Si ω est égale à :

$$\omega_0 = \left[\mathcal{A} / \left(L \cdot s_{11}^E \cdot M_2 \right) \right]^{1/2} \quad (\text{IV.8})$$

l'impédance devient infinie. Si la pulsation est égale à :

$$\omega_1 = \left((\mathcal{A} \cdot (M_1 + M_2)) / \left(L \cdot s_{11}^E \cdot M_1 \cdot M_2 \right) \right)^{1/2} \quad (\text{IV.9})$$

elle s'annule. On peut alors tracer l'allure des variations du module $\|F/(j\omega V)\|$ en fonction de la fréquence (figure IV.5).

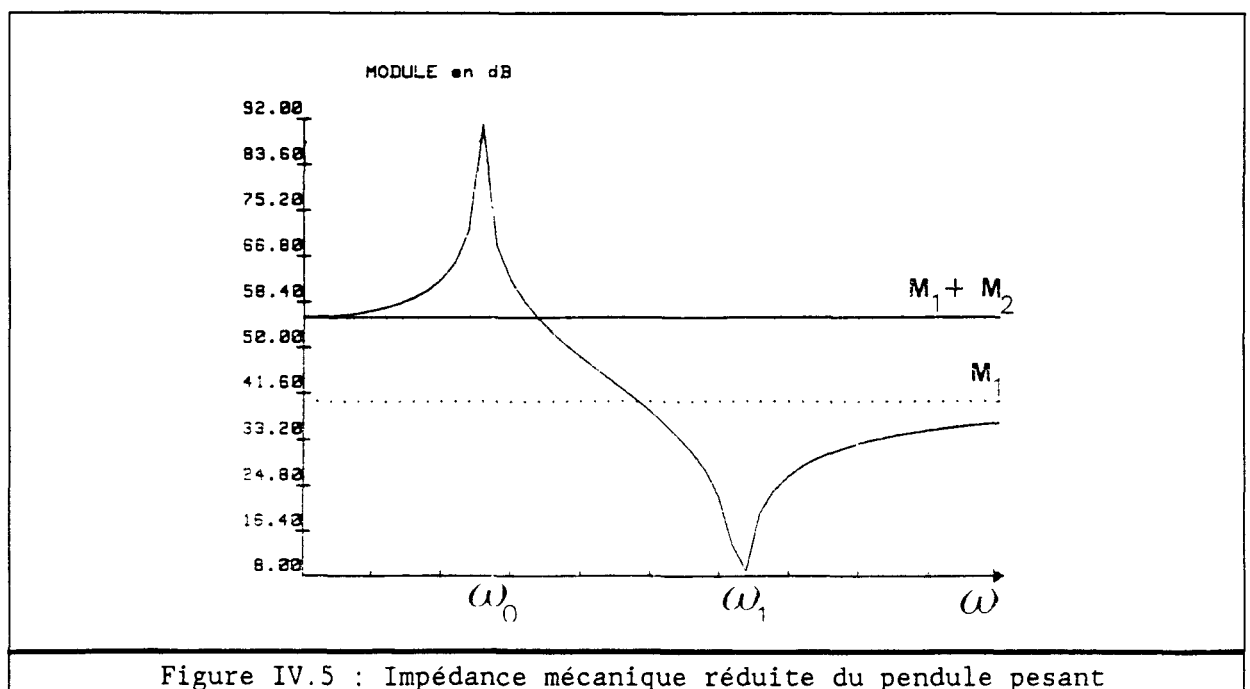
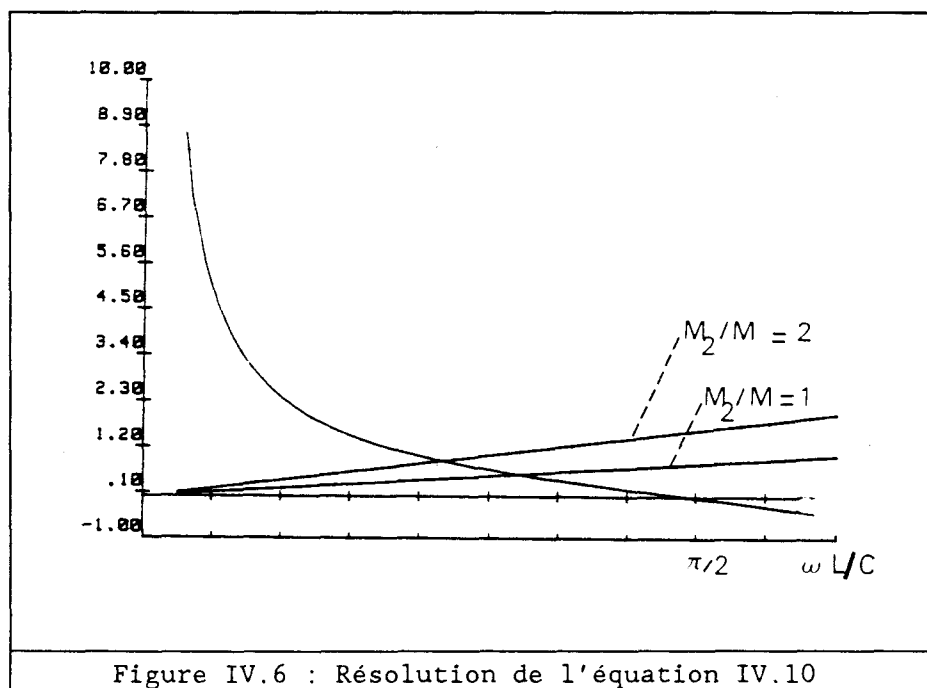


Figure IV.5 : Impédance mécanique réduite du pendule pesant

Cette approximation de fréquences faibles ne sera vérifiée que si les masses M_1 et M_2 sont suffisamment élevées. Dans le cas contraire, la pulsation ω_0 telle que le dénominateur de l'impédance mécanique s'annule est solution de l'équation suivante:

$$\cotg\left(\frac{\omega.L}{c}\right) = \frac{M_2}{M} \cdot \frac{\omega.L}{c} \quad (\text{IV.10})$$

Cette équation se résoud très bien par une méthode itérative. Pour suivre les évolutions de la célérité c avec la fréquence, il suffit de changer la masse M_2 en extrémité de l'éprouvette. En effet, pour une pulsation ω_0 d'antirésonance mesurée, l'inconnue de l'équation est c . Plus M_2 est élevée, plus ω_0 est faible. Cependant, il est difficile de faire varier la position de ω_0 de manière linéaire, en changeant de masse M_2 , et une variation ΔM_2 faible correspond à un changement de fréquence important (figure IV.6).



Nous avons testé la faisabilité de la méthode décrite ci-dessus. Si la mise en oeuvre de la manipulation ne présente pas de difficulté, des problèmes inhérents à ce type de montage se sont posés :

- les masses M_2 à ajouter sont très petites et la précision relative de leur mesure est mauvaise,
- des flexions parasites viennent perturber le spectre de fréquence et

biaisent les résultats. On ne peut atténuer ces flexions, sans obtenir un système mal défini,

- La régulation en température de la manipulation est longue et fastidieuse, puisqu'il faut changer la masse M_2 .

En conclusion, la méthode de mesure par pendule pesant peut permettre une confrontation qualitative des résultats sans être un moyen fiable et rapide de mesure des coefficients mécaniques du matériau.

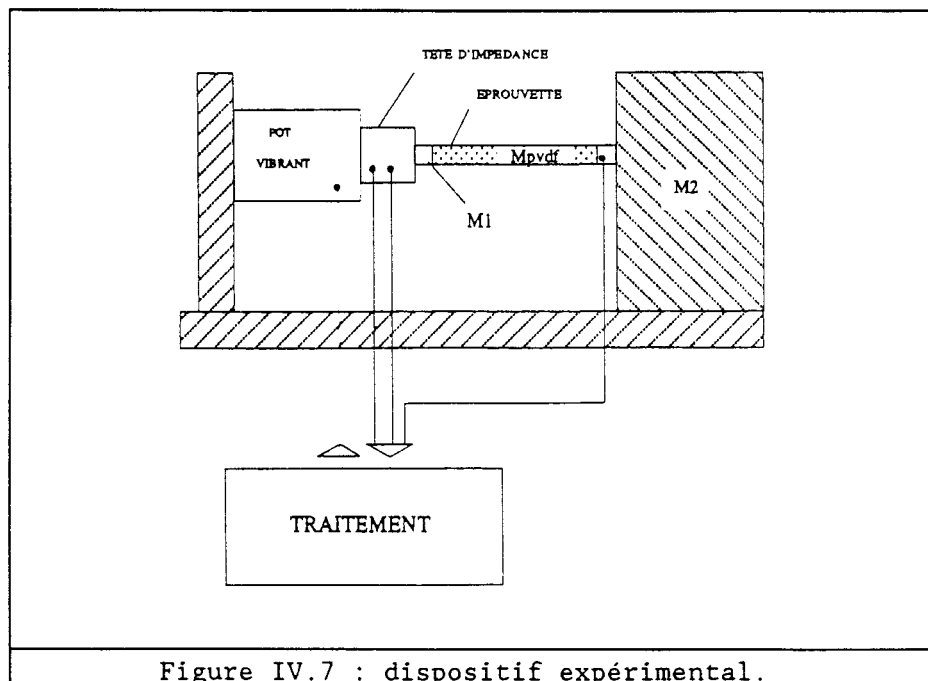
IV.1.4. Mesures sur un barreau dont l'extrémité est encastrée

IV.1.4.1. Calcul de l'impédance mécanique

L'extrémité du barreau à étudier est encastrée dans une masse M_2 (figure IV.7). Si l'encastrement de l'extrémité est parfait, alors l'impédance mécanique vue de la tête d'impédance s'écrit :

$$Z(\omega) = j\omega \left(M_1 - M \frac{\cotg\left(\frac{\omega \cdot L}{c}\right)}{\frac{\omega \cdot L}{c}} \right) = jM_1\omega \left(1 - \frac{M}{M_1} \frac{\cotg\left(\frac{\omega \cdot L}{c}\right)}{\frac{\omega \cdot L}{c}} \right) \quad (\text{IV.11})$$

Ses variations en fonction de la fréquence sont représentées à la figure IV.8.



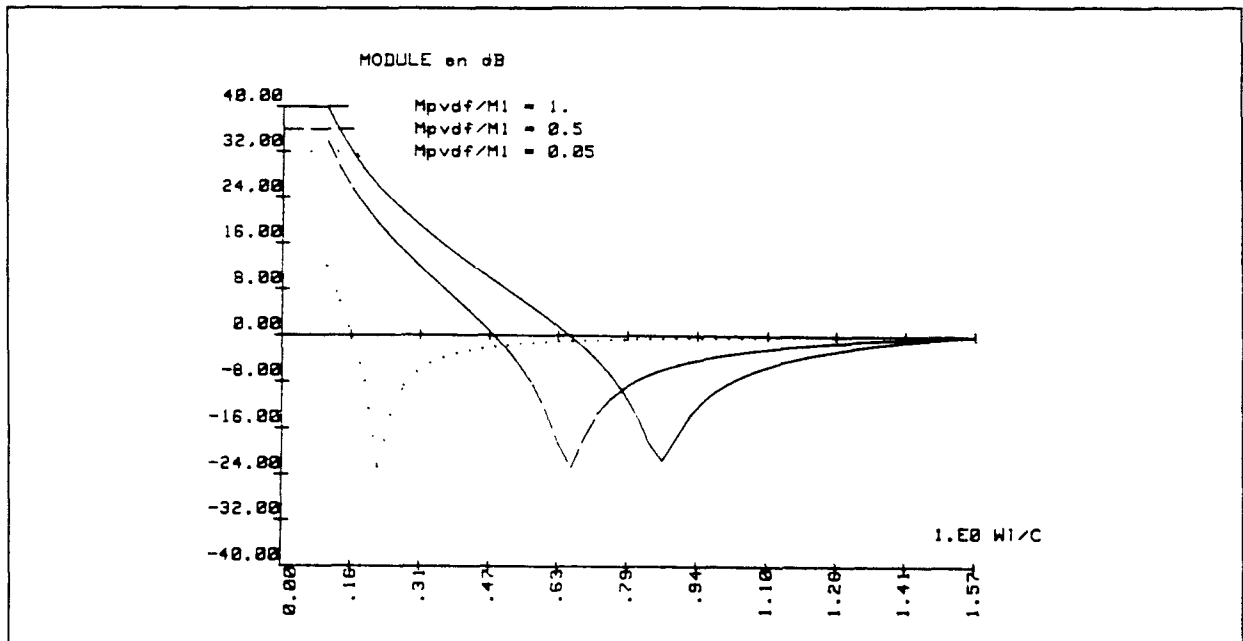


Figure IV.8 : Impédance mécanique réduite d'un barreau à extrémité encastree

IV.1.4.2. Influence de la masse M_2

L'hypothèse d'un encastrement parfait n'est pas idéalement vérifiée pour toute la gamme des basses fréquences. Soit $Z_e(\omega)$ l'expression de l'impédance mécanique dans laquelle on tient compte de la masse M_2 . Cette expression a été calculée en IV.1.3. Si l'on considère que la masse M_1 est nulle, alors l'erreur relative s'écrit :

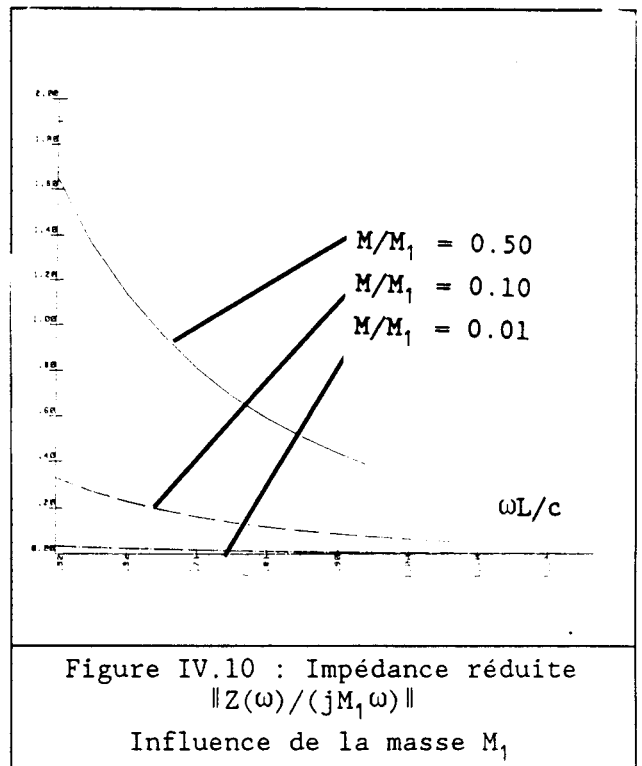
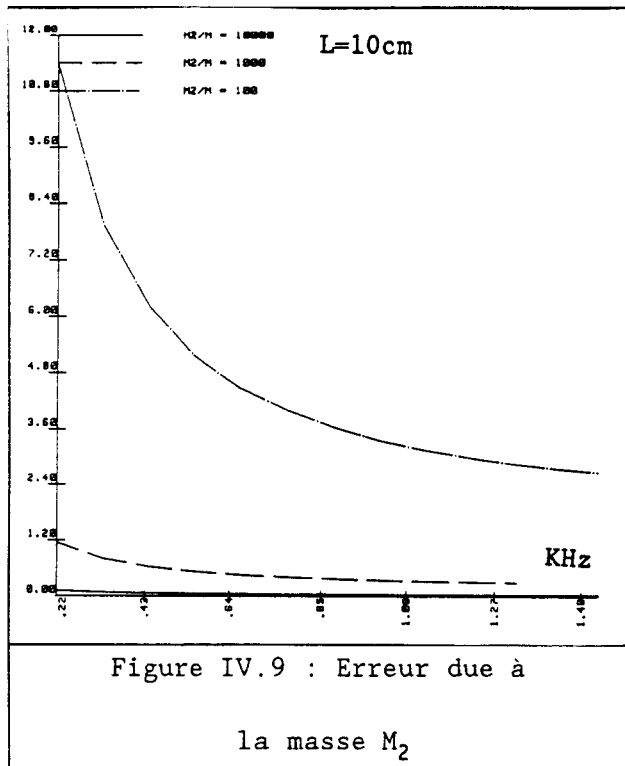
$$\left| \frac{Z(\omega) - Z_e(\omega)}{Z_e(\omega)} \right| = \left| \frac{1 + \cotg^2(k.L)}{1 + \frac{M_2}{M} \cdot k.L \cdot \cotg(k.L)} \right| \quad (\text{IV.12})$$

Cette erreur est donc fonction du rapport des masses M_2 et M et de la fréquence de travail. La courbe IV.9 la représente en fonction de la fréquence pour un barreau de PVDF de 10cm, les trois courbes étant paramétrées en fonction du rapport M_2/M . Le rapport devient critique en très basse fréquence. Nous avons utilisé une masse de 15Kg comme masse M_2 ce qui représente un rapport minimum M_2/M de 5000.

IV.1.4.3. Influence de la masse M_1

L'expression de $Z(\omega)$ montre que l'effet de la masse M_1 peut devenir

prépondérant par rapport à celui de l'impédance intrinsèque de l'éprouvette (figure IV.10). Il est donc impossible d'obtenir une information exploitable à partir d'une certaine gamme de fréquences.



IV.1.4.4. Réponse piézoélectrique

La mesure des charges accumulées aux bornes du matériau peut permettre de quantifier son coefficient piézoélectrique en basse fréquence. Les équations électromécaniques liant contraintes et déformations à déplacement et champ électrique sont les suivantes :

$$\begin{aligned} S_1 &= s_{11}^E \cdot T_1 + d_{31} \cdot E_3 \\ D_3 &= d_{31} \cdot T_1 + \epsilon_{33}^I \cdot E_3 \end{aligned} \quad (\text{IV.13})$$

Etant donné que les charges électriques aux bornes du matériau sont amplifiées par un préamplificateur de charges dont l'entrée peut être assimilée à un court-circuit, le champ électrique E_3 est négligé et les expressions se simplifient :

$$S_1(x) = s_{11}^E \cdot T_1(x) = \frac{\delta u(x)}{\delta x} \quad (\text{IV.14})$$

$$D_3(x) = d_{31} \cdot T_1(x) \quad (\text{IV.15})$$

avec x l'abscisse selon la direction de traction. En établissant l'équation fondamentale de la dynamique appropriée, on calcule alors l'allongement $u(x)$:

$$u(x) = A \cdot \cos(k \cdot x) + B \cdot \sin(k \cdot x) \quad (\text{IV.16})$$

A et B étant des constantes déterminées par les conditions limites. Celles-ci, représentées en figure IV.11, peuvent être écrites sous la forme :

$$F_2^- = -S \cdot T_1(x=0) = -k \cdot S \cdot B / s_{11}^E \quad (\text{IV.17})$$

et

$$V_2^- = j\omega \cdot u(x=0) = j\omega \cdot A \quad (\text{IV.18})$$

En conséquence :

$$u(x) = \frac{V_2^-}{j\omega} \cdot \cos(k \cdot x) - \frac{s_{11}^E}{k \cdot S} \cdot F_2^- \cdot \sin(k \cdot x) \quad (\text{IV.19})$$

et :

$$D_3(x) = -\frac{F_2^-}{S} \cdot \cos(k \cdot x) - \frac{k \cdot V_2^-}{j \cdot \omega \cdot s_{11}^E} \cdot d_{31} \cdot \sin(k \cdot x) \quad (\text{IV.20})$$

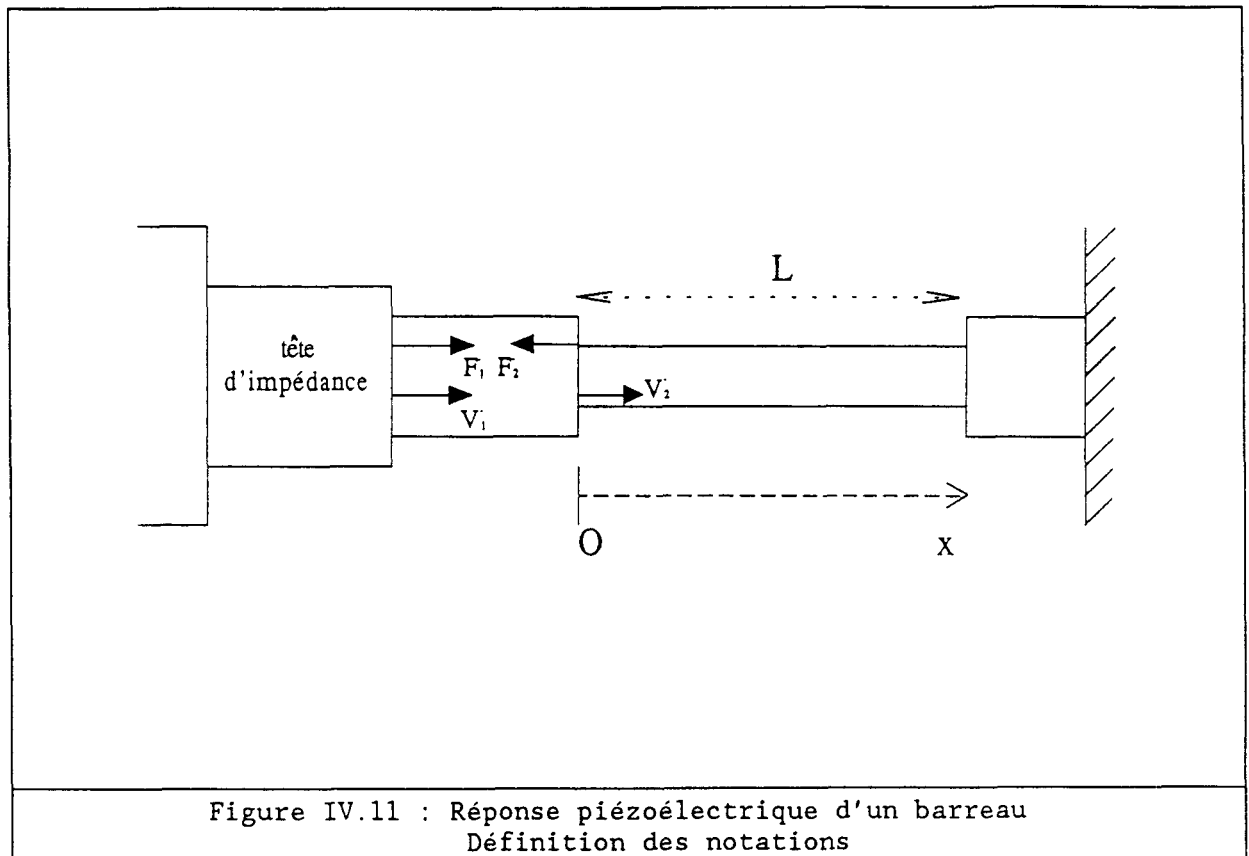
Enfin, si l'on définit Σ comme la surface de l'électrode, on calcule la charge recueillie par celle-ci :

$$Q = \iint_{\Sigma} D_3(x) \cdot d\Sigma = 1 \cdot \int_0^L D_3(x) \cdot dx \quad (\text{IV.21})$$

$$Q = 1 \cdot d_{31} \cdot V_2^- \cdot \left(\frac{F_2^-}{V_2^-} \cdot \frac{\sin(k \cdot L)}{k \cdot S} + \frac{\cos(k \cdot L) - 1}{j \cdot \omega \cdot s_{11}^E} \right) \quad (\text{IV.22})$$

Pour un barreau dont l'extrémité est encastree, cette expression se simplifie en :

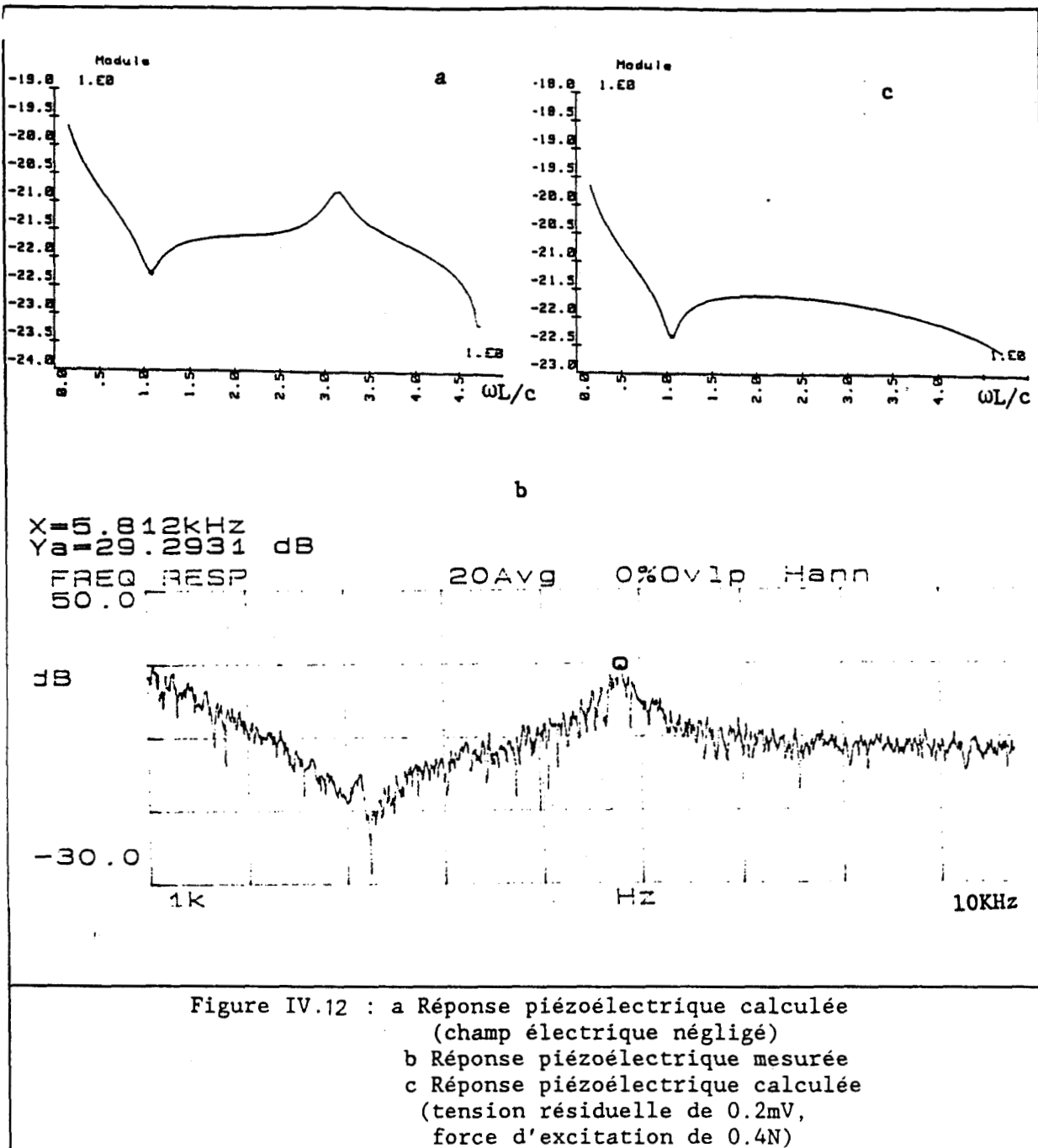
$$\frac{Q}{V_2^-} = \frac{Q}{V_1^-} = \frac{1 \cdot d_{31}}{j \cdot \omega \cdot s_{11}^E} \cdot (2 \cdot \cos(k \cdot L) - 1) \quad (\text{IV.23})$$



En pratique, la réponse piézoélectrique calculée ci-dessus diffère de la réponse mesurée sur une éprouvette (figures IV.12 a et b). Cette différence s'explique par l'influence d'un champ électrique E_3 résiduel (figure IV.12 c). En effet, l'expression exacte de Q/V est :

$$\frac{Q}{V_2^-} = \frac{l \cdot d_{31}}{s_{11}^E} \cdot \left(\frac{\cos(k \cdot L) - 1}{j \cdot \omega} - \frac{s_{11}^E}{S \cdot k} \cdot \sin(k \cdot L) \cdot \frac{F_2^-}{V_2^-} \right) + \frac{E_3 \cdot l}{V_2^-} \cdot C_0 \cdot \left(1 - k_{31}^2 + k_{31}^2 \cdot \frac{\text{tg}(k \cdot L)}{k \cdot L} \right) \quad (\text{IV.24})$$

Alors, si on travaille à force d'excitation constante, pour $k \cdot L = \pi$, la vitesse V_2^- s'annule et le terme en E_3/V_2^- n'est plus négligeable. Ceci explique le pic qui apparaît pour cette valeur de $k \cdot L$, bien visible sur la figure. Par contre, pour les pulsations ω faibles, le calcul approché rend bien compte de l'expérience et l'on peut déterminer d_{31} .



IV.1.4.5. Mesure et extraction des paramètres

Un calculateur HP217 pilote un impédancemètre HP4192A utilisé en analyseur de réseau (figure IV.13). la sortie oscillateur fournit l'excitation au pot vibrant, via un amplificateur de puissance B&K 2706. Les signaux de force et d'accélération fournis par la tête d'impédance B&K 8001 sont amplifiés par des préamplificateurs de charge B&K 2626 avant d'être envoyés sur l'impédancemètre. La mesure est effectuée dans une

enceinte thermostatée. La masse importante M_2 est la source d'une grande inertie thermique qui rend la sonde de température de l'enceinte inefficace, puisque des gradients de température existent dans l'enceinte. Une sonde au platine collée sur la masse M_2 a donc été préférée pour fournir l'information de température. L'éprouvette est légèrement tendue, afin de limiter l'influence des flexions parasites. L'information de charge électrique est prélevée au niveau de la masse M_2 . Les courbes de réponse caractéristiques sont représentées en figure IV.14.

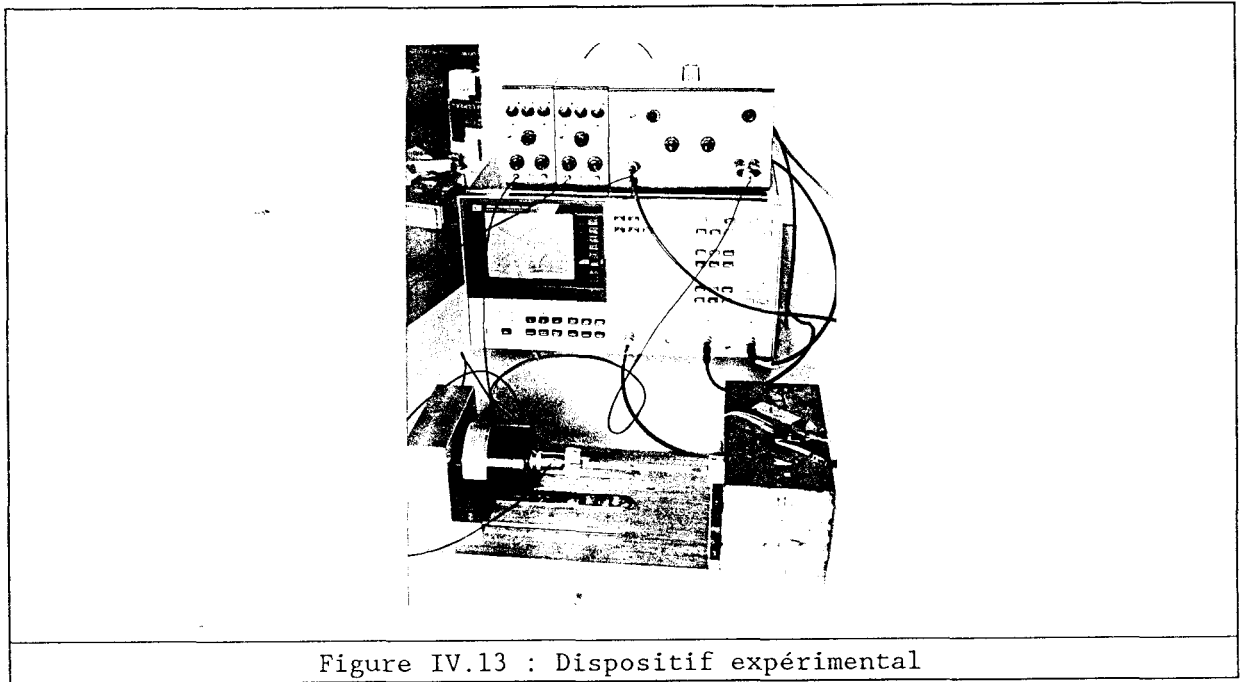


Figure IV.13 : Dispositif expérimental

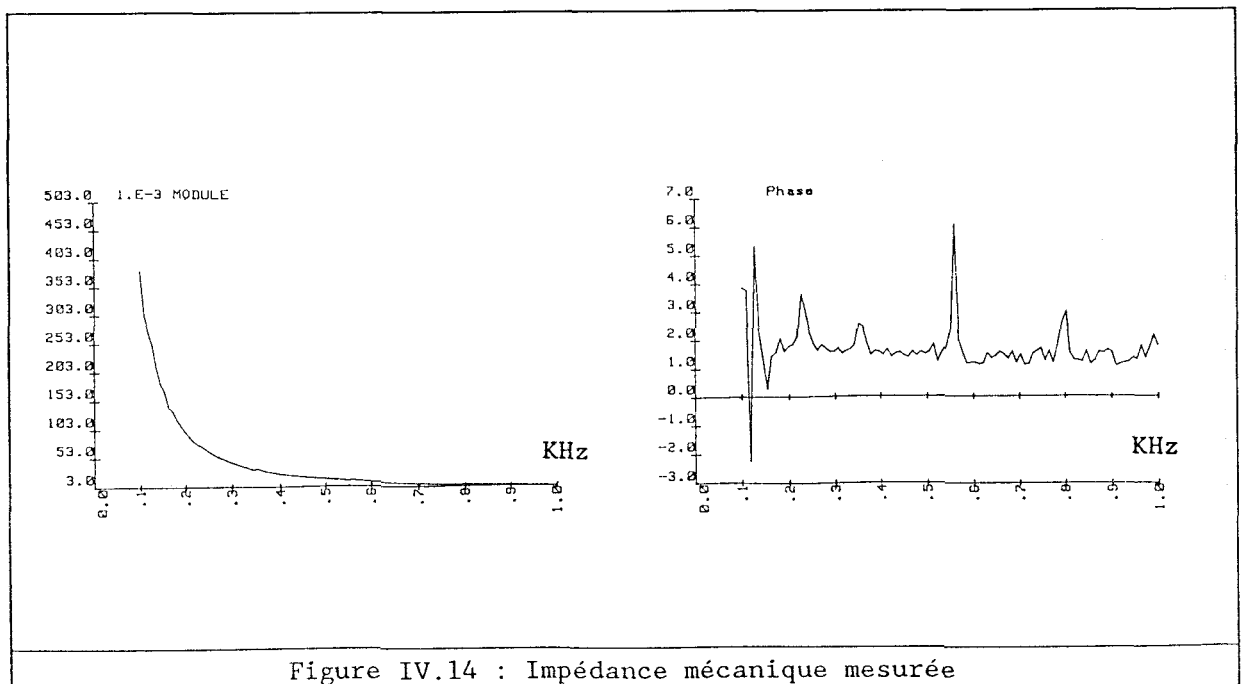


Figure IV.14 : Impédance mécanique mesurée

Le calcul de s_{11}^E est effectué de manière exacte. La phase, bien que perturbée, donne directement une information sur l'angle des pertes mécaniques associées à la compliance. Le calcul de d_{31} nécessite la connaissance précise de la compliance s_{11}^E à la fréquence considérée. En effet, l'erreur relative commise sur d_{31} s'écrit :

$$\frac{\Delta d_{31}}{d_{31}} = \frac{\Delta s_{11}^E}{s_{11}^E} \cdot \left(1 + \frac{k \cdot \sin(k \cdot L)}{2 \cdot \cos(k \cdot L) - 1} \right) \quad (\text{IV.25})$$

Elle prend des valeurs croissantes avec la fréquence (figure IV.15).

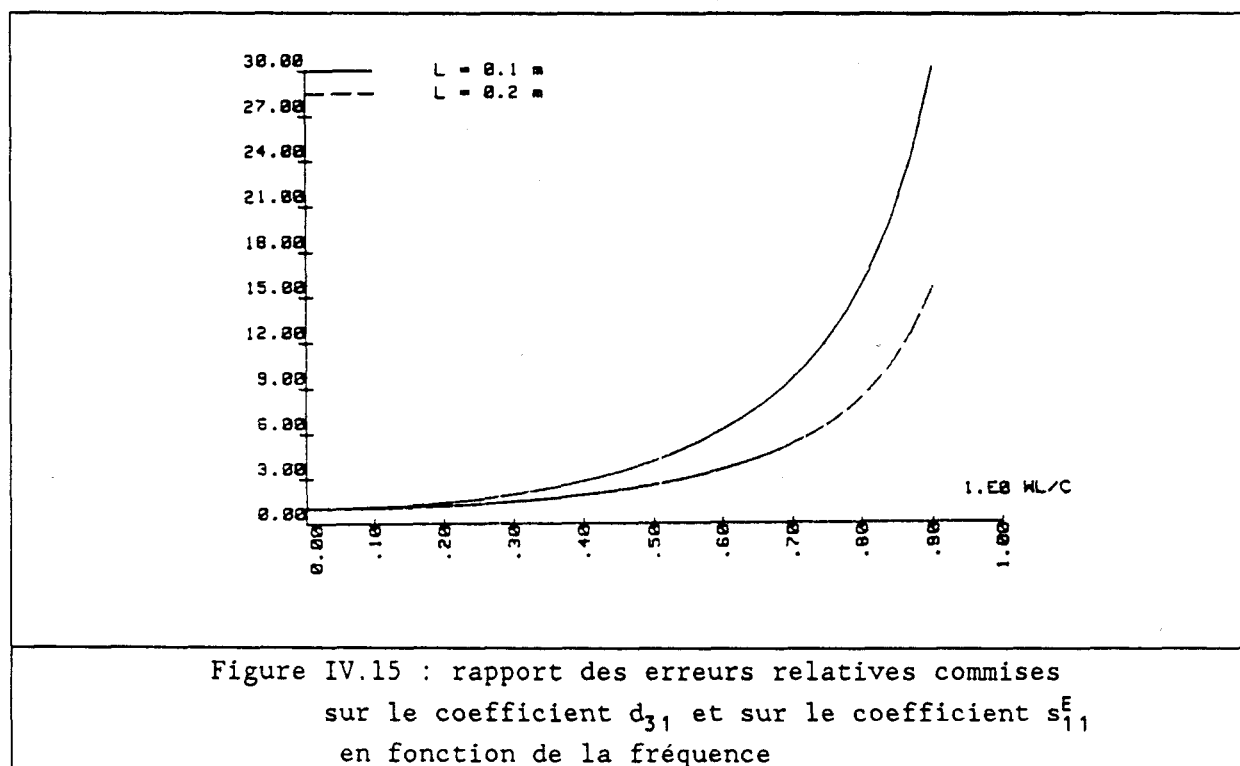


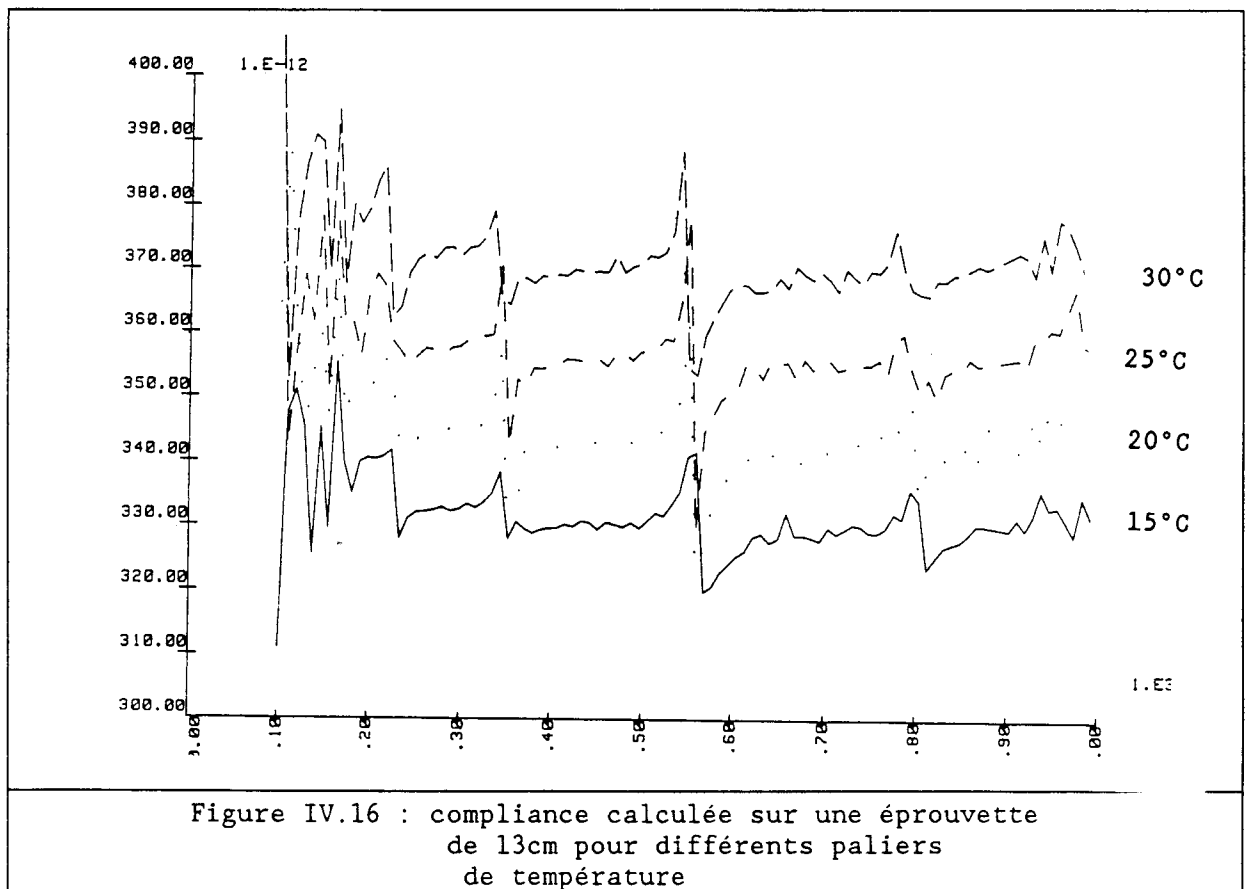
Figure IV.15 : rapport des erreurs relatives commises sur le coefficient d_{31} et sur le coefficient s_{11}^E en fonction de la fréquence

En ce qui concerne la compliance mesurée, même si les résultats sont très perturbés (figure IV.16), la moyenne des valeurs numériques obtenues sur plusieurs éprouvettes différentes est en bon accord avec les valeurs obtenues par méthode de MASON (figure IV.17). En effet, les courbes d'évolution de s_{11}^E , obtenues par une mesure de MASON, se situent dans le prolongement des courbes obtenues par une mesure mécanique, pour une même température.

Les pertes mécaniques associées au coefficient s_{11}^E ne varient pas de manière significative avec la fréquence sur la gamme de fréquence 100Hz-1KHz. Entre 0°C et 30°C, l'angle des pertes mécaniques varie

seulement de 4% à 2.5%.

En ce qui concerne le coefficient piézoélectrique d_{31} , les résultats obtenus ne sont pas reproductibles, bien que les ordres de grandeur soient corrects. En particulier, les flexions parasites perturbent fortement le spectre de $Q/V(\omega)$. La tension statique imposée influence également les résultats. Les valeurs de d_{31} mesurées sont néanmoins compatibles avec les résultats obtenus par mesure de résonance.



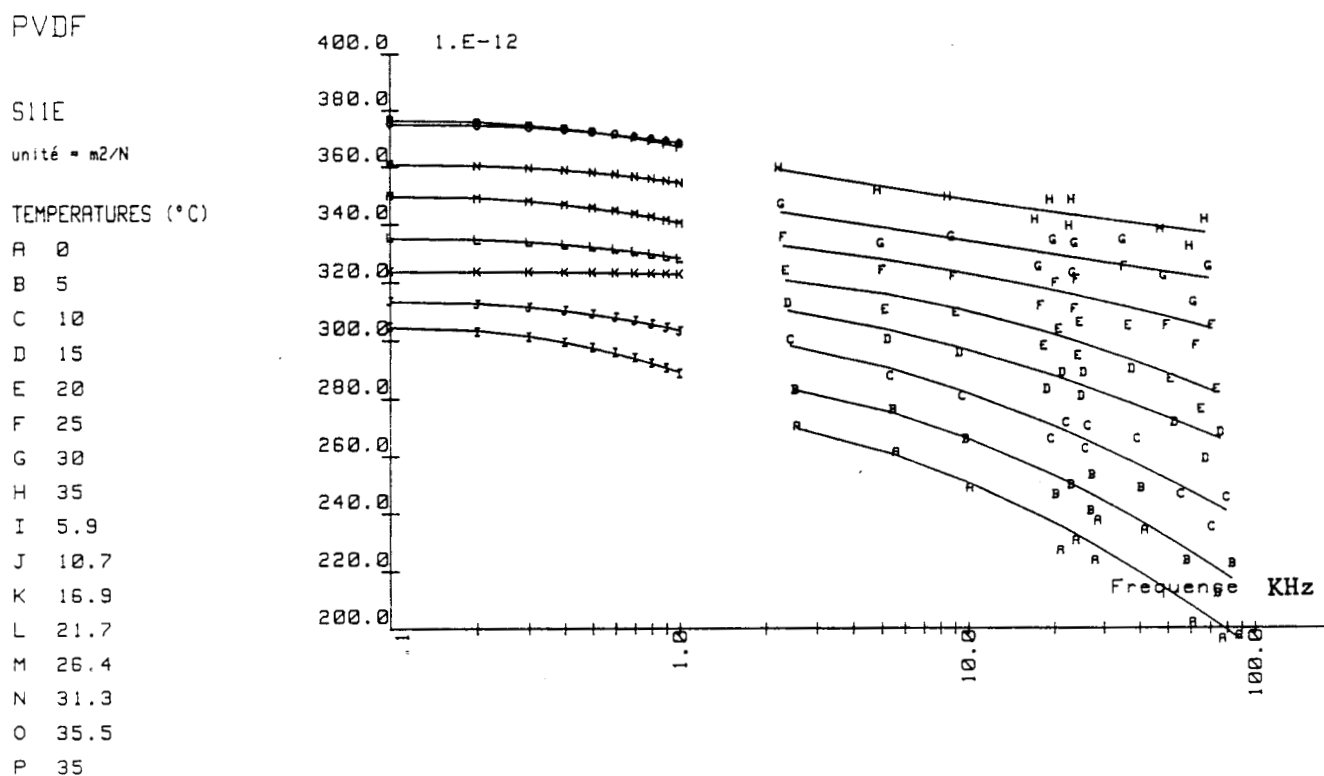


Figure IV.17 : Evolution de la compliance s_{11}^E ,
 en fonction de la fréquence et de la température.
 Les lettres A à H indiquent les points calculés par la méthode de MASON,
 les lettres I à P indiquent les résultats des mesures mécaniques,
 les courbes correspondent aux valeurs extrapolées.

IV.2 MESURES EN FLEXION

Les mesures à l'aide de barreaux excités en flexion donnent des indications sur les propriétés de ceux-ci pour des fréquences faibles. Ce sont des mesures classiques, communément utilisées comme principe de base des viscoélasticimètres. La théorie des poutres en flexion [79] s'applique normalement à un élément homogène, élastique, dont l'une des dimensions est grande devant les deux autres. Le rapport de dimensions minimum que l'on convient d'adopter est de cinq, pour les flexions simples. Il est clair que ce rapport minimum doit être augmenté lorsque l'on s'intéresse à des modes de flexion harmoniques. La position des fréquences de résonance harmoniques f_k dépend des conditions limites du système. Ces fréquences s'écrivent :

$$f_k = \frac{\eta_k}{2\pi L^2} \cdot \sqrt{\frac{E \cdot I}{\mu}} \quad (\text{IV.26})$$

avec :

- E le module d'Young du matériau,
- L sa longueur,
- μ sa masse linéique,
- I le moment d'inertie de la poutre par rapport à l'axe médian,
- η_k une constante dépendant des conditions limites du système et de l'ordre de l'harmonique. Le tableau IV.2 rappelle les valeurs prises par η_k .










conditions limites	Mode 1	Mode 2	Mode 3	Mode K
libre-libre	 22.4	 61.7	 121	$(\pi(k+1/2))^2$
encastré-libre	 3.52	 22.4	 61.7	$(\pi(k-1/2))^2$
encastré-encastré	 22.4	 61.7	 121	$(\pi(k+1/2))^2$

Tableau IV.2 : valeurs prises par la constante η_k et déformées caractéristiques correspondantes d'une poutre

La connaissance des fréquences de résonance de ce système permet de calculer la compliance s_{11}^E suivant la relation :

$$s_{11}^E = \frac{\eta_k^2 e^2}{48 \pi^2 L^4 f_k^2 \rho} \quad (\text{IV.27})$$

où e est l'épaisseur de la poutre mince et ρ la masse volumique du matériau.

IV.2.1. Mesure par interférométrie homodyne pour un barreau encastré aux extrémités

Le principe de la manipulation consiste à exciter les modes propres de vibration de la poutre encastrée à ses extrémités par un haut-parleur. Par interférométrie [80], on détecte sans contact les maxima de vibration de l'éprouvette, en effectuant un balayage en fréquence. Si la détection de tels modes s'effectue sans problème, les valeurs numériques obtenues sont absolument en désaccord avec les résultats des autres types de mesures effectuées dans les mêmes conditions de fréquence et de température. Des mesures complémentaires ont permis de montrer l'influence non négligeable de l'encastrement et du support et cette technique de mesure a dû être abandonnée.

IV.2.2. Réponse piézoélectrique résiduelle d'un barreau dont une extrémité est encastrée.

Comme précédemment, les modes propres de la structure sont excités à l'aide d'un haut-parleur (figure IV.18). Plusieurs moyens de détection des maxima d'amplitude correspondant aux modes propres de l'éprouvette ont été testés : déviation d'un rayon laser, capteurs capacitifs et inductifs. La solution de détection retenue est la suivante. Elle consiste à exploiter la réponse piézoélectrique résiduelle du matériau. Théoriquement, dans le cas d'un matériau piézoélectrique de polarisation homogène, les modes de flexion ne sont pas couplés électriquement, puisque les charges créées de part et d'autre de la fibre moyenne se compensent. Dans le cas des échantillons de PVDF utilisés, cette compensation n'est pas totale, et l'on obtient des spectres de fréquence semblables à ceux de la figure IV.19. Les maxima correspondent aux modes propres du barreau. Bien que les mesures sur différentes éprouvettes soient homogènes, Les résultats obtenus (figure IV.20) se raccordent mal avec les résultats obtenus par mesure en élongation. Les compliances obtenues par mesure en flexion sont, en moyenne, 35% plus élevées que celles obtenues par une mesure en élongation.

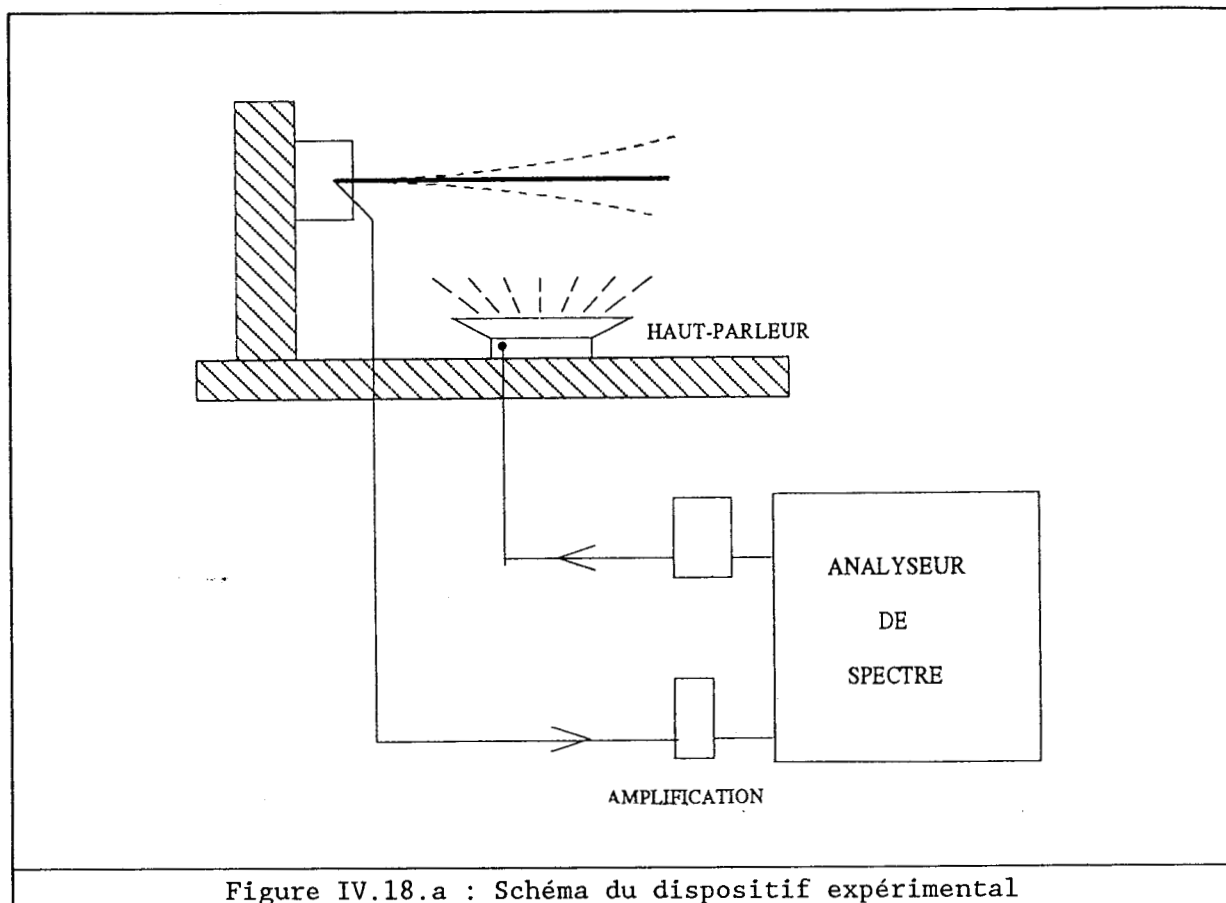


Figure IV.18.a : Schéma du dispositif expérimental

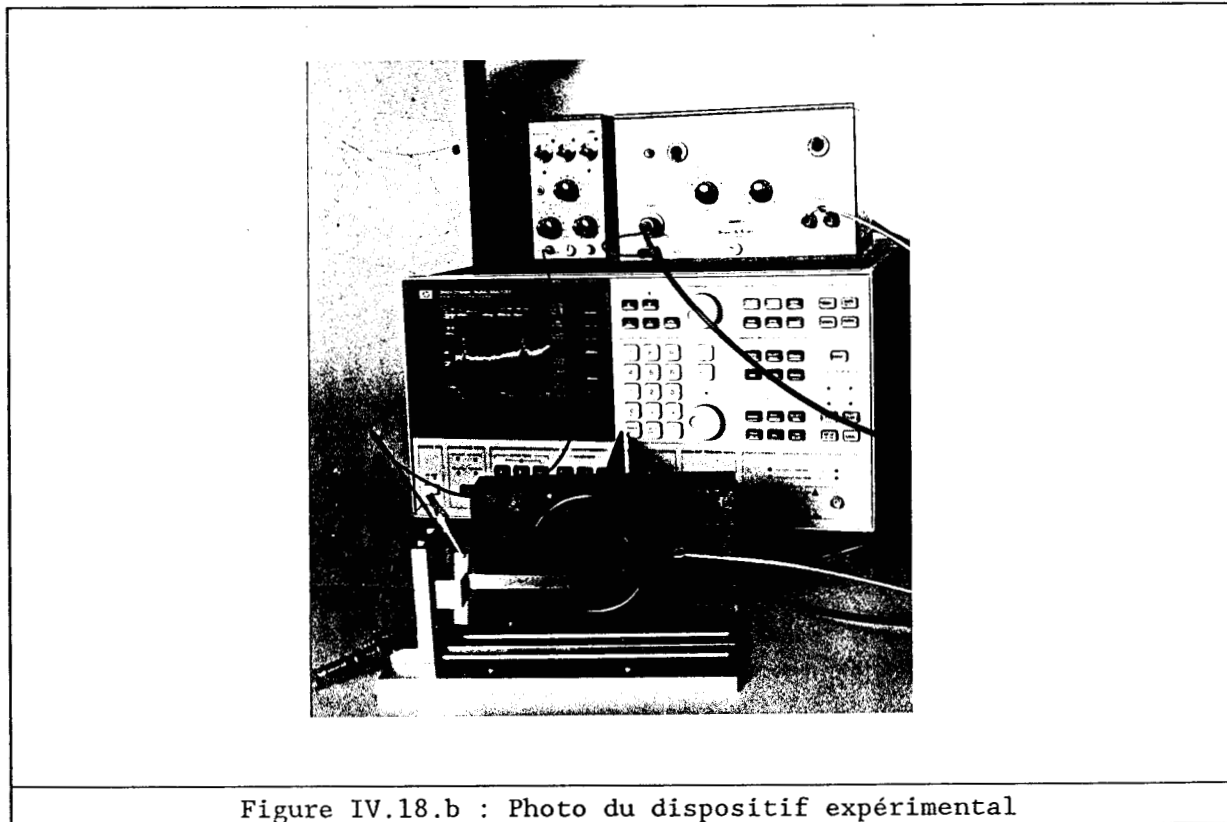


Figure IV.18.b : Photo du dispositif expérimental

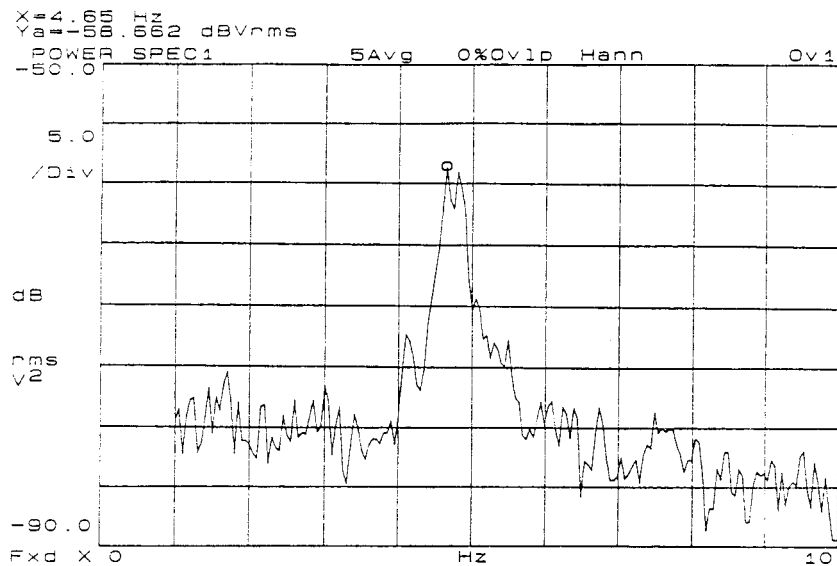


Figure IV.19 : Réponse piézoélectrique d'un barreau excité en flexion.

PVDF

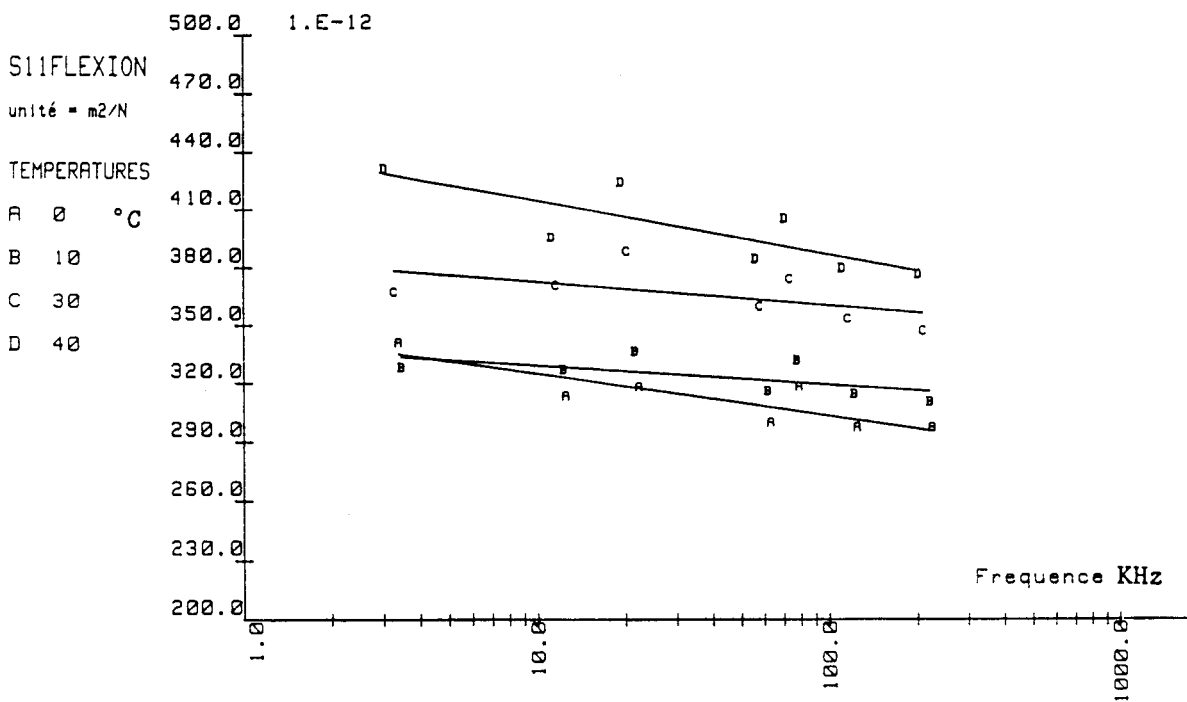


Figure IV.20 : compliance s_{11}^E mesurée par détection des modes de flexion d'un barreau dont une extrémité est encastree

IV.2.3. Réponse piézoélectrique résiduelle d'un barreau libre

Les conditions limites d'un barreau entièrement libre sont naturellement difficiles à mettre en oeuvre. Nous avons choisi de suspendre le barreau par deux fils de nylon, placés aux noeuds de vibration de la structure. La position des noeuds de vibration étant fonction du mode harmonique considéré, il n'est possible de détecter qu'un mode de vibration à la fois. Un haut-parleur excite le système en bruit blanc, la détection du mode propre est la même que pour la manipulation précédente, les fils électriques étant connectés à l'éprouvette au niveau des noeuds de vibration. Le système de maintien de l'échantillon est critique, les modes propres de la structure étant amortis très facilement. Nous avons obtenu des résultats à température ambiante compatibles avec les résultats des mesures en élongation. Les variations relatives sur la compliance s_{11}^E sont inférieures à 10%. Cependant, nous n'avons pas effectué ces mesures en flexion à température constante, parce que le système est très sensible aux perturbations extérieures et donc, en particulier, à celles d'une enceinte thermostatée (mouvement d'air...).

CHAPITRE V

CONCLUSION

Ce chapitre est la synthèse des travaux conduits au cours de la thèse et des résultats acquis. Il est divisé en trois parties. La première résume les méthodes de caractérisation mises en place. La seconde présente une comparaison des résultats obtenus avec les résultats publiés dans la littérature. Enfin, la troisième regroupe les résultats concernant la transition vitreuse du PVDF, résultats qui permettent notamment une validation par comparaison à un modèle physique.

Comme il est souvent mentionné dans la littérature, la confrontation des résultats de mesures différentes qui caractérisent un matériau viscoélastique est difficile et ces résultats se recourent rarement [15]. Les conclusions présentées ici confirment cette affirmation, qui démontre la nécessité de telles confrontations, et insistent sur le caractère indispensable de l'approche multiple qui a été retenue.

V.1. RESUME DES METHODES ETUDIEES

Une dizaine de méthodes de mesure, qui permettent d'obtenir des coefficients différents, dans des gammes de fréquence et de température variées, ont été testées. Le tableau V.1 reprend de manière synthétique ces méthodes en précisant les coefficients qu'elles permettent de quantifier.

numéro	type de mesure	descriptif de la mesure	coefficients mesurés (1)
1	Mécanique	Modes de flexion d'un barreau à une ou deux extrémités libres	s_{11}^E $Tg\delta_{m11}$ s_{22}^E $Tg\delta_{m22}$
2	Mécanique	Modes longitudinaux d'un barreau ayant une extrémité libre	s_{11}^E $Tg\delta_{m11}$ s_{22}^E $Tg\delta_{m22}$
3	Mécanique	Réponse harmonique d'un barreau ayant une extrémité encastree	s_{11}^E $Tg\delta_{m11}$ d_{31} s_{22}^E $Tg\delta_{m22}$ d_{32}
4	Electrique	Mesure directe de capacité	ϵ_{33} $Tg\delta_{e33}$
5	Electrique	Mesure différentielle de capacité	ϵ_{11} $Tg\delta_{e11}$ ϵ_{22} $Tg\delta_{e22}$ s_{44} $tg\delta_{m44}$ s_{55} $tg\delta_{m55}$ d_{15} d_{24}
6	Electrique	Mesure des résonances électriques des modes de longueur	s_{11}^E $Tg\delta_{m11}$ d_{31} s_{22}^E $Tg\delta_{m22}$ d_{32}
7	Electrique	Mesure des résonances électriques des modes de largeur	s_{12}^E $Tg\delta_{m12}$
8	Electrique	Mesure des résonances électriques des modes mixtes	s_{66}^E
9	Electrique	Mesure des résonances électriques des modes de contour	s_{12}^E s_{66}^E
10	Electrique	Mesure des résonances électriques des modes d'épaisseur	C_{33}^D $tg\delta_{m33}$ h_{33}
11	Electrique	Mesure des résonances électriques à l'aide de peignes interdigités	s_{11}^E $Tg\delta_{m11}$ d_{31} s_{22}^E $Tg\delta_{m22}$ d_{32}

1) les coefficients qui sont soulignés ont été effectivement mesurés.

Tableau V.1. Synoptique des mesures

Les mesures de flexion (1) mettent en évidence la non homogénéité de la polarisation. La mesure des coefficients de flexibilité par cette méthode est très approximative, parce que le pic détecté est bruité et notablement amorti. La dispersion sur les mesures est de plus de 10%.

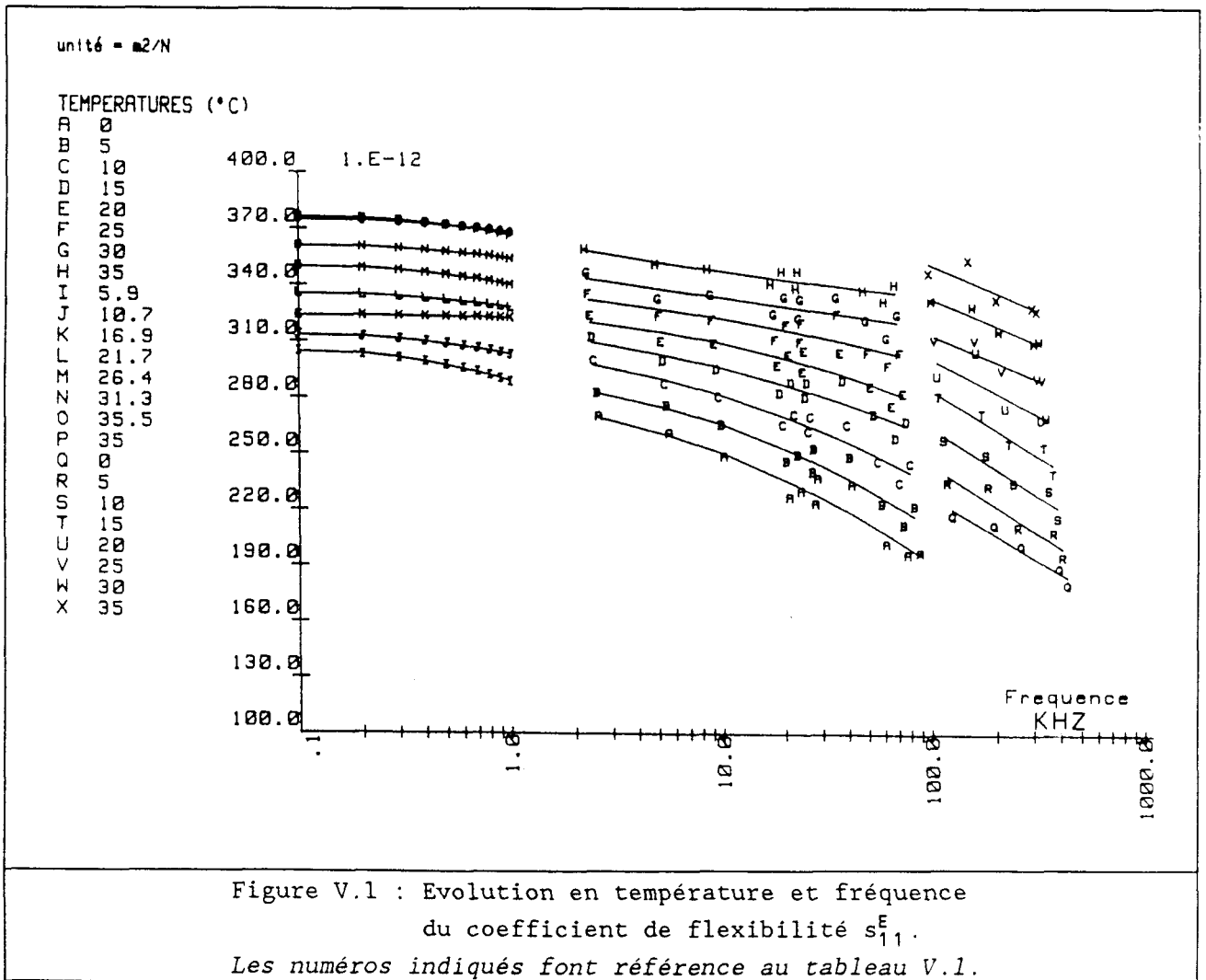
Les mesures en élongation des barreaux (2,3) permettent d'obtenir avec une bonne précision les coefficients de flexibilité. La dispersion sur les résultats est de 12%, l'incertitude relative de mesure de ces coefficients étant estimée à 5%. La méthode ne donne, par contre, qu'un ordre de grandeur du coefficient piézoélectrique, dont la mesure est difficilement reproductible.

Les mesures des résonances électriques présentent des caractéristiques communes. La précision des résultats dépend essentiellement de deux facteurs. Ainsi, les accumulations d'erreur dues à des calculs enchainant des résultats successifs sont souvent importantes et conduisent facilement à des résultats aberrants. Ceci est mis en évidence lorsque les caractérisations en température et fréquence sont menées simultanément. La variation des propriétés avec la fréquence apporte alors une erreur supplémentaire dans le calcul. Par contre, la mesure directe des coefficients de flexibilité s_{11}^E et s_{22}^E est entachée d'une incertitude inférieure à 5% et les coefficients piézoélectriques d_{31} ont été mesurés par méthode de MASON avec une précision supérieure à 10%. Si les coefficients de qualité mécanique sont faibles, la séparation des branches motionnelles et diélectriques est délicate et implique une grande imprécision sur la valeur de l'angle des pertes mécaniques et des coefficients piézoélectriques. Par ailleurs, l'amortissement dû au dispositif de fixation ou du support des échantillons doit toujours être considéré avec attention. Enfin, nous n'avons pas réussi à déterminer les angles de pertes mécaniques associés aux coefficients s_{12}^E et s_{66}^E et nous sommes refusé à utiliser la complétion tensorielle pour obtenir certains coefficients, chaque fois qu'il aurait été nécessaire d'extrapoler les valeurs d'autres coefficients dans des gammes de fréquence où la mesure n'avait pas été effectuée.

La confrontation entre résultats expérimentaux et résultats de simulation par éléments finis nous semble intéressante. Elle permet en particulier d'étudier des systèmes dont les conditions aux limites sont complexes et de tirer d'études paramétrées des modèles simplifiés. Cependant, il ne nous semble pas évident qu'une procédure globale

d'ajustage sur des résonances de modes complexes soit facile à mener par le fait que, la plupart du temps, les problèmes sont à solutions multiples.

La courbe V.1 présente le raccordement des courbes de variation avec la fréquence du coefficient de flexibilité s_{11}^E , obtenus par les méthodes 3, 6 et 11 pour différentes températures. La raison pour laquelle les valeurs de certaines températures ne sont pas entières est d'ordre expérimental, un décalage systématique entre la consigne de température et la valeur mesurée se produisant dans le type d'expérience 3. Le décalage constaté entre les résultats des mesures de type MASON et des mesures exploitant les peignes, même si le mode de représentation le rend important, est inférieur à 10%. Par l'emploi de ces trois techniques de mesure, le coefficient de flexibilité est mesuré sur une gamme de fréquence 100Hz-400KHz avec une bonne précision.



V.2. COMPARAISON DES RESULTATS OBTENUS AVEC CEUX DE LA LITTERATURE

Le tableau V.2 présente une comparaison des résultats obtenus avec un certain nombre de résultats publiés. Cette comparaison n'est toutefois pas exhaustive, compte tenu de l'abondance des publications concernées. Lorsque les indications de température et de fréquence de mesure étaient données, nous les avons mentionnées entre parenthèses dans le tableau. L'accord est généralement bon, bien que les échantillons mesurés proviennent de fabricants variés.

V.3. RESULTATS SUR LA TRANSITION VITREUSE DANS LE PVDF

Le PVDF, en tant que polymère semi-cristallin, possède une transition vitreuse qui, à priori, doit être peu importante. C'est ce que certains auteurs ont observé : G.M. SESSLER rapporte les données expérimentales de C.M. VAN DER BURGST [37,83], à savoir la diminution importante de la permittivité diélectrique ϵ_{33} autour de 1MHz à température ambiante. P. RAVINET [50] repère l'influence de la transition vitreuse en haute fréquence sur les coefficients diélectriques ϵ_{33} et $Tg\delta_{e33}$ ainsi que sur les constantes de rigidité C'_{33} et C''_{33} . Les résultats que nous avons obtenus nous permettent également de tirer des informations sur la correspondance fréquence-température pour quelques constantes.

V.3.1 La permittivité diélectrique

Les courbes II.1 et II.2 sont typiques d'une relaxation. Afin d'obtenir les valeurs de la fréquence caractéristique de la transition vitreuse pour une température donnée, nous avons effectué un ajustement de ces courbes aux équations suivantes, extrapolées des travaux de J. BURNS [84] :

$$\epsilon'_{33}(f) = \epsilon_{réf} - \frac{\Delta\epsilon}{2} \cdot \text{th}(\alpha \cdot \log(f/f_m)) \quad (V.1)$$

$$\epsilon''_{33}(f) = \frac{\Delta\epsilon''}{\text{ch}(\alpha \cdot \ln(f/f_m))} \quad (V.2)$$

où :

- f_m est la fréquence où se produit la transition vitreuse,
- α est un paramètre traduisant l'élargissement de cette relaxation

Coefficients	Nos résultats	Résultats publiés
ϵ_{33}	11.9 (1KHz-20°C)	12 [79] A, 11.9 [81](1KHz)D
$Tg\delta_e 33$	1.5% (1KHz-20°C)	1.7% [81](1KHz)D, 2.2% [81](1KHz)C
ϵ_{11}	9.0 (100KHz-25°C)	8.0 [79]A
$Tg\delta_e 11$	1.0% (100KHz-25°C)	
ϵ_{22}	10.0 (100KHz-25°C)	13.2 [79]A
$Tg\delta_e 22$	1.5% (100KHz-25°C)	
s_{11}^E	0.335 (2KHz-25°C)	0.4 [61]A, 0.309 [41]B
s_{22}^E	0.345 (10KHz-25°C)	0.44 [41]B
s_{12}^E	-0.17 (10KHz-25°C)	-0.157 [61]A, -0.06 [41]B
s_{13}^E		-0.21 [41]B
s_{23}^E		-0.25 [41]B
C_{33}^D	8.6 (2MHz-25°C)	9.0 (25°C)[47]
s_{44}^E	1.07 (400KHz-25°C)	1.1 [79]A
s_{55}^E	$\cong s_{44}^E$	1.1 [79]A, 1.47 [41]B
s_{66}^E	1.4 (10KHz-25°C)	1.36 [41]B
d_{31}	23 (2KHz-25°C)	21.4 [61]A, 24 [41]B 18 [81]D, 24 [82]
d_{32}	2.8 (7KHz-25°C)	2.3 [61]A, 4 [82]
d_{33}		-31.5 [61]A, -30 [41]B
d_{24}	13 (400KHz-25°C)	$\cong 0$ [79]A, -38.3 [41]B
d_{15}	$\cong 0$	5.6 [79]A, -15.7 [41]B
h_{33}	1.1 (2MHz-20°C)	2.2 [47]A

Les coefficients de flexibilité sont exprimés en $n.m^2/N$ et les constantes de rigidité en GN/m^2 . Les permittivités diélectriques sont des valeurs relatives. Les coefficients piézoélectriques d sont exprimés en pm/V , les coefficients h en GV/m . Les lettres de la colonne 3 indiquent la provenance des échantillons : - A : KUREYA INDUSTRY,
- B : EMI,
- C : RAYCHEM,
- D : THOMSON.

Tableau V.2 : Comparaison de nos résultats avec des résultats publiés

- par rapport au modèle à une constante de relaxation [85],
- $\epsilon_{r\acute{e}f}$ est la valeur de la permittivité à la fréquence f_m ,
 - $\Delta\epsilon$ est l'écart entre la permittivité diélectrique en basse fréquence et celle en haute fréquence,
 - $\Delta\epsilon''$ est l'amplitude du maximum de $\epsilon''_{33}(f)$.

Le tableau V.3 présente les résultats obtenus pour ϵ'_{33} . Nous n'avons pas effectué le calcul des décalages en fréquence nécessaires pour créer une courbe maîtresse caractéristique du matériau, des essais ayant montré que le recouvrement des courbes n'est réel que dans une gamme limitée de fréquence.

Température	$\epsilon_{r\acute{e}f}$	$\Delta\epsilon$	α	f_m
0°C	7.5	9.3	0.20	110KHz
20°C	7.5	9.3	0.23	1.04MHz
40°C	7.7	9.3	0.31	5.27MHz
50°C	8.0	10.0	0.30	8.54MHz
60°C	8.4	11.0	0.30	16.52MHz

Tableau V.3 : Résultats de l'ajustage des courbes de variation en fréquence et température de ϵ'_{33}

Les courbes d'évolution de ϵ_{11} et ϵ_{22} en fréquence et température présentent le même type de comportement. Une estimation des fréquences correspondant aux maxima de l'angle de pertes associé à la permittivité sont rassemblées dans le tableau V.4. Ces valeurs sont approximatives, les courbes correspondantes étant bruitées. Cependant, les résultats sont en bon accord avec ceux qui sont obtenus sur ϵ_{33} , les fréquences auxquelles se produit la transition vitreuse étant pratiquement les mêmes pour les trois termes du tenseur des permittivités.

Température	Fréquences en KHz pour ϵ_{11}	Fréquences en KHz pour ϵ_{22}
0°C	250	200
10°C	800	450
20°C	2000	850
30°C		3000

Tableau V.4 : Fréquences où se produit la transition vitreuse pour les permittivités ϵ_{11} et ϵ_{22}

V.3.2 Etude du coefficient de rigidité C_{33}^D

La courbe de l'angle de pertes mécaniques associé au coefficient C_{33}^D (figure III.17) permet de repérer la température de transition vitreuse de ce coefficient pour 2 fréquences considérées. Elle est de 10°C environ lorsque la fréquence d'excitation est de 1MHz et de 20°C lorsque la fréquence passe à 2MHz. Ces valeurs sont en bon accord avec les résultats obtenus sur les constantes de permittivité. Nous n'avons pas obtenu d'information relative aux coefficients de flexibilité mesurés, essentiellement parce que les gammes de fréquence et de température sont alors trop restreintes.

V.4. CONCLUSION GENERALE

L'étude qui a été menée aura permis la mesure de pratiquement tous les coefficients du PVDF, simultanément en température et en fréquence. Les évolutions de ces coefficients en fréquence nous ont empêchés d'utiliser la complétion tensorielle pour obtenir les autres. Les résultats obtenus sont en bon accord avec ceux qui ont été publiés.

Plusieurs méthodes de mesure ont été mises en place et utilisées. Certaines d'entre elles, malgré leur apparente simplicité, ne se sont pas révélées concluantes. La confrontation entre les résultats obtenus par les mesures de type mécanique et par celles de type électrique nous a paru être un bon outil de validation. L'utilisation de modélisations à l'aide des éléments finis nous paraît intéressante. Elle permet l'étude de systèmes trop complexes pour qu'un modèle analytique soit utilisable. Elle permet également une modélisation approximative des dispositifs mécaniques utilisés et, par conséquent, l'optimisation des dispositifs expérimentaux.

Les méthodes de mesure développées peuvent être utilisées pour la caractérisation d'autres piézoplastiques et piézocomposites, comme il a été montré sur une céramique souple. Les mesures de type mécanique sont cependant plus adaptées aux films piézoélectriques.

Dans l'avenir, il semble intéressant de prolonger les études d'évolution des propriétés en fréquence, afin d'une part d'obtenir des valeurs dans des gammes de fréquence communes, d'autre part de pouvoir calculer les équations d'évolution des constantes élastiques à partir des

modèles physiques caractéristiques de ce type de matériaux. Il semble intéressant d'affiner la caractérisation des pertes des piézoplastiques, qui peuvent modifier grandement les spectres de résonances de ceux-ci.

REFERENCES

- 1 R.B. GRAY,
U.S. Patent n°2, pp. 486-560 (filed 20 September 1946)
- 2 S. ROBERTS,
Dielectric and Piezoelectric Properties of Barium Titanate,
Phys. Rev. 71, pp. 890-895 (1947)
- 3 B. JAFFE, B.S. ROTH, S. MARZULLO,
Piezoelectric properties of lead zirconate-lead titanate
solid-solution ceramic ware,
J. Appl. Phys. 25, pp.809-810 (1954)
- 4 H. KAWAI,
Jpn J. Appl. Phys. 8, 975 (1969)
- 5 T. FURUKAWA, K. ISHIDA, E. FUKADA
Piezoelectric properties in the composite systems of polymers and
PZT ceramics,
J. Appl. Phys. 50(7), (1979)
- 6 IRE Standards on Piezoelectric Crystals : Determination of the
Elastic, Piezoelectric and Dielectric Constants-The
Electromechanical Coupling Factor (1958)
- 7 W.P. MASON,
Physical Acoustics
Academic Press, (1964)
- 8 QUARTZ & SILICE
Documentation technique CR1, "Ceramiques Piézoélectriques
- 9 J.N. DECARPIGNY,
Application de la méthode des éléments finis à l'étude des
transducteurs piézoélectriques,
Thèse de Doctorat d'Etat, Université des Sciences et Techniques de
Lille, (1984)
- 10 E. DIEULESAINT, D. ROYER,
Ondes élastiques dans les solides,
Ed MASSON (1974)

- 11 J.F. NYE,
Physical properties of crystals,
Clarendon Press, Oxford Univ. Press, (1957)
- 12 C. KITTEL,
Introduction à la physique de l'état solide,
Dunos Université (1972)
- 13 W.P. MASON,
Piezoelectric crystals and their application to ultrasonics,
D. Von Nostrand Co, Inc, New York, (1950)
- 14 J. LEMAITRE, J.L. CHABOCHE,
Mécanique des Matériaux Solides,
DUNOD (1985)
- 15 B. PERSOZ (coordinateur),
La Rhéologie, recueil de travaux des sessions de perfectionnement,
INSA Lyon, Ed. MASSON (1969)
- 16 L. BOLTZMANN
Pogg. ANN. Phys. 7,624 (1876)
- 17 J.D. FERRY
Viscoelastic properties of polymers
2nd ED., J. WILEY and sons (1969)
- 18 J.J. AKLONIS, W.J. Mc KNIGHT,
Introduction to polymer viscoelasticity,
J. WILEY and sons (1983)
- 19 H. FROHLICH,
Theory of dielectrics,
Oxford University Press, Oxford (1949)
- 20 A.S. NOWICK,
Progress in metal Physics, B. Chalmers (ED.), Intersciences (1953)
- 21 M.L. WILLIAMS, R.F. LANDEL, J.D. FERRY,
J. Amer. Chem. Soc. 77,3701 (1955)
- 22 P.E. ROUSE,
J. Chem. Phys., 21, p.1272 (1957)
- 23 A.K. DOOLITTLE,
J. Appl. phys. 23, (1952)

- 24 N.G. Mac CRUM, E.L. MORRIS,
Jap. J. APPL. Phys. 4, 542 (1965)
- 25 N.G. Mac CRUM, B.E. READ, G. WILLIAMS,
Anelastic and dielectric effects in polymeric solids,
J. WILEY and Sons (1964)
- 26 D.J. PLAZEK,
J. Phys. Chem. 69,3480 (1965)
- 27 Don BERLINCOURT,
Piezoelectric Ceramics : Characteristics and Applications
J. Acoust. Soc. Am. 70(6), pp.1586-1595 (1981)
- 28 O.B. WILSON,
An introduction to the theory and design of sonar transducers,
US Government Printing Office (1985)
Reprinted by Peninsula Publishing Co., Los Altos, CA 94023 (1989)
- 29 L. EYRAUD, P. EYRAUD, F. BAUER,
Current research in the field of PZT Ceramics and Ferroelectric
Polymers,
Advanced Ceramics Materials 1(3) pp.223-231 (1986)
- 30 L. EYRAUD, P. EYRAUD, P. GONNARD, M. TROCCAZ,
Properties improvements in PZT Ceramics with multiple substituants,
Ferroelectrics 31, pp.113-116 (1981)
- 31 P. GONNARD, L. EYRAUD,
Characterisation of piezoelectric ceramics of high power
transducers,
J. Acoust. Soc. Am. 85(Suppl.1) (1989)
- 32 J.P.STALLING, S.G. HOWELL,
Polym. Eng. Sci. 11, 507 (1971)
- 33 S.B. LANG,
Ferroelectrics, 62, 259 (1985) Bibliographie
- 34 J.G.BERGMAN, J.H. Mac FEE, G.R. CRANE,
Appl. Phys. Lett. 18, 203 (1971)
- 35 K. NAKAMURA, Y. WADA,
J. Polym. Sci. A-2, 9, 161 (1971)
- 36 A.J. LOVINGER,
Developments in crystalline polymers,
D.C. Bassetts,Ed. Applied Science Publ. (1982)

- 37 G.M. SESSLER,
J. Acoust. Soc. Am. 70, 1596 (1981)
- 38 W.M. PREST, J.R. and D.J. LUCAS,
J Appl. Phys, 46 4136 (1975)
- 39 K. NAGAWAKA, Y. ISHIDA,
J. Polym. Sci. 11, 2153 (1973)
- 40 M. ABKOWITZ, G. PFLISTER,
J Appl. Phys, 46, 2559 (1975)
- 41 E.L. NIX,
The mechanical and Electrical properties of highly oriented
Polyvinylidène Fluoride,
Ph. D. Leeds, (1987)
- 42 E. FUKADA, T. FURUKAWA,
Piezoelectricity and Ferroelectricity in Polyvinylidène Fluoride,
Ultrasonics 9(1), pp.31-34 (1981)
- 43 M. TAMURA, S. HAGIWARA, S. MATSUMOTO, N. ONO,
Some aspects of piezoelectricity and pyroelectricity in uniaxially
stretched PVDF,
J Appl. Phys, 48(2) pp.513-521 (1977)
- 44 A. PETERLIN, J. ELWELL,
Dielectric constant of rolled PVDF,
J. Mat. Sci. 2, (1967)
- 45 S.W. MEEKS, R.Y. TING,
Effects of static and dynamic stress on the piezoelectric and
dielectric properties of PVF₂,
J. Acoust. Soc. Am. 74(6) (1983)
- 46 B.R. HAHN,
Studies on the non linear response of Polyvinylidene Fluoride
J. Appl. Phys., 57(4) (1985)
- 47 H. OHIGASHI,
Electromechanical properties of polarized Polivynilidène fluoride
films as studied by the piezoelectric resonance method,
J. Appl. Phys. 47(3) pp. 949-955 (1976)
- 48 M. TAGAYANAGI, K. IMADA, T. KAJIYAMA,
J. Polym. Sci. C15, 263 (1966)

- 49 T. FURUKAWA, J. AIBA, E. FUKADA,
Piezoelectric relaxation in Polyvinylidene Fluoride
J. Appl. Phys. 50, 3615 (1979)
- 50 P. RAVINET, J. HUE, G. VOLLUET, P. HARTEMANN, D. BROUSSOU,
F. MICHERON,
Acoustic and dielectric loss processes in PVF₂,
IEEE Ultrasonic Symposium (1980)
- 51 M.G. BROADHURST, G.J. DAVIS, S.C. ROTH and R.E. COLLINS,
Proceedings of Conference on Electrical Insulation and Dielectric
Phenomena,
Buck Hill Falls, Pa. 1976 (unpublished)
- 52 Ph. ROBIN, J.M. BUREAU, M. CHAMPAGNE,
Propriétés pyroélectriques des copolymères de Fluorure de
Vinylidène et de Tetrafluoroéthylène
Congrès de la SEE, Nancy (1987)
- 53 J.X. WEN,
Piezoelectricity and pyroelectricity in a copolymer of Vinylidene
Fluoride and Tetrafluoroethylene,
Polym. J. 17(2) pp.399-407 (1985)
- 54 R.C. POHANKA, R.W. RICE, P.L. SMITH,
Advanced Ceramics and composites for underwater acoustics and
engineering applications.
NRL Memorandum Report 3854 (1978)
- 55 R.Y. TING,
Evaluation of new piezoelectric composite materials for hydrophone
applications,
Ferroelectrics, 67, pp.143-157 (1986)
- 56 R.E. NEWNHAM, D.P. SKINNER and L.E. CROSS,
Connectivity of Piezoelectric-Pyroelectric composites,
Mat. Res. Bull. 13, pp.525-536 (1978)
- 57 T.R. GURURAJA, W.A. SCHULTZE, L.E. CROSS, R.E. NEWNHAM, B.A. AULD,
Y.J. WANG,
Piezoelectric Composite for Ultrasonic Transducer Applications,
IEEE Trans. on Son. and Ultrason. SU 32(4), (1985)
- 58 D.P. SKINNER, R.E. NEWNHAM, L.E. CROSS,
Flexible composite transducers,
Mat. Res. Bull. 13, pp599-607 (1978)

- 59 H. BANNO, S. SAITO,
Piezoelectric and Dielectric properties of composites of synthetic
rubber and PbTiO_3 or PZT,
Proceedings of the 4th Meeting on Ferroelectric Materials and their
applications, Kyoto (1983)
- 60 T.R. GURURAJA, W.A. SCHULTZE, L.E. CROSS, R.E. NEWNHAM
Resonant Modes in Piezoelectric PZT Rode-polymer composite
materials,
IEEE Ultrasonic Symposium (1986)
- 61 M. ROYER
Contribution à l'étude des propriétés diélectriques,
pyroélectriques et piézoélectriques du PVDF,
Thèse, Université de Paris VI (1979)
- 62 G.W. FARNELL, I.A. CERMAK, P.SILVESTER and S.K. WONG,
IEEE Trans. on Son. and Ultrason. (1970)
- 63 R. BECHMANN,
Elastic, piezoelectric and dielectric constants of polarized Barium
Titanate ceramics and some applications of the piezoelectric
equations,
J. Am. Soc. Acoust. 28, pp. 347-350 (1956)
- 64 H.G. BAERWALD and C. LIBOVE,
Breathing vibration of planarly isotropic square plates,
Clevite Research Center, Cleveland, Ohio, Contract
N° NONR 1055(00), Techn. Report N°8 (December 1955)
- 65 R. HOLLAND, E.P. EER NISSE,
Accurate Measurement of coefficients in a ferroelectric ceramic,
IEEE Trans. on Son. and Ultrason. Vol Su 16(4) pp. 173-181 (1969)
- 66 J.G. SMITS,
Iterative method for accurate determination of the real and
imaginary parts of the material coefficients of piezoelectric
ceramics,
IEEE Trans. on Son. and Ultrason. Vol Su-23(6) pp.393-402 (1976)
- 67 J.G. SMITS,
High accuracy determination of real and imaginary parts of elastic,
piezoelectric and dielectric constants of Ferroelectrics PLZT
(11/55/45) ceramics with iterative method,
Ferroelectrics 64 pp.275-291 (1985)

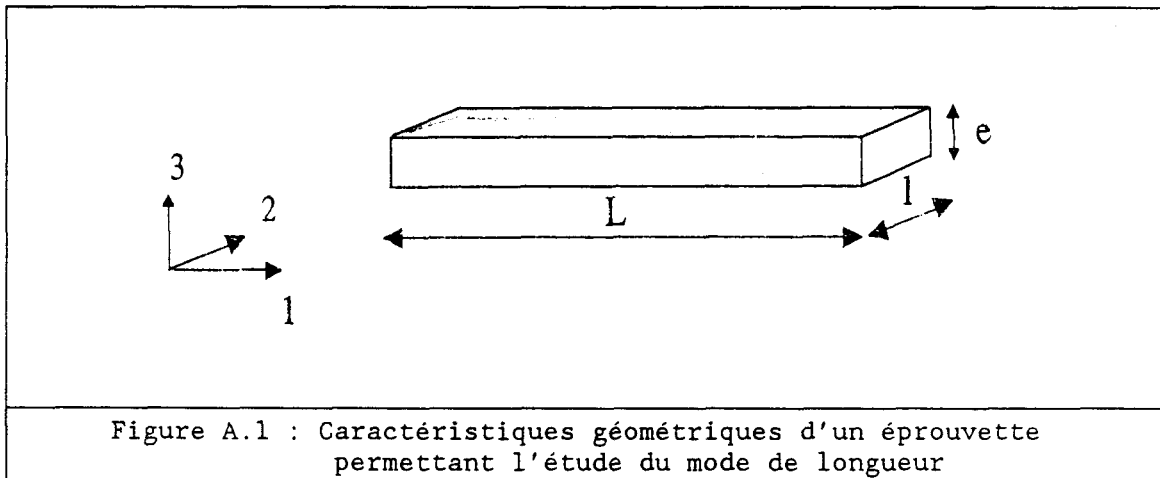
- 68 H. SHIMITSU, S. SAITO,
An improved equivalent circuit of piezoelectric transducers
including the effects of dielectric losses,
J. Acoust. Soc. Jpn. (E)6,3 pp.225-234 (1985)
- 69 P. TIERCE,
Modélisation du transducteur ISABELLE par la méthode des éléments
finis,
Thèse de Docteur Ingénieur, Université de Valenciennes et du
Hainaut-Cambrésis (1985)
- 70 B. TOCQUET, D. BOUCHER, J.N. DECARPIGNY, J.C. DEBUS, P. TIERCE,
Finite element method applied to characterization of piezoelectric
ceramics,
J. Am. Soc. Acoust. 74(Suppl 1) (1983)
- 71 B.A. AULD, J.J. GAGNEPAIN,
Shear properties of polarized PVF₂ films studied by the
piezoelectric resonance method,
J Appl. Phys, 50(8) pp.5511-5512 (1979)
- 72 Q.C. XU, A.R. RAMACHANDRAN, R.E. NEWNHAM,
Resonance measuring technique for complex coefficients of
piezoelectric composites,
Material Research Laboratory, The Pennsylvania State University,
University Park, PA 16802 (Rapport Interne)
- 73 L.F. BROWN, D.L. CARLSON,
Ultrasound Transducer models for piezoelectric polymers films,
IEEE Trans. on Ferroelectrics and frequency control, 36(3),
pp.313-318 (1989)
- 74 WARD and DOGANIS
IEEE Computer-Aided Design, 1, p.1693 (1982)
- 75 DAHLQUIST,
Numerical Methods,
Prentice-Hall (1974)
- 76 F. MICHERON,
Thermodynamique du Polyfluorure de Vinylidène et Application,
Revue Technique THOMSON-CSF 11(3), (1979)

- 77 M.D. DELODDERE, M. FAVRE, J.N. DECARPIGNY,
Caractérisation du PVDF,
Convention de Recherche n°C83/48.826.163 avec la DCAN Toulon pour
le GERDSM, Commande n°020, Rapport Final (1987)
- 78 Notice interne,
Naval Underwater Systems Center, NEW LONDON
- 79 P.M. MORSE, K. UNO INGARD,
Theoretical Acoustics,
Mac Graw-Hill (1968)
- 80 J.P. CHABROL,
Développement de Méthodes de Mesure d'un Déplacement Vibratoire par
Holographie et Interférométrie Homodyne,
Diplôme d'Ingénieur CNAM, LILLE, (1988)
- 81 BOUDRE,
Caractérisation du PVDF,
PV INTERNE n°87/001 GERDSM, DCAN Toulon
- 82 F. BAUER,
Propriétés ferroélectriques et pyroélectriques du PVDF,
Journée d'information piézoélectriques-pyroélectriques ISL
- 83 C.M. VAN DER BURGT, G.A. VON MAANEN, J.W. VEGT,
Ultrasonics International 1977, Brighton, U.K.
IPC Science and Technology Press, Guilford, Surrey, pp.500-507
(1977)
- 84 J. BURNS, P.S. DUBBELDAY, R.Y. TING,
Bulk Modulus of Elasticity of Various elastomers : Theory and
Experiment,
NRL Memorandum Report 5991, (1987)
- 85 R.M. FUOSS, J.G. KIRKWOOD,
Electrical Properties of Solides VIII. Dipole Moments in
Polyvinyl-Chloride-Diphenyl Systems,
J. AM. Chem. Soc. 63, P.385 (1941)

ANNEXE A

Calcul du mode
de longueur d'une plaque
piézoélectrique rectangulaire [7]

Dans cette annexe, est traité le calcul complet du mode 31. Dans un premier temps, on détermine l'admittance du système et, dans un second temps, son schéma équivalent. Enfin, on établit les simplifications nécessaires au calcul des constantes du matériau.



Les hypothèse de travail (figure A.1) sont les suivantes:

- la propagation s'effectue dans la direction 1,
- le système est libre de toute force appliquée sur ses faces,
- la dimension dans la direction 1 est beaucoup plus grande que les autres dimensions,
- un champ électrique est appliqué sur les électrodes des faces normales à la direction 3 .

Le système d'équations caractéristique du problème est le suivant :

$$[S] = [s^E] \cdot [T] + [d] \cdot [E] \quad (A.1)$$

$$[D] = [d] \cdot [T] + [\epsilon^T] \cdot [E] \quad (A.2)$$

Comme seule la composante T_1 du tenseur des contraintes est non nulle, et comme seul le terme E_3 du champ électrique existe, ces équations se réduisent à :

$$S_1 = s_{11}^E \cdot T_1 + d_{31} \cdot E_3 \quad (\text{A.3})$$

$$D_3 = d_{31} \cdot T_1 + \epsilon_{33}^T \cdot E_3 \quad (\text{A.4})$$

L'équation fondamentale de la dynamique appliquée à un élément de volume dV de l'éprouvette s'écrit:

$$\rho \cdot dV \cdot \frac{\partial^2 u_1}{\partial t^2} = \frac{\partial T_1}{\partial x_1} \cdot dV \quad (\text{A.5})$$

où u_1 est la composante du déplacement selon la direction 1. On remplace alors T_1 par son expression en fonction de S_1 et, par extension, en fonction de u_1 puisque

$$S_1 = \frac{\partial u_1}{\partial x_1} \quad (\text{A.6})$$

Alors :

$$\rho \cdot \frac{\partial^2 u_1}{\partial t^2} = \frac{1}{s_{11}^E} \cdot \frac{\partial^2 u_1}{\partial x_1^2} - \frac{d_{31}}{s_{11}^E} \cdot \frac{\partial E_3}{\partial x_1} \quad (\text{A.6})$$

Comme E_3 ne varie pas en fonction de x_1 , on obtient, en introduisant la vitesse de propagation longitudinale

$$v_b^E = \frac{1}{\sqrt{\rho \cdot s_{11}^E}} \quad (\text{A.8})$$

une équation facilement intégrable, si l'on suppose que $u_1(x_1, t)$ peut se mettre sous la forme $\psi_1(x_1) \cdot e^{j\omega t}$:

$$\frac{d^2 \psi_1}{dt^2} + \frac{\omega^2}{v_b^{E2}} \cdot \psi_1 = 0 \quad (\text{A.9})$$

Les solutions de cette équation sont :

$$\psi_1(x_1) = A \cdot \sin \left[\frac{\omega \cdot x_1}{v_b^E} \right] + B \cdot \cos \left[\frac{\omega \cdot x_1}{v_b^E} \right] \quad (\text{A.10})$$

A et B étant des constantes qui sont déterminées par les conditions aux limites du système. Ces conditions aux limites consistent en l'hypothèse de faces libres ($T_1(x_1=0) = 0$, $T_1(x_1=L) = 0$) et en l'hypothèse d'un champ électrique sinusoïdal ($E_3 = E_0 \cdot e^{j\omega t}$). En définitive, l'allongement s'écrit :

$$u_1(x_1, t) = \frac{d_{31} \cdot E_0 \cdot v_b^E}{\omega} \cdot \left[\sin \left[\frac{\omega \cdot x_1}{v_b^E} \right] + \frac{\cos \left[\frac{\omega \cdot L}{v_b^E} \right] - 1}{\sin \left[\frac{\omega \cdot L}{v_b^E} \right]} \cdot \cos \left[\frac{\omega \cdot x_1}{v_b^E} \right] \right] \cdot e^{j\omega t} \quad (\text{A.11})$$

Calcul de l'admittance électrique

L'admittance $Y(\omega)$ du système se calcule à partir de l'expression du courant I traversant le condensateur et de la tension électrique V imposée à ses bornes :

$$I = \frac{dQ}{dt} = j\omega Q = j\omega \iint_{\text{surface}} D_3 \cdot dS = j\omega l \int_0^L D_3(x_1) \cdot dx_1 \quad (\text{A.12})$$

$$V = \int_0^e E_3 \cdot dx_3 = e \cdot E_0 \cdot e^{j\omega t} \quad (\text{A.13})$$

Tous calculs faits, l'admittance s'écrit :

$$Y(\omega) = j\omega \cdot \frac{L \cdot l}{e} \cdot \epsilon_{33}^T \cdot \left(1 - k_{31}^2 + k_{31}^2 \cdot \frac{\text{tg} \left(\frac{\omega \cdot x_1}{v_b^E} \right)}{\frac{\omega \cdot x_1}{v_b^E}} \right) \quad (\text{A.14})$$

avec :

$$k_{31}^2 = \frac{d_{31}^2}{s_{11}^E \cdot \epsilon_{33}^T} \quad (\text{A.15})$$

qui représente le coefficient de couplage piézoélectrique du système.

Schéma électrique équivalent

Pour pouvoir déterminer le schéma électrique équivalent du système, on prend comme hypothèses de départ que des forces $F_1(t)$ et $F_2(t)$ sont appliquées sur chacune des faces et que les vitesses vibratoires de ces faces sont $U_1(t)$ et $U_2(t)$:

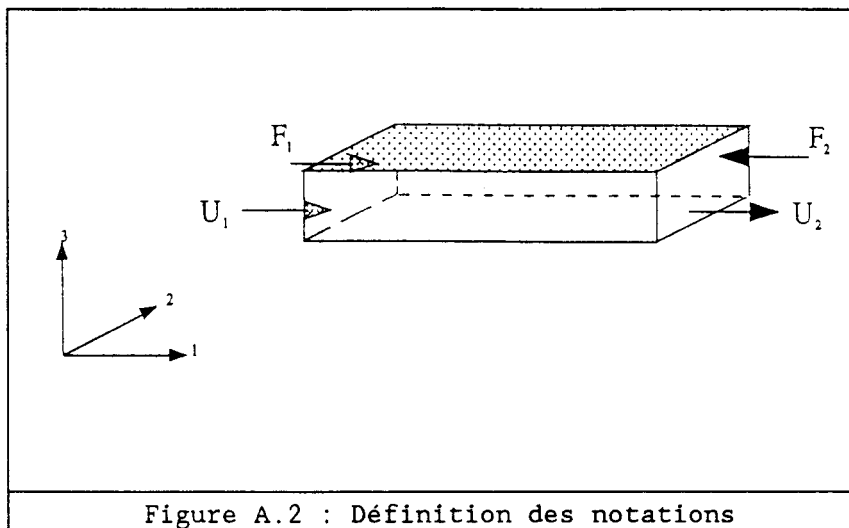


Figure A.2 : Définition des notations

On écrit alors que :

$$U_1(\tau) = \left. \frac{du_1}{dt} \right|_{x_1=0}, \quad U_2(\tau) = - \left. \frac{du_1}{dt} \right|_{x_1=L} \quad (\text{A.16})$$

$$U_1(\omega) = j\omega u_1(x_1=0) \quad U_2(\omega) = -j\omega u_1(x_1=L) \quad (\text{A.17})$$

et

$$\int_0^L S_1 dx_1 = \frac{1}{j\omega} \cdot (U_2 + U_1) \quad (\text{A.18})$$

On en déduit l'expression du courant I :

$$I = jC_0 V\omega - N (U_1 + U_2) \quad (\text{A.19})$$

avec

$$C_0 = \epsilon_{33}^I \cdot \frac{1 \cdot L}{e} \cdot (1 - k_{31}^2) \quad (\text{A.20})$$

et

$$N = 1 \cdot \frac{d_{31}}{s_{11}^E} \quad (\text{A.21})$$

Les forces F_1 et F_2 sont reliées à la contrainte T_1 par les relations :

$$F_1 = -e \cdot l \cdot T_1(0) \quad \text{et} \quad F_2 = -e \cdot l \cdot T_1(0) \quad (\text{A.22})$$

L'allongement a déjà été calculé, les deux constantes A et B étant fonction des conditions aux limites de l'éprouvette. Les nouvelles conditions aux

limites permettent de calculer une nouvelle expression de ces constantes :

$$U_1(t) = j\omega B \cos(0) e^{j\omega t} = j\omega B e^{j\omega t} \quad (\text{A.23})$$

$$U_2(t) = j\omega \left(A \cdot \sin\left(\frac{\omega L}{v_b^E}\right) + B \cdot \cos\left(\frac{\omega L}{v_b^E}\right) \right) \cdot e^{j\omega t} \quad (\text{A.24})$$

soit :

$$A = \frac{-1}{j\omega e^{j\omega t}} \cdot \left(\frac{U_1}{\text{tg}\left(\frac{\omega L}{v_b^E}\right)} + \frac{U_2}{\sin\left(\frac{\omega L}{v_b^E}\right)} \right) \quad (\text{A.25})$$

et

$$B = \frac{U_1}{j\omega \cdot e^{j\omega t}} \quad (\text{A.26})$$

On en déduit alors les expressions de F_1 et F_2 :

$$F_1 = \frac{e \cdot l}{j \cdot v_b^E \cdot s_{11}^E} \cdot \left(\frac{U_1}{\text{tg}\left(\frac{\omega L}{v_b^E}\right)} + \frac{U_2}{\sin\left(\frac{\omega L}{v_b^E}\right)} \right) + \frac{d_{31}}{s_{11}^E} \cdot l \cdot V \quad (\text{A.27})$$

$$F_2 = \frac{e \cdot l}{j \cdot v_b^E \cdot s_{11}^E} \cdot \left(\frac{U_1}{\sin\left(\frac{\omega L}{v_b^E}\right)} + \frac{U_2}{\text{tg}\left(\frac{\omega L}{v_b^E}\right)} \right) + \frac{d_{31}}{s_{11}^E} \cdot l \cdot V \quad (\text{A.28})$$

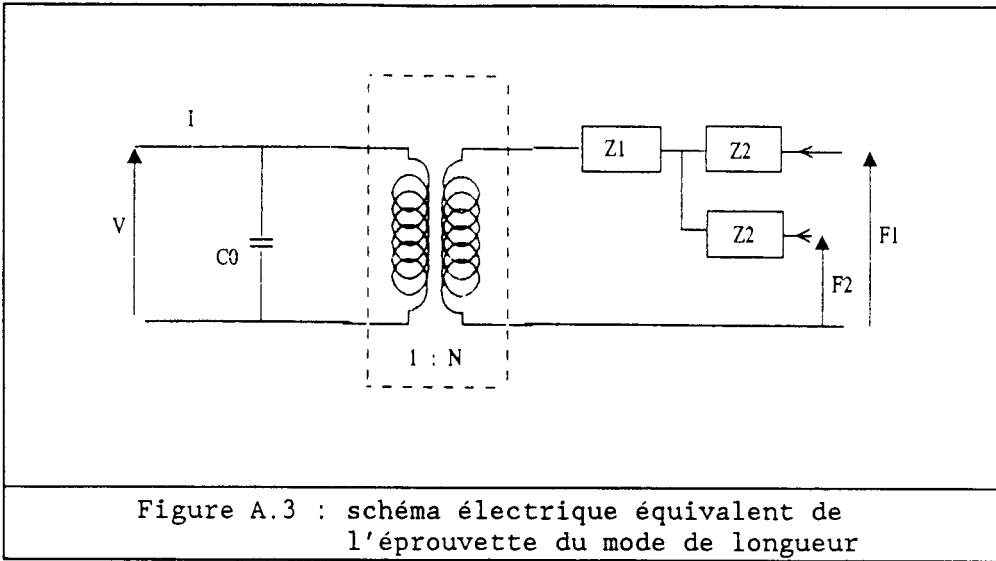
Par la suite, on écrira :

$$Z_0 = \frac{e \cdot l}{v_b^E \cdot s_{11}^E} \quad (\text{A.29})$$

$$Z_1 = j \cdot Z_0 \cdot \text{tg}\left(\frac{\omega L}{2 \cdot v_b^E}\right) \quad (\text{A.30})$$

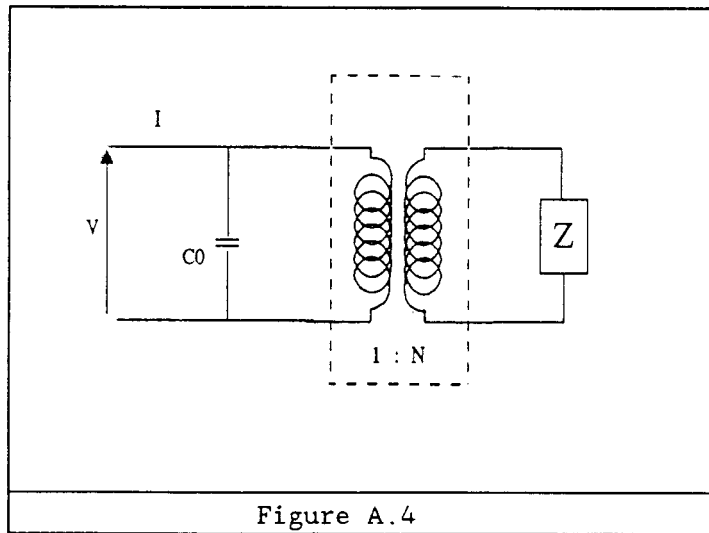
$$Z_2 = -j \cdot Z_0 \cdot \left(\sin\left(\frac{\omega L}{v_b^E}\right) \right)^{-1} \quad (\text{A.31})$$

On peut alors représenter le schéma électrique équivalent du système :



Simplifications

Dans le cas où le système étudié est libre de toute contrainte extérieure, F_1 et F_2 sont nulles et le schéma équivalent devient :



avec :

$$Z = -j \cdot \frac{Z_0}{2} \cdot \cotg\left(\frac{\omega \cdot L}{2 \cdot v_b^E}\right) \tag{A.32}$$

Au voisinage de la résonance, Z se simplifie en:

$$Z = j \cdot \frac{Z_0}{4} \cdot \frac{L \cdot \delta\omega}{v_b^E} \tag{A.33}$$

avec $\delta\omega = \omega - \omega_0$ et $\omega_0 = \pi \cdot v_b^E / L$

Un circuit LC série autour de sa résonance ($LC\omega_0^2 = 1$) voit son impédance se simplifier en :

$$Z = 2 \cdot j \cdot L \cdot \delta\omega \quad (\text{A.34})$$

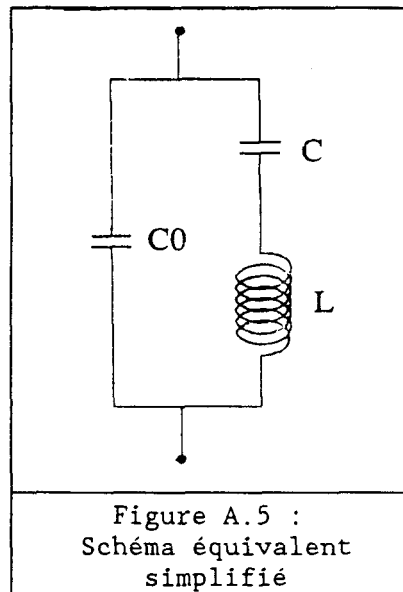
Par identification, on écrit alors:

$$L = \frac{e \cdot l \cdot L}{8 \cdot v_b^E \cdot s_{11}^E} \quad (\text{A.35})$$

et

$$C = \frac{1}{L\omega_0^2} = \frac{8 \cdot s_{11}^E \cdot L}{\pi^2 \cdot e \cdot l} \quad (\text{A.36})$$

En ramenant au primaire la branche motionnelle, on obtient le schéma électrique simplifié suivant :



Si on introduit dans la branche motionnelle du schéma équivalent les pertes mécaniques du matériau sous la forme:

$$s_{11}^E = s_{11}^E \cdot (1 - j \cdot \text{tg}\delta_m) \quad (\text{A.37})$$

on obtient alors, en supposant que le terme $\text{tg}\delta_m$ est suffisamment petit pour que son carré soit négligeable devant 1 :

$$Z_{\text{motionnelle}} = j.L.\omega + \frac{1}{j.C.\omega} + 2.L.tg\delta_m.\omega - \frac{tg\delta_m}{C.\omega} \cong j.L.\omega + \frac{1}{j.C.\omega} + L.\omega_o.tg\delta_m \quad (\text{A.38})$$

En posant R comme une résistance égale à $L.\omega_o.tg\delta_m$, on obtient un comportement identique à celui d'un circuit RLC. Le coefficient de qualité Q de ce circuit est égal à $1/R/C/\omega_o$ soit à $1/tg\delta_m$. La mesure de la bande passante à -3dB de la branche motionnelle donne donc directement la valeur de l'angle des pertes mécaniques.

En ce qui concerne la branche diélectrique, on introduit les angles de pertes mécaniques et diélectriques dans la capacité C_o (elle est ici exprimée en Farads par unité de longueur):

$$C_o = \epsilon_{33}^I * . (1 - k_{31}^2 *) - \epsilon_{33}^I . (1 - j.tg\delta_E) - \frac{d_{31}^2}{s_{11}^E . (1 - j.tg\delta_m)} \quad (\text{A.39})$$

On rappelle que l'astérisque indique le caractère complexe des constantes. Si ces mêmes constantes ne portent pas d'astérisque, il s'agit alors de leur partie réelle. On peut écrire:

$$C_o = \epsilon_{33}^I . \left(1 - \frac{k_{31}^2}{1+tg\delta_m^2} \right) - j . \epsilon_{33}^I . \left(tg\delta_E + \frac{k_{31}^2}{1+tg\delta_m^2} . tg\delta_m \right) \quad (\text{A.40})$$

$$C_o \cong \epsilon_{33}^I . (1 - k_{31}^2) - j . \epsilon_{33}^I . tg\delta_E \quad (\text{A.41})$$

La résistance R_o des pertes associées à C_o dépend donc uniquement des pertes diélectriques et elle s'écrit

$$R_o = \frac{1}{\epsilon_{33}^I . tg\delta_E . \omega} \quad (\text{A.42})$$

ANNEXE B

Exploitation de la résonance
électrique d'une éprouvette

Pour pouvoir exploiter les informations contenues dans la résonance électrique d'une éprouvette, il est nécessaire de séparer la partie purement diélectrique de la composante motionnelle de sa conductance, ou encore de l'angle des pertes associé à la capacité. Dans le programme développé, cette procédure est effectuée automatiquement, pour faciliter la répétitivité des mesures. La méthode retenue utilise un ajustage par moindres carrés, avec un encadrement de plus en plus fin de la résonance. Dans un premier temps, le programme détermine une plage de fréquences comprise entre F_1 et F_2 où doit raisonnablement se situer la résonance recherchée, sur la base d'une estimation grossière du coefficient d'élasticité du matériau. Ensuite, deux plages de fréquences, assez éloignées de la résonance, sont sélectionnées de part et d'autre de celle-ci. Un ajustage par un polynôme d'ordre 3 est effectué sur cet ensemble de données. La procédure est réitérée pour une fenêtre encadrant plus étroitement la résonance. La comparaison des polynômes permet de déterminer si l'on encadre suffisamment la résonance. Des comparaisons successives permettent de détecter la position où la résonance commence à modifier le spectre de la conductance.

Les figures B1 à B3 présentent les résultats obtenus dans trois configurations différentes. La figure A présente l'évolution de l'angle des pertes avec la fréquence, la courbe en traits pleins correspond aux pertes mesurées, la courbe en pointillés aux pertes diélectriques estimées selon la méthode exposée ci-dessus. La figure B présente l'évolution de l'angle des pertes mécaniques extrait, en fonction de la fréquence. La figure C indique pour mémoire la capacité correspondante. Les figures B1 à B3 présentent respectivement des résultats types de résonance aigüe, assez amortie, très amortie.

La méthode présente un inconvénient important, l'algorithme étant inopérant lorsque les courbes sont bruitées, en particulier lorsque des résonances parasites (harmoniques d'autres modes) sont situées dans la gamme de fréquence considérée. Il y a donc lieu de vérifier systématiquement la validité des résultats obtenus après une série de mesures.

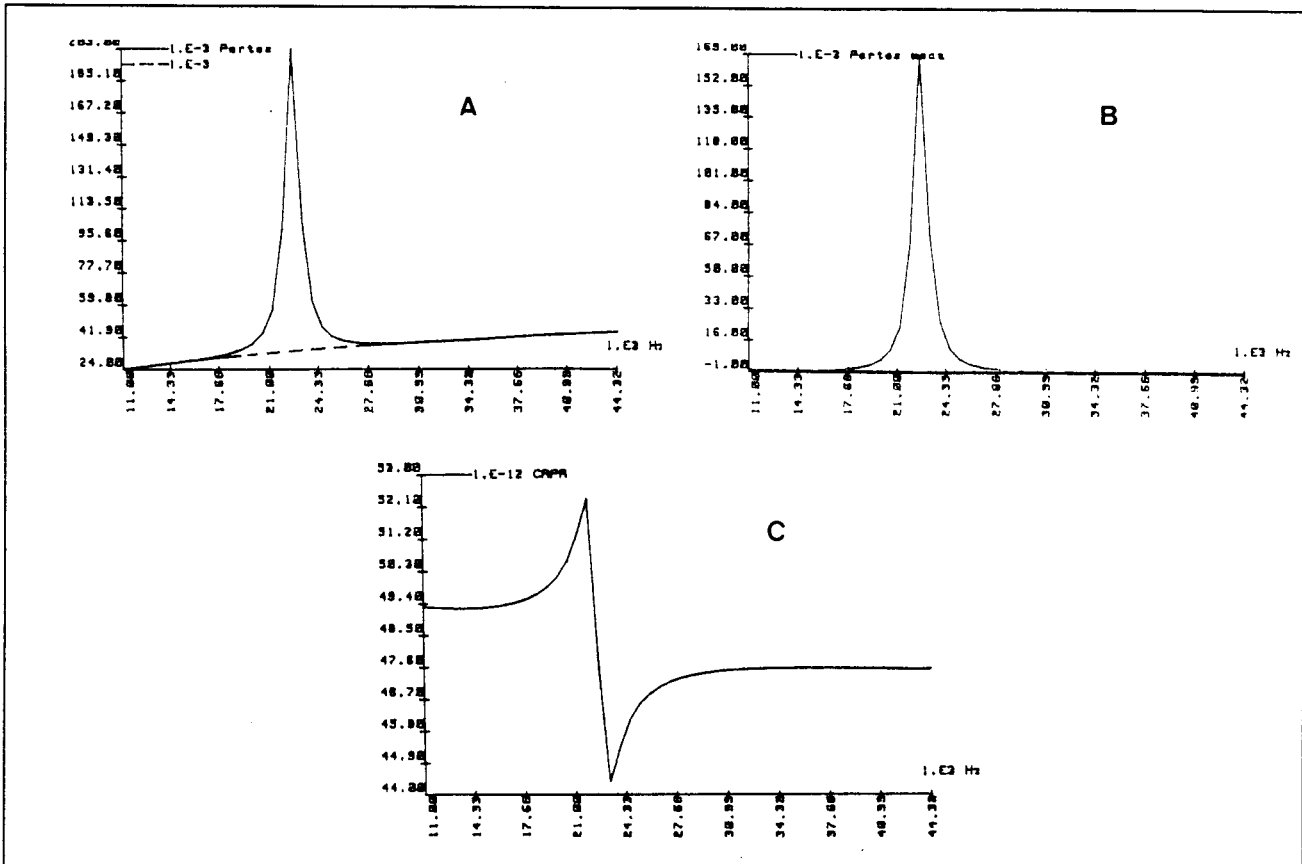


Figure B1

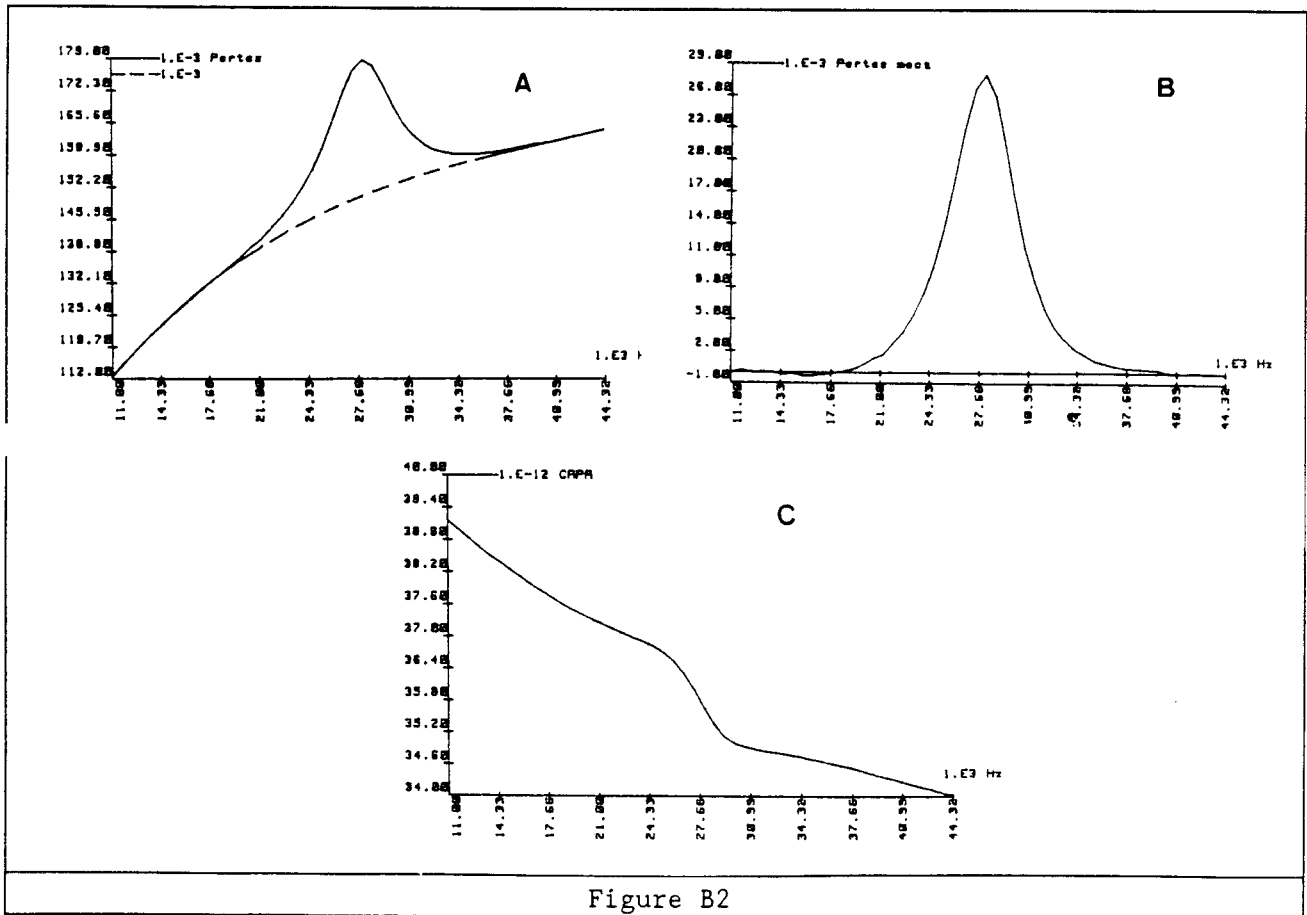


Figure B2

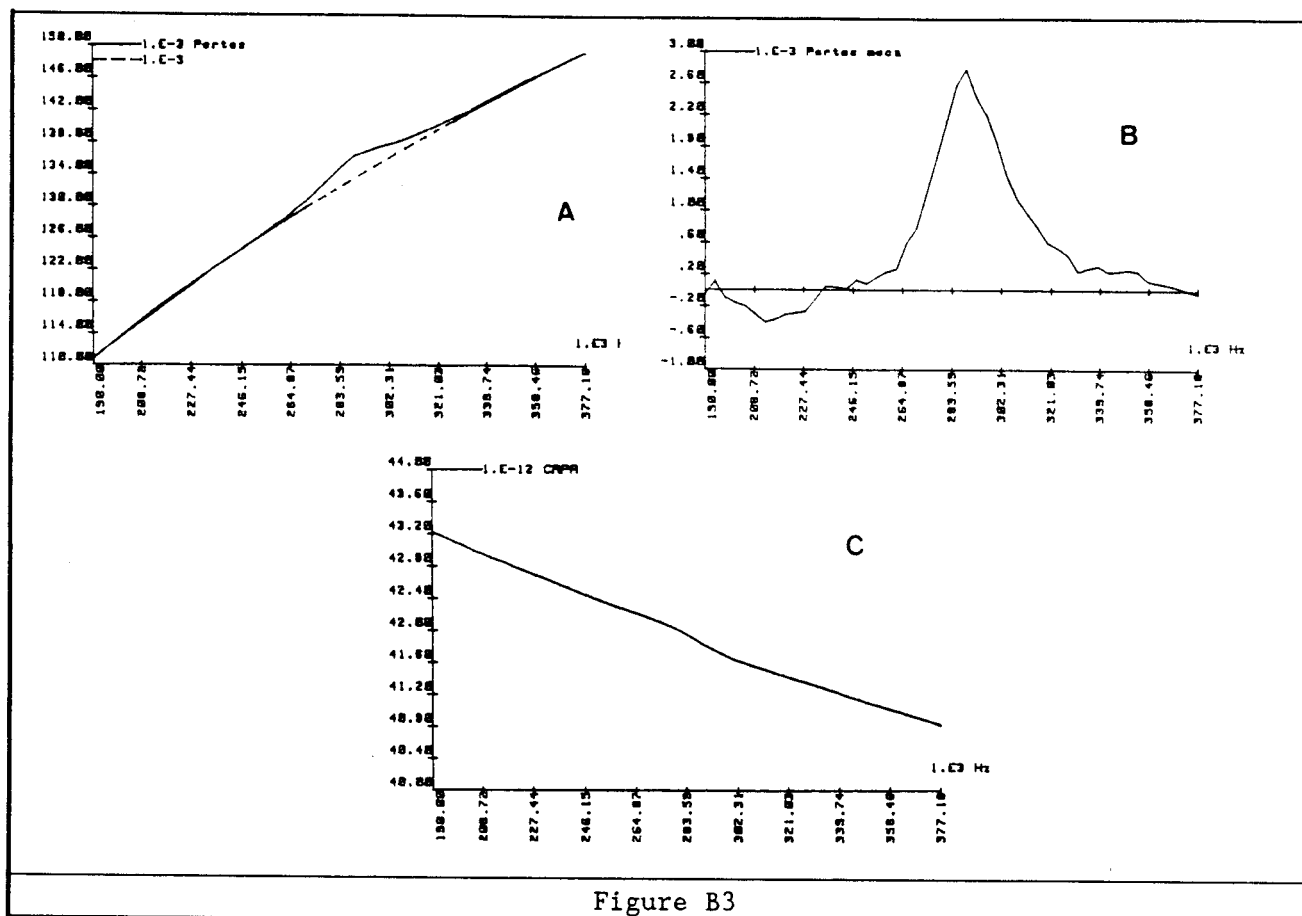
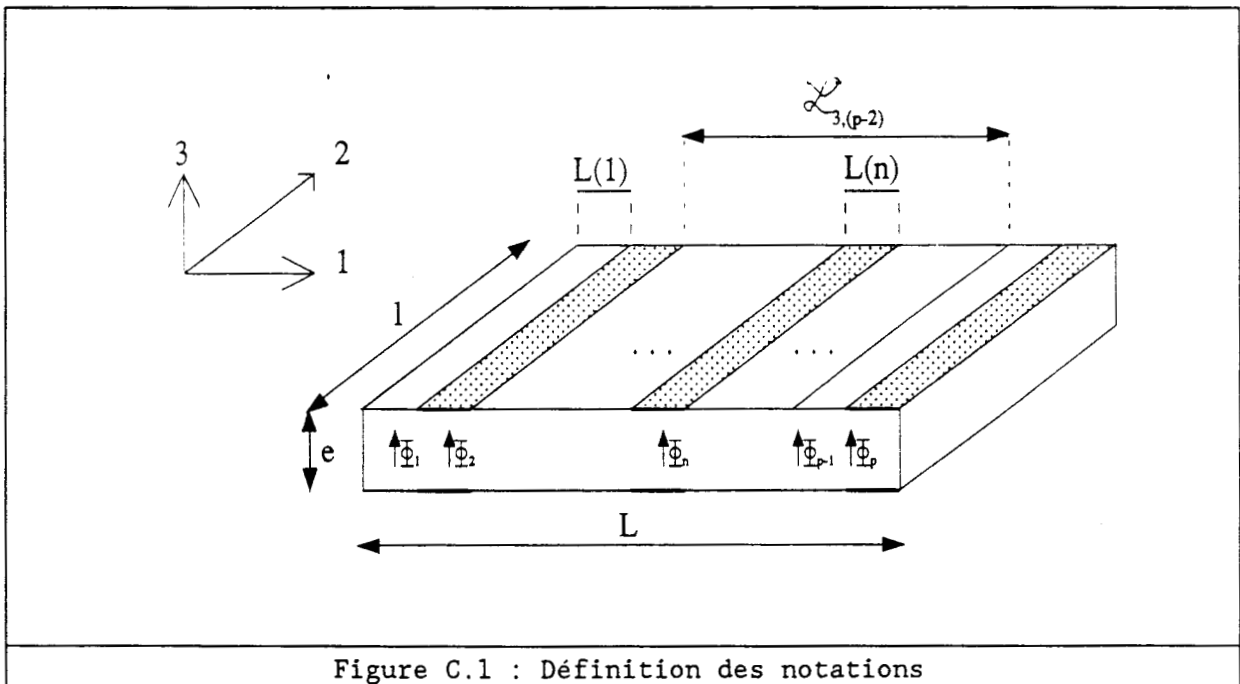


Figure B3

ANNEXE C

Modèle analytique pour
 les éprouvettes à peignes interdigités

Dans cette annexe est établi le modèle analytique général des structures à peignes étudiées. Soit le peigne représenté en figure C.1 :



Les notations utilisées sont les suivantes :

- $L(i)$ représente la longueur du bloc élémentaire numéro i , ce bloc étant électrodé ou non.

$$- f_{n,m} = \sum_{i=n}^m L(i)$$

- p est le nombre total de blocs élémentaires,
- k est le nombre d'onde (ω/c),
- K représente le coefficient de couplage piézoélectrique du matériau,
- d est le coefficient piézoélectrique correspondant,
- s est le coefficient de flexibilité considéré,
- ϵ_{33} est la permittivité diélectrique.

On considère naturellement une propagation dans le sens 1, cette propagation correspondant à un mode de longueur ou de largeur selon les fréquences considérées. Si la longueur de l'onde étudiée est beaucoup plus grande que la largeur de l'éprouvette, on est en présence d'un mode de longueur, et :

$$s = s_{11}^E, \quad K=K_{31}, \quad d=d_{31} \quad (C.1)$$

Si au contraire, la longueur d'onde est petite devant la largeur, les déplacements selon cette largeur sont bloqués et :

$$s = s_{22}^E - \frac{s_{12}^E}{s_{11}^E}, \quad d = d_{32} - d_{31} \cdot \frac{s_{12}^E}{s_{11}^E}, \quad \epsilon \cong \epsilon_{33} \quad (C.2)$$

Soit le bloc n suivant :

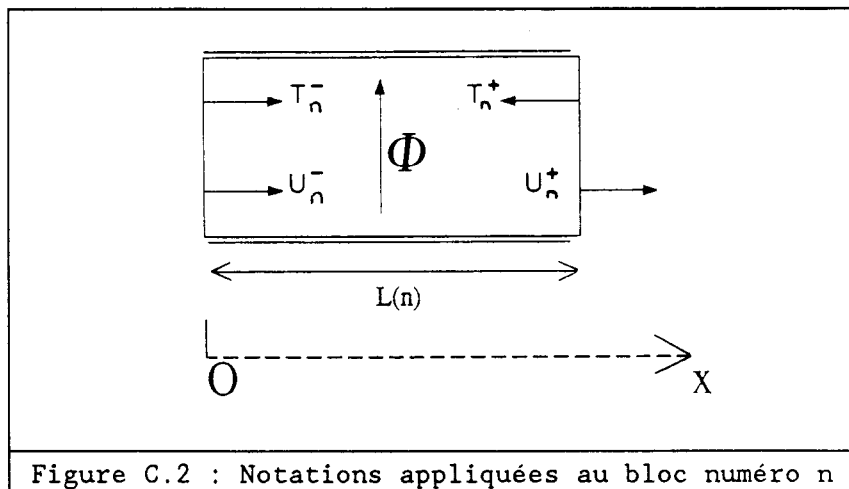


Figure C.2 : Notations appliquées au bloc numéro n

Ox est un repère local appliqué à cette zone. Le potentiel d'un bloc quelconque possédant une électrode est pris comme référence. Le potentiel Φ_n appliqué au bloc n prend les valeurs +1V, -1V, 0 selon que le signal aux bornes des électrodes est en phase, en opposition de phase avec celui de l'électrode de référence, ou encore nul s'il n'y a pas d'électrode sur le bloc. T_n^+ et T_n^- sont les contraintes exercées sur les extrémités du bloc, et u_n^+ et u_n^- les vitesses vibratoires de ces faces. La relation liant ces cinq grandeurs s'écrit:

$$\begin{pmatrix} T_n^+ \\ u_n^+ \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos(k L(n)) & -\frac{k}{s} \sin(k L(n)) \\ \frac{s}{k} \sin(k L(n)) & \cos(k L(n)) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} T_n^- \\ u_n^- \end{pmatrix} + \frac{d \Phi_n}{e s} \cdot \begin{pmatrix} \cos(k L(n)) - 1 \\ \frac{s}{k} \sin(k L(n)) \end{pmatrix} \quad (C.3)$$

matrice. Par extension, on nomme $A_n(x)$ et $B_n(x)$ les mêmes matrices où la longueur $L(n)$ aura été remplacée par x . On écrit donc :

$$\begin{pmatrix} T_n(x) \\ u_n(x) \end{pmatrix} = A_n(x) \cdot \begin{pmatrix} T_n^- \\ u_n^- \end{pmatrix} + \Psi_n \cdot B_n(x) \quad (C.4)$$

En utilisant la méthode des matrices de transfert, on obtient finalement :

$$\begin{pmatrix} T_n(x) \\ u_n(x) \end{pmatrix} = A_n(x) \cdot \prod_{i=1}^{n-1} A_i \cdot \begin{pmatrix} T_1^- \\ u_1^- \end{pmatrix} + \sum_{i=1}^{n-1} A_n(x) \cdot \left(\prod_{m=i+1}^{n-1} A_m \cdot B_{m-1} \cdot \Psi_{m-1} \right) + B_n(x) \cdot \Psi_n \quad (C.5)$$

Sachant que T_p^+ est forcément une contrainte nulle puisque l'on travaille avec une hypothèse de faces libres, on peut calculer une expression de u_1^- . On obtient donc une expression de $T_n(x)$ qui est uniquement fonction des dimensions de l'éprouvette, et des potentiels appliqués. Le calcul de la charge portée par l'électrode du bloc i peut alors être effectué. Si $D_3(x)$ est le déplacement électrique au point d'abscisse x , il est relié aux contraintes et au champ électrique par la relation :

$$D_3(x) = d \cdot T_n(x) + \epsilon_{33}^I \cdot E_3(x) \quad (C.6)$$

La charge Q_n portée par l'électrode du bloc s'écrit, si Σ_n est la surface de l'électrode du bloc n :

$$Q_n = \iint_{\Sigma_n} D_3(x) \, d\Sigma_n = l \cdot \int D_3(x) \cdot dx \quad (C.7)$$

$$Q_n = C_0^I \cdot \Phi_n + l \cdot d \cdot \int_0^{L(n)} T_n(x) \cdot dx \quad \text{avec} \quad C_0^I = \epsilon_{33}^I \cdot \frac{l \cdot L(n)}{e} \quad (C.8)$$

Tous calculs faits, on obtient :

$$\begin{aligned}
Q_n = & C_o^T \cdot \Phi_n \cdot (1 - K^2) + C_o^T \cdot K^2 \cdot \frac{1}{k.L(n)} \cdot \left(\frac{\cos(k.L_{1,n}) - \cos(k.L_{1,n-1})}{\sin(k.L)} \right. \\
& + \sum_{q=1}^P (\cos(k.L_{q,p}) - \cos(k.L_{q+1,p})) \cdot \Phi_q \\
& + \left. \sum_{q=0}^{n-2} (\sin(k.L_{n-q,n}) - \sin(k.L_{n-q,n-1})) \cdot (\Phi_{n-q} - \Phi_{n-q-1}) \right) \\
& + C_o^T \cdot K^2 \cdot \frac{1}{k.L(n)} \cdot (\sin(k.L_{1,n}) - \sin(k.L_{1,n-1})) \cdot \Phi_1
\end{aligned} \tag{C.9}$$

La charge totale Q_T portée par le peigne s'écrit alors :

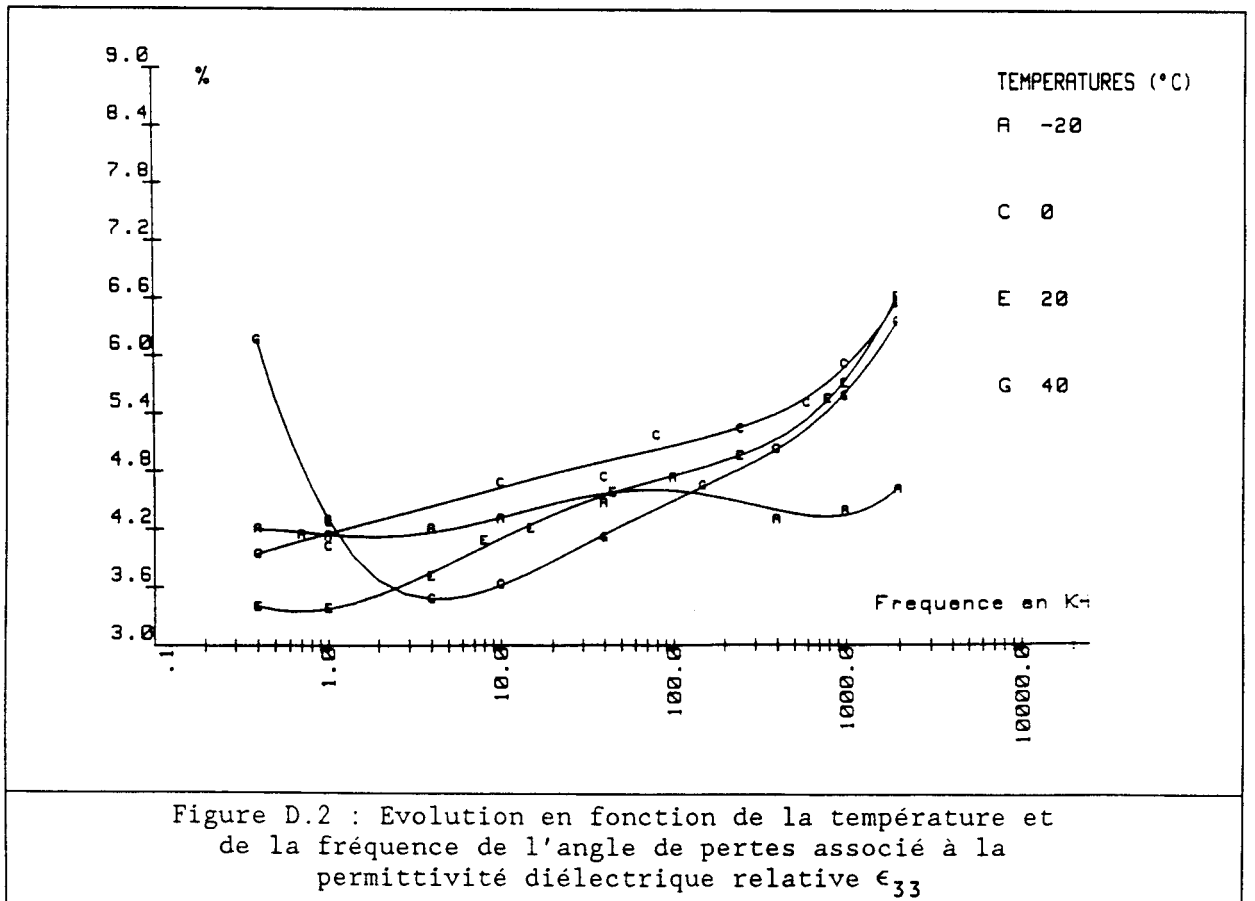
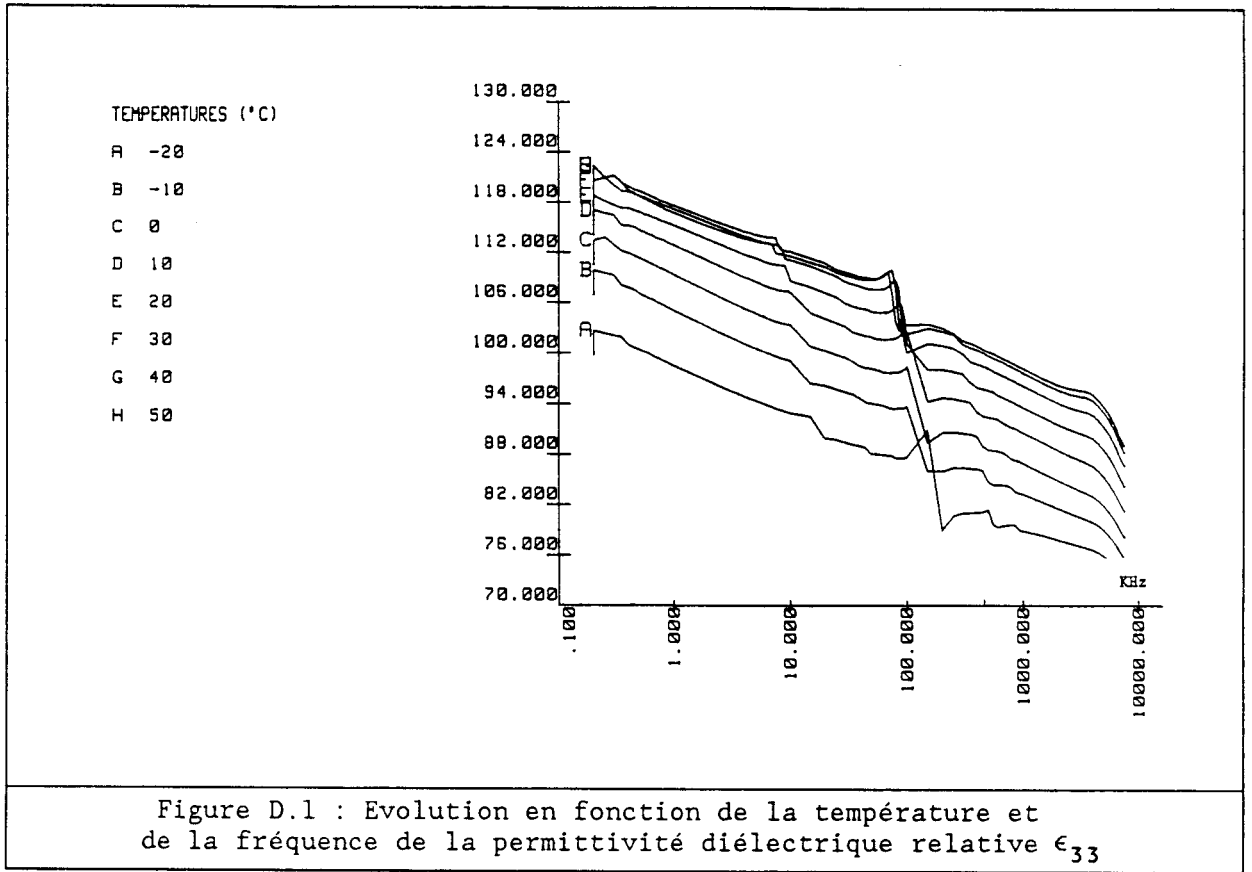
$$Q_T = \sum_{i=1}^P \frac{\Phi_i}{\Phi_{ref}} \cdot Q_i \tag{C.10}$$

C'est cette expression qui sera exploitée dans le calcul des constantes C définies aux chapitre III.1.

ANNEXE D

Caractérisation de céramiques souples
--

Cette annexe rassemble les résultats des mesures que nous avons effectuées sur des céramiques souples de masse volumique égale à 4807 kg/m^3 . Les échantillons ont été fournis par le GERDSM et sont fabriqués par la société PONS, à AUBAGNE. Ils se présentent sous des formes variées, à savoir disques, plaques et tubes. Le comportement du matériau s'apparente à celui des cristaux de classe 6mm. La procédure de caractérisation qui a été employée est celle qui a été développée pour les piézoplastiques. Les mesures ont été conduites sur une éprouvette du mode de longueur de dimensions $50 * 12.2 * 3.1\text{mm}$ et sur une éprouvette du mode d'épaisseur de dimensions $50 * 50 * 5\text{mm}$. La restriction à une seule éprouvette ne permet que l'étude en température. Pour une éprouvette donnée, la variation des constantes élastiques avec la température implique une forte dispersion des fréquences de résonance indiquée dans les légendes. Les résultats sont présentés en figures D.1 à D.10. Ils concernent des éprouvettes qui ont été stockées pendant deux ans. La comparaison effectuée avec les mesures préliminaires effectuées avant stockage a montré que le matériau vieillit assez fortement, des diminutions de l'ordre de 15% ayant été relevées sur les coefficients piézoélectriques.



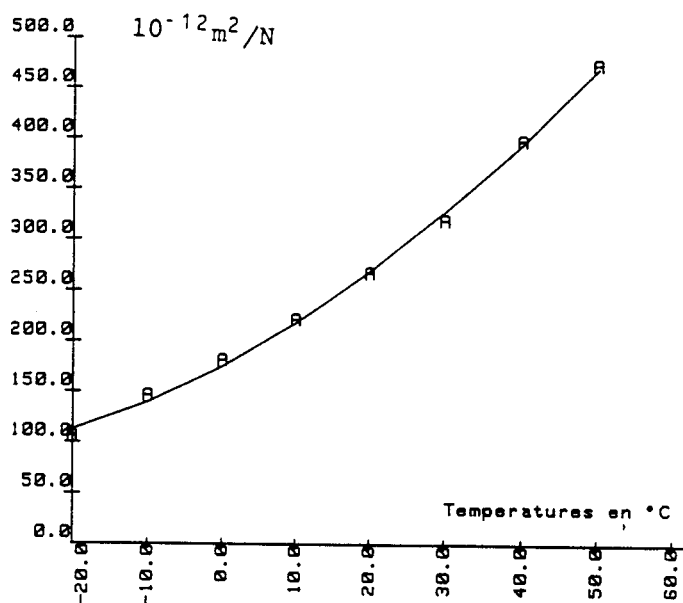


Figure D.3 : Evolution en température du coefficient de flexibilité s_{11}^E ($7\text{KHz} < f < 14\text{KHz}$)

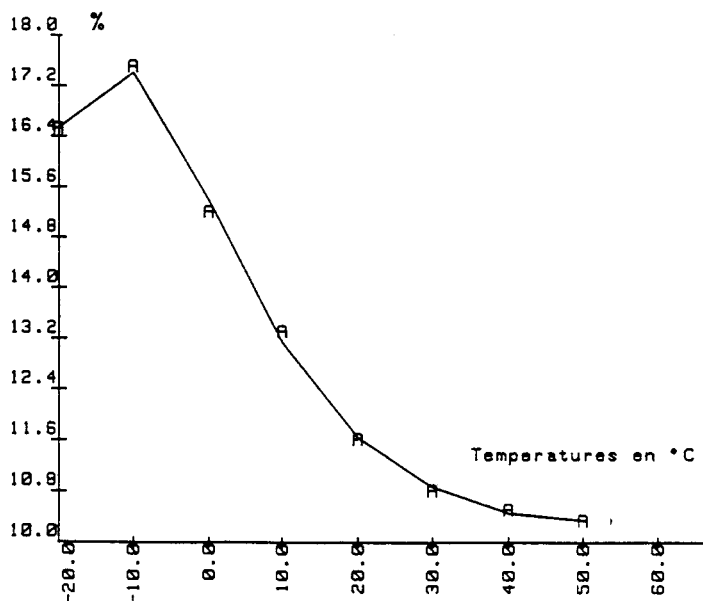


Figure D.4 : Evolution en fonction de la température de l'angle de pertes associé au coefficient de flexibilité s_{11}^E . ($7\text{KHz} < f < 14\text{KHz}$)

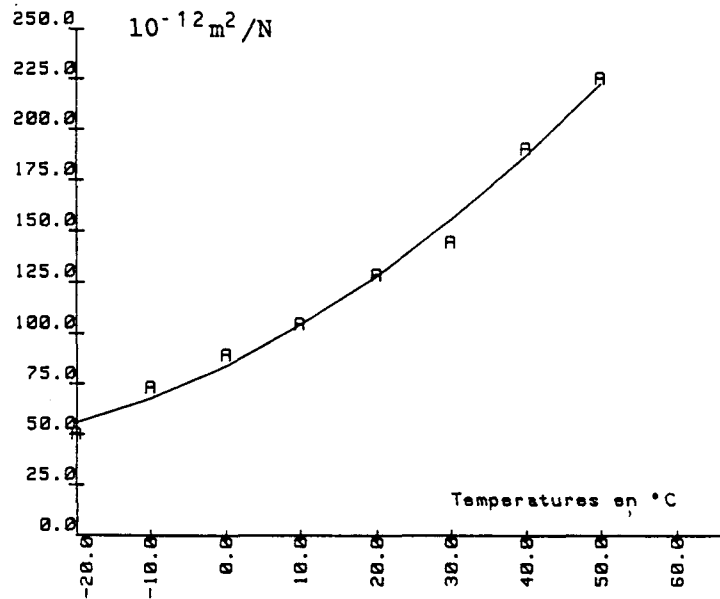


Figure D.5 : Evolution en fonction de la température du coefficient de flexibilité s_{12}^E . ($7\text{KHz} < f < 65\text{KHz}$)

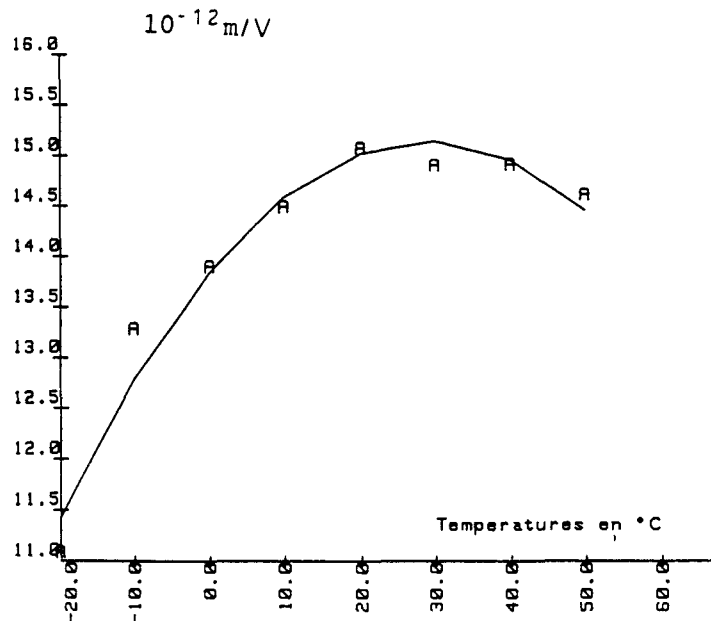


Figure D.6 : Evolution en fonction de la température du coefficient piézoélectrique d_{31} . ($7\text{KHz} < f < 14\text{KHz}$)

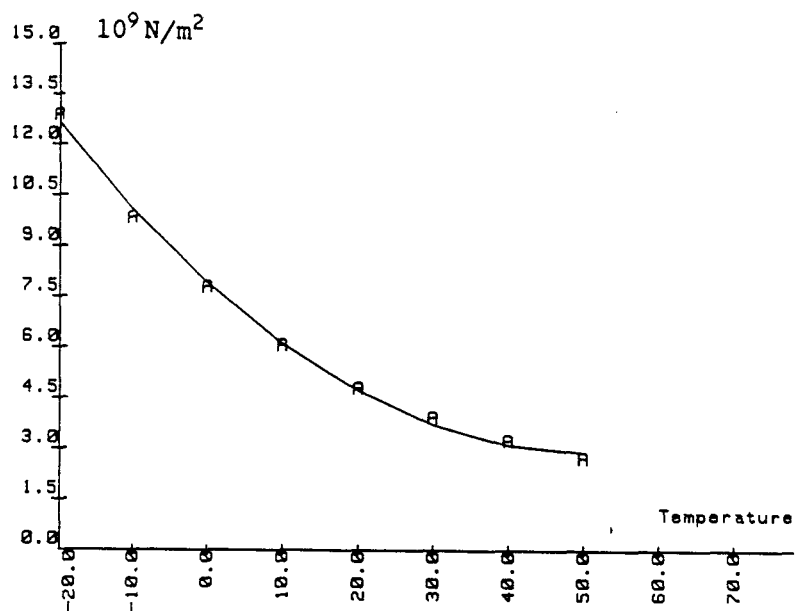


Figure D.7 : Evolution en fonction de la température du coefficient de rigidité C_{33}^0 . ($75\text{KHz} < f < 164\text{KHz}$)

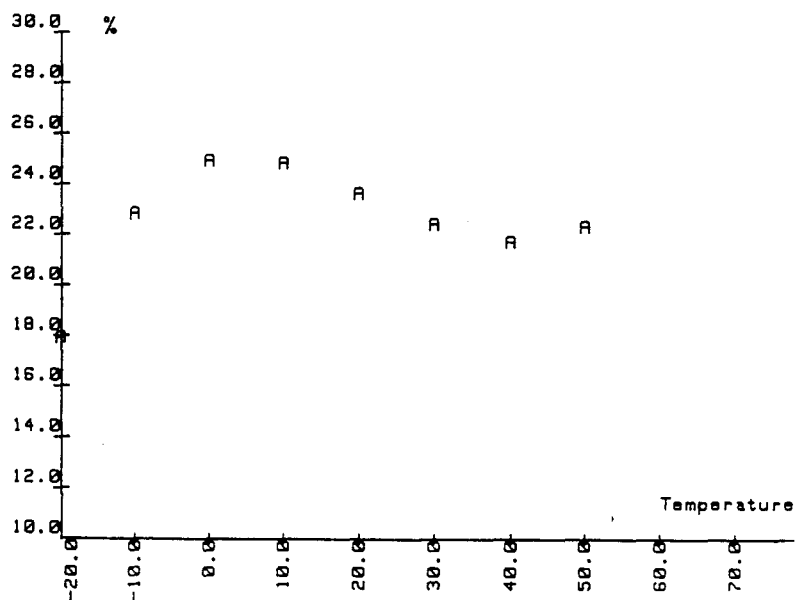


Figure D.8 : Evolution en fonction de la température de l'angle de pertes associé au coefficient de rigidité C_{33}^0 . ($75\text{KHz} < f < 164\text{KHz}$)

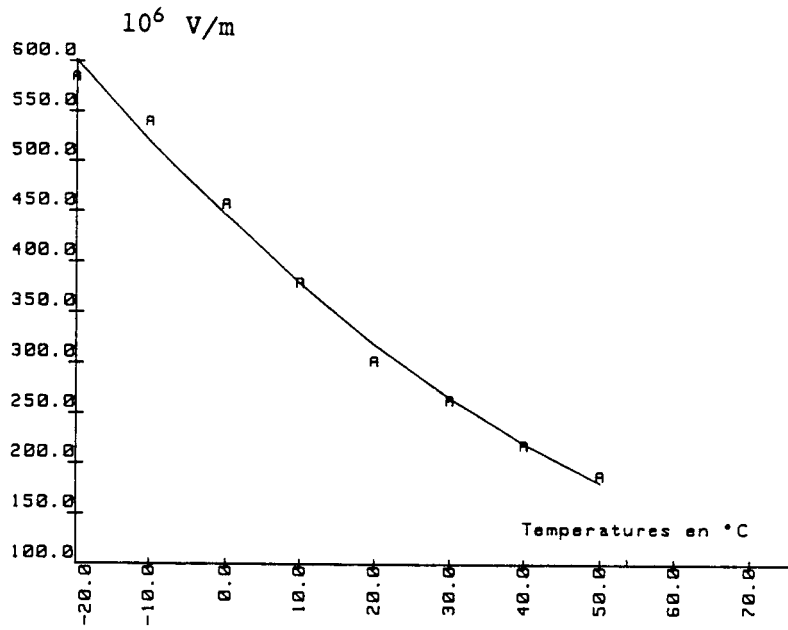


Figure D.9 : Evolution en fonction de la température du coefficient piézoélectrique h_{33} . ($75\text{KHz} < f < 164\text{KHz}$)

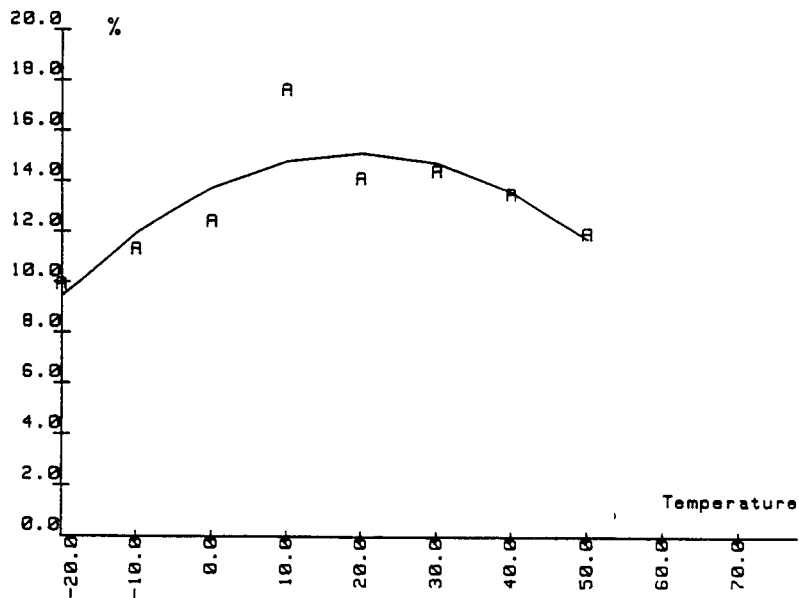


Figure D.10 : Evolution en fonction de la température de l'angle de pertes associé au coefficient piézoélectrique h_{33} . ($75\text{KHz} < f < 164\text{KHz}$)

ANNEXE E

Le mode de largeur

Dans cette annexe, sont rassemblés les résultats de modélisation par éléments finis des modes de vibration selon la largeur d'une plaque rectangulaire piézoélectrique. L'influence des pertes mécaniques et du rapport de la longueur sur la largeur sont successivement étudiés. On montre que le critère de déformation plane est difficile à atteindre.

E.1 INFLUENCE DES PERTES MECANIQUES

Les simulations ont porté sur une éprouvette ayant les dimensions suivantes : 2 cm selon le sens 1, 10 cm selon le sens 2 et 1.5 mm selon le sens 3 (figure E.1). Le tenseur utilisé (tableau E.2) est celui d'un matériau présentant des caractéristiques proches de celle du PVDF, avec notamment un coefficient piézoélectrique d_{31} beaucoup plus élevé que le coefficient d_{32} .

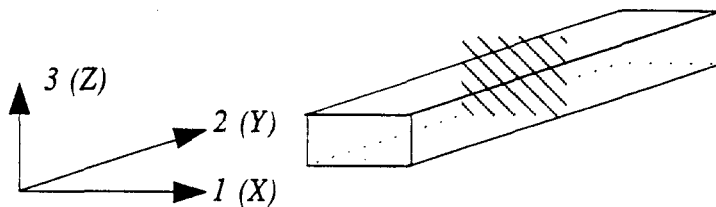


Figure E.1 : description du système modélisé :
le plan de coupe représente le plan dans lequel
les modélisations bidimensionnelles sont effectuées

0.00000E+00	0.00000E+00	0.15700E+04	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00
0.29000E-09	-0.13000E-09	-0.13000E-09	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00
-0.13000E-09	0.30000E-09	-0.13000E-09	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00
-0.13000E-09	-0.13000E-09	0.30000E-09	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00
0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.86000E-09	0.00000E+00	0.00000E+00
0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	1.00000E-09	0.00000E+00
0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	1.00000E-9
0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.10000E-10	0.00000E+00
0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00	0.20000E-11	0.00000E+00	0.00000E+00
0.20000E-10	0.30000E-11	-0.30000E-10	0.00000E+00	0.00000E+00	0.00000E+00
0.71000E-10	0.00000E+00	0.00000E+00			
0.00000E+00	0.88500E-10	0.00000E+00			
0.00000E+00	0.00000E+00	0.10600E-09			

Tableau E.2 : tenseurs utilisés dans les simulations, respectivement $[s^E]$, $[d]$, $[\epsilon^T]$

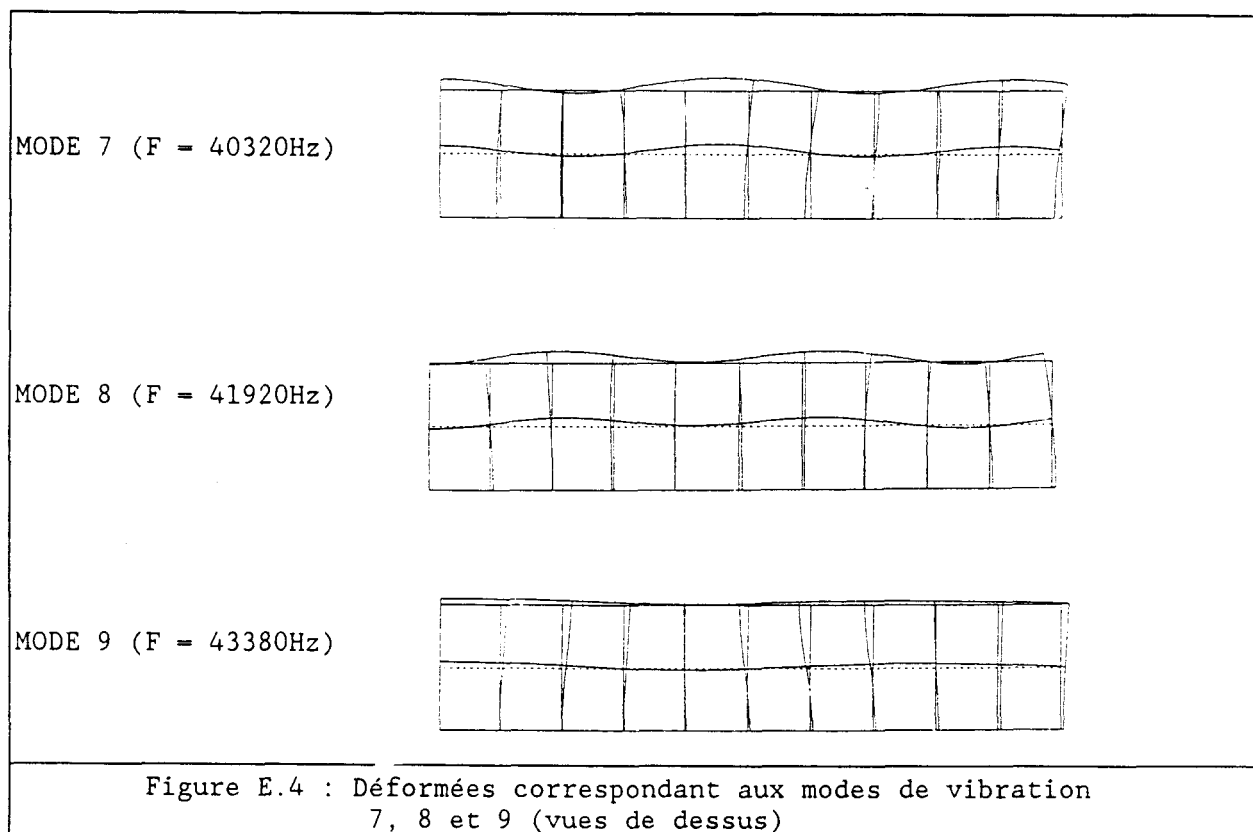
Les modes analysés sont les modes de largeur, c'est à dire les modes de vibration qui se développent selon la direction 1. La modélisation des modes de vibration est d'abord conduite pour une coupe normale à la direction 2, à l'aide d'un critère de déformation plane. Ce critère revient à modéliser les déformations d'un barreau dont la dimension dans la direction 2 est infinie. Il permet donc d'obtenir les résultats d'un mode largeur idéal. Le tableau E.3 donne ensuite les résultats (fréquences de résonance et d'antirésonance, coefficients de couplage associés) pour une modélisation du système réel, en trois dimensions, qu'il compare aux résultats de la modélisation du système idéal précédent.

Le mode de largeur fourni par la modélisation en deux dimensions n'est pas apparent dans la modélisation en trois dimensions. Dans la même gamme de fréquence, trois modes de déformation à couplage non nul sont cependant repérés. Les schémas visualisant leurs champs de déplacement montrent qu'ils ne respectent pas un critère de déformation plane (figure E.4). En conclusion, pour une éprouvette possédant les caractéristiques géométriques décrites ci-dessus et présentant peu de pertes, le mode de largeur ne pourrait donc pas être mesuré.

a)	F_R (Hz)	F_{AR} (Hz)	k (%)
	41240.	41530.	12.0

b)	f_R (Hz)	f_{AR} (Hz)	k (%)
1	7252.	7253.	1.6
2	21020.	21020.	0.0
3	30620.	30620.	0.0
4	31650.	31650.	0.0
5	35840.	35840.	0.0
6	37830.	37830.	0.0
7	40210.	40320.	7.0
8	41810.	41920.	7.0
9	43320.	43380.	5.0
10	45490.	45490.	0.0
11	48620.	48620.	0.0

Tableau E.3 : Comparaison des résultats obtenus a) avec un maillage à deux dimensions b) avec un maillage à trois dimensions



L'introduction de pertes mécaniques et diélectriques dans les simulations permet de modifier ces résultats de manière importante. Les angles de pertes diélectriques ont été pris égaux à 5%. La valeur des angles de pertes mécaniques associés à chaque coefficient a varié entre 1% et 10%. Les figures E.5 et E.6 représentent les conductances calculées pour plusieurs angles de pertes mécaniques, pour des simulations

bidimensionnelles et tridimensionnelles. Selon les résultats de la figure E.5, l'augmentation des pertes mécaniques tend à faire disparaître les trois modes référencés 7, 8 et 9 dans le tableau E.3. Ils semblent confondus en un mode unique à partir d'un angle de pertes voisin de 10%. Les courbes présentées en figure E.6 montrent que, même à partir d'un taux de pertes important, les bandes passantes et les amplitudes de la conductance, obtenus par des modélisations bidimensionnelles et tridimensionnelles, ne peuvent être comparées. Il est cependant possible d'effectuer un encadrement de la conductance calculée en trois dimensions pour un taux de pertes mécaniques de 10% par la conductance calculée en deux dimensions pour des taux de pertes de 12 et 15%.

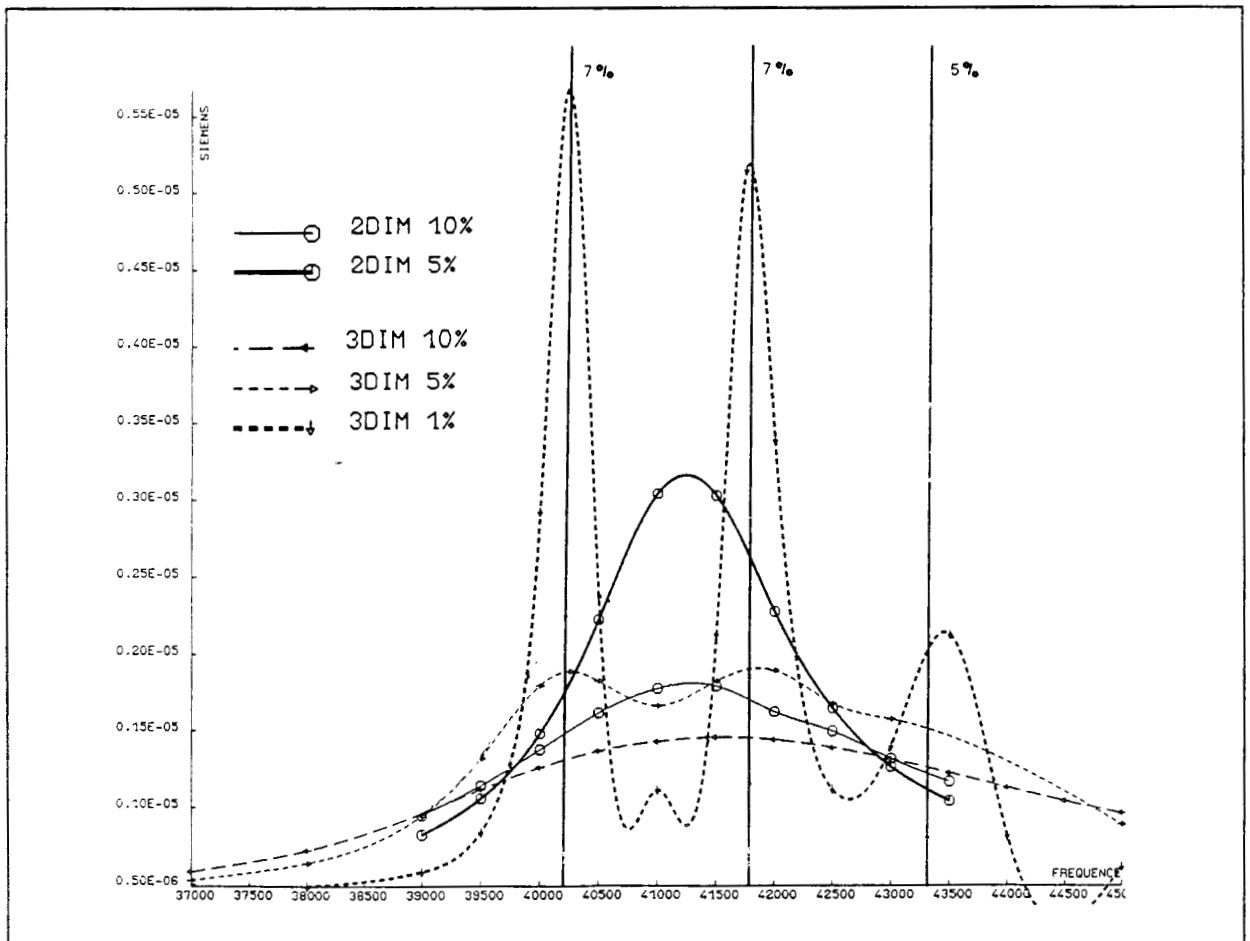
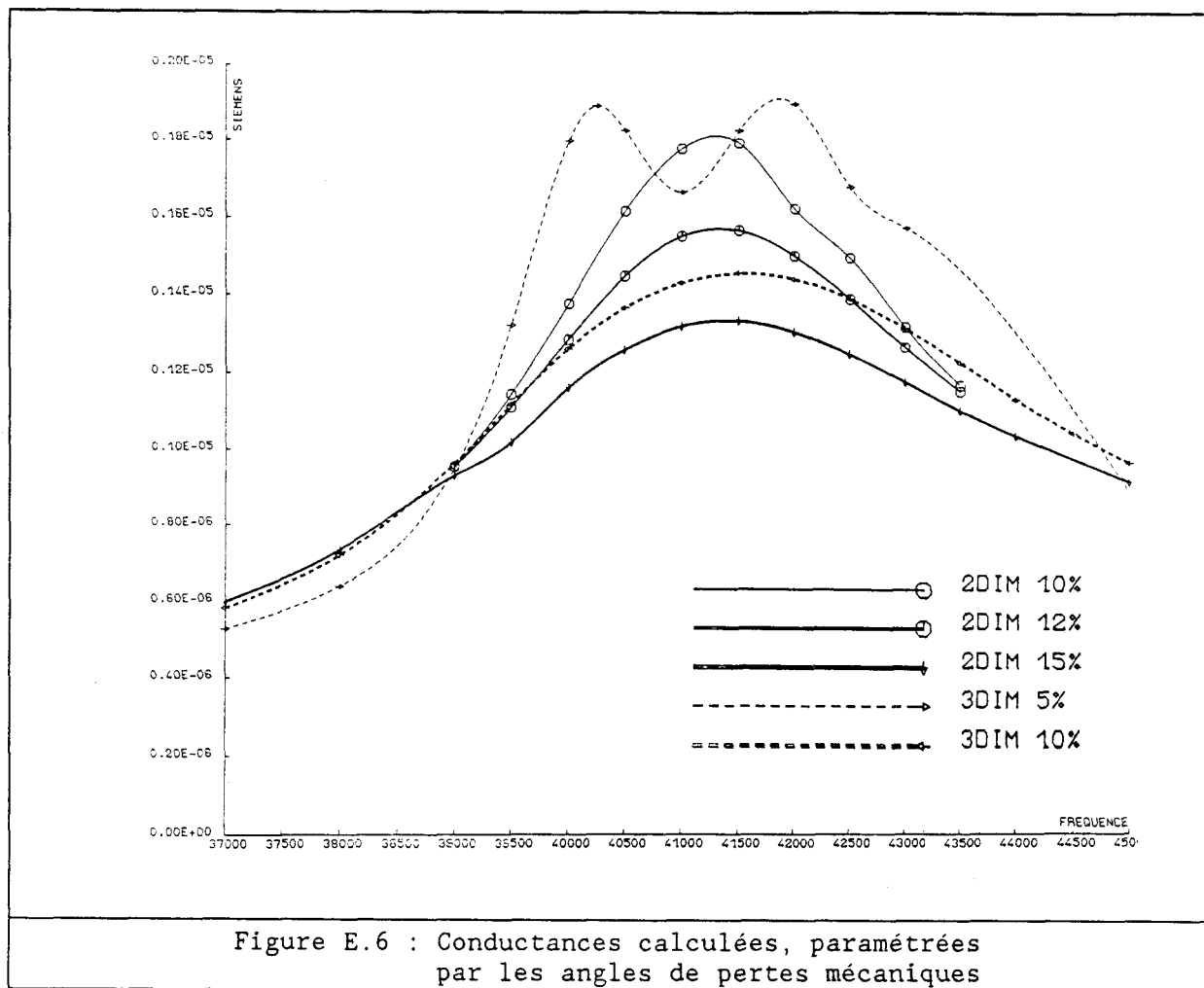
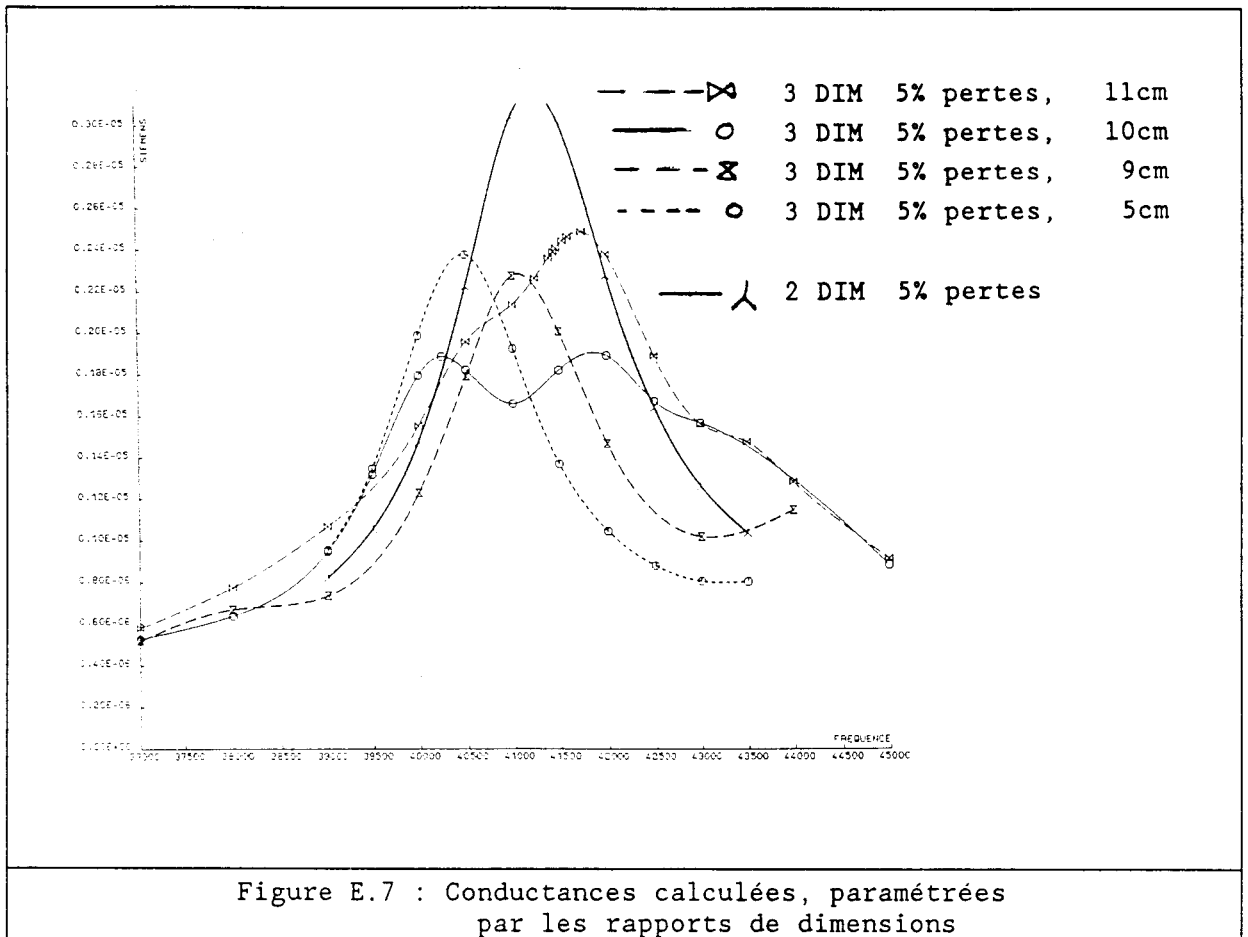


Figure E.5 : Conductances calculées, paramétrées par les angles de pertes mécaniques



E.2 INFLUENCE DU RAPPORT DES DIMENSIONS

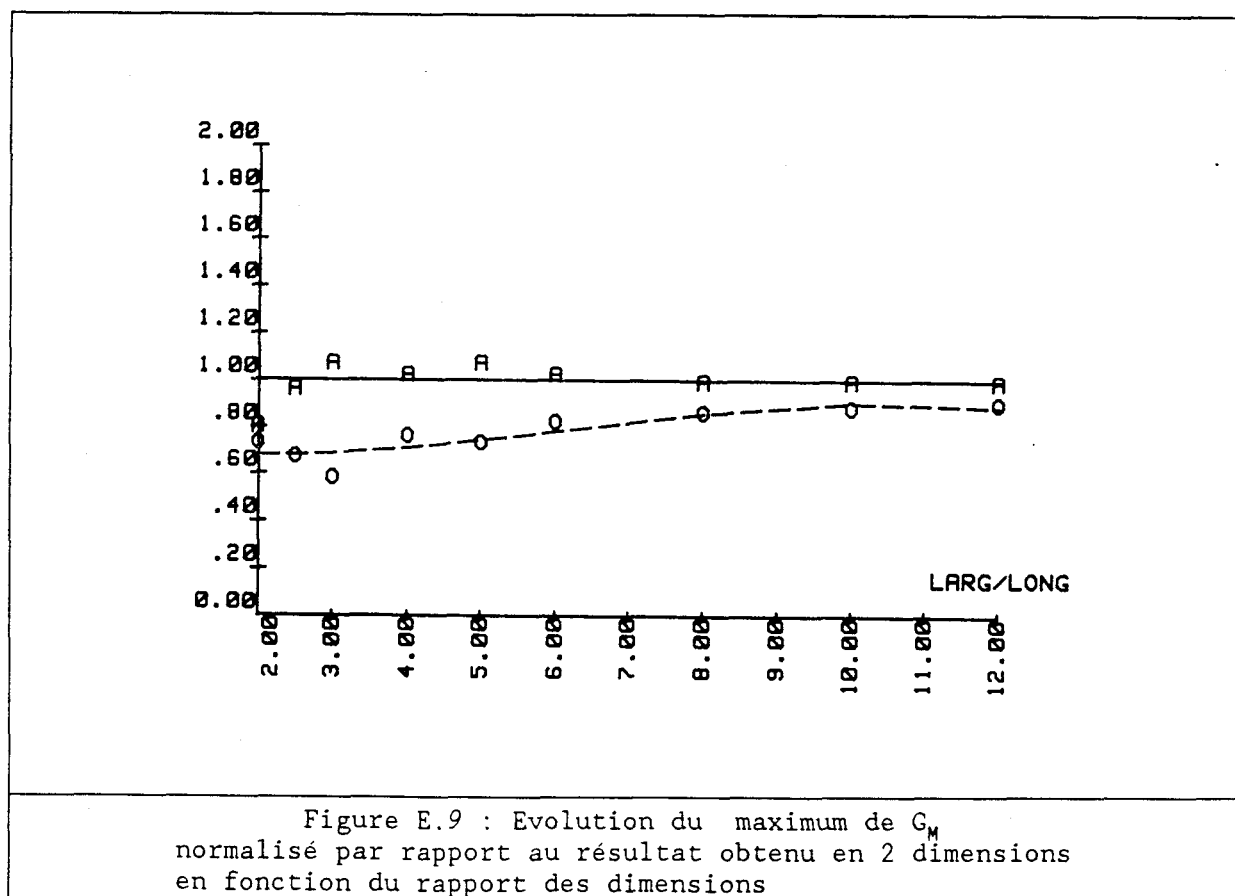
Le rapport des dimensions influence fortement les résultats obtenus. La figure E.7 représente les conductances d'éprouvettes de dimensions différentes la direction 2. Le taux de pertes mécaniques a été fixé à 5%. Pour cette valeur de l'angle de pertes, le rapport des dimensions influence non seulement l'amplitude, mais aussi la position en fréquence. Selon la valeur de ce rapport de dimensions, on peut détecter la présence de un ou plusieurs pics de résonance.



Lorsque les pertes mécaniques sont plus importantes, la conductance laisse apparaître un seul pic de résonance et l'effet de la variation du rapport des dimensions sur la fréquence est peu sensible. Par contre, l'amplitude maximum de la conductance motionnelle G_M et la bande passante à -3dB varient beaucoup. C'est ce que montrent le tableau E.8 et les figures E.9 et E.10. L'éprouvette considérée possède toujours les mêmes dimensions, la dimension selon la direction 2 étant prise comme variable. L'angle des pertes mécaniques introduit est choisi égal à 10% pour tous les coefficients de flexibilité, pour qu'une seule résonance apparaisse. Sur la figure E.9, des labels A sont inscrits. Ils représentent une correction apportée aux résultats, à savoir le maximum de G_M a été multiplié par le rapport des angles de pertes mécaniques mesurés à ceux introduits dans le calcul. On remarque que cette correction permet d'obtenir des résultats comparables à ceux d'une simulation en deux dimensions. la connaissance de l'ordre de grandeur des pertes mécaniques du matériau permettrait d'effectuer cette correction et d'exploiter plus avant le mode largeur. Par ailleurs, les rapports de dimensions 3 et 5 s'écartent un peu des courbes moyennes obtenues. Ceci est dû au fait que les harmoniques du mode longueur (selon l'axe 2) viennent perturber précisément la gamme de fréquence où se situe le mode de largeur.

Rapport de dimensions	Fréquence de Réson. en Hz	maximum de G_M en μS	angle de pertes méca. mesuré (%)
2	42000	19.6	10.9
2.5	41000	17.8	14.3
3	43000	15.6	18.5
4	42000	20.2	13.4
5	41500	19.5	14.7
6	41500	21.7	12.4
8	41500	22.9	11.5
10	41500	23.6	11.2
12	41500	24.1	11.
∞	41300	26.7	10

Tableau E.8



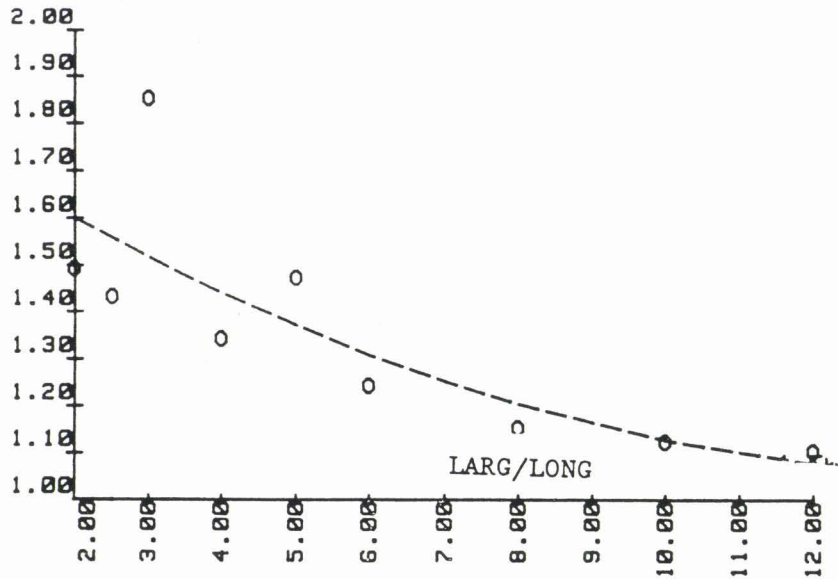


Figure E.10 : Evolution de l'angle des pertes mécaniques mesuré (normalisé à l'angle de pertes introduit) en fonction du rapport des dimensions

En conclusion, le critère de déformation plane est rarement respecté dans la pratique, puisque le rapport de dimensions minimum nécessaire pour obtenir les mêmes ordres de grandeurs de la conductance est au moins de 12 pour des taux de pertes de l'ordre de 10%. Cependant, ce rapport de dimensions influençant peu la position en fréquence des résonances, l'identification des modes de largeur permet néanmoins d'obtenir une information sur les coefficients mécaniques mis en jeu.



Résumé de thèse

Les piézoplastiques et les céramiques piézoélectriques composites sont maintenant fréquemment utilisés comme éléments actifs de transducteurs. Susceptibles de remplir des créneaux complémentaires de ceux qu'occupent les céramiques, ils possèdent, par rapport à celles-ci, des propriétés assez remarquables. Toutefois, l'importance de leurs pertes internes et la faiblesse de leur coefficient de couplage électromécanique rendent leur caractérisation plus complexe que celle des céramiques.

Cette thèse apporte une contribution au développement des procédés de mesure des propriétés élastiques, diélectriques et piézoélectriques des piézoplastiques. Elle rassemble un ensemble complet de méthodes, ainsi que les résultats relatifs au Polyfluorure de Vinylidène (PVDF) qu'elles ont permis d'obtenir. Les mesures de type électrique s'appliquent à des éprouvettes de taille et de forme diverses. Elles sont associées à des techniques d'extraction des coefficients qui s'appuient sur une procédure d'ajustage, à l'aide de modèles analytiques ou encore de modélisations par éléments finis. Ces méthodes ont permis d'obtenir une caractérisation pratiquement complète des propriétés du PVDF, sur une large gamme de température ($0^{\circ}\text{C} < T < 35^{\circ}\text{C}$) et de fréquence ($100\text{Hz} < f < 400\text{KHz}$). Les méthodes de type mécanique ont été mises au point pour permettre une validation d'une partie des résultats des mesures électriques et pour prolonger la caractérisation sur un spectre de fréquence plus large, vers les basses fréquences.

Les méthodes utilisées sont aisément transposables aux autres matériaux piézoélectriques présentant des pertes internes et des phénomènes de dispersion importants. Elles ont notamment été appliquées, avec le PVDF, à une variété de céramiques composites. Enfin, ce travail met en évidence la nécessité de caractériser globalement les matériaux piézoplastiques en température et en fréquence avant toute conception de transducteurs les utilisant comme élément actif.

Mots clefs

piézoélectrique
(*piezoelectric materials*)

méthodes de mesure
(*measuring methods*)

PVF_2
(*PVDF*)

polymère
(*polymer*)

viscoélasticité
(*viscoelasticity*)

céramique composite
(*PZT-polymer composite*)