

**L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE HOUARI BOUMEDIENNE
D'ALGER**

FACULTE DES SCIENCES

THESE

Présentée pour l'obtention du titre de

DOCTEUR D'ETAT

en Sciences Physiques

Spécialité : Physique des Matériaux

Par

Nadia SAIDI AMROUN

**CONTRIBUTION A L'ETUDE DE LA CONDUCTION ELECTRIQUE DANS LE
POLYETHYLENE TEREPHTALATE, LE POLYETHYLENE BASSE DENSITE ET
LE POLYIMIDE, EN FONCTION DU CHAMP ELECTRIQUE, DE LA
TEMPERATURE ET DE LA PRESSION**

Soutenue publiquement le 27 novembre 2001, devant la commission d'examen :

N. Kesri	Professeur	U.S.T.H.B Alger	Président
M. Aoucher	Maître de Conférences	U.S.T.H.B Alger	Examineur
A. Boubakeur	Professeur	E.N.P. Alger	Examineur
Bui Aï	Directeur de Recherche	U.P.S Toulouse	Examineur
P. Destruel	Directeur de Recherche	U.P.S Toulouse	Examineur
M. Mostefa	Professeur	Université d'Oran	Examineur
M. Bendaoud	Professeur	U.S.T.H.B Alger	Directeur de thèse

REMERCIEMENTS

Ce travail a été réalisé au laboratoire des diélectriques de la Faculté des Sciences de l'USTHB, sous la direction de Monsieur le Professeur BENDAOUD, il est bien évident que je ne peux exprimer en quelques lignes, toute ma reconnaissance pour l'aide et la confiance qu'il n'a cessé de me donner durant toutes ces années passées au laboratoire.

Monsieur HOANG The Giam, Directeur de recherche au LGE de Toulouse, avec qui nous avons travaillé, m'a accueillie maintes fois dans son équipe de Haute Pression. Je tiens à lui exprimer toute ma gratitude et mes remerciements pour toute son aide.

Mademoiselle KESRI, Professeur à l'USTHB, me fait un grand honneur en acceptant de présider ce Jury, qu'elle trouve ici l'expression de ma profonde reconnaissance.

Que Monsieur AOUCHER, Maître de Conférences à l'USTHB, soit remercié pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail et pour la confiance qu'il me témoigne en acceptant de participer à ce jury de thèse.

Je tiens à remercier Monsieur BOUBAKEUR, Professeur à l'ENP, pour avoir accepté d'examiner ce travail, malgré ses multiples occupations, et venir me porter son jugement critique.

Monsieur BUI AI, Directeur de Recherche au CNRS de Toulouse, m'a fait de nombreuses remarques en examinant le manuscrit, et a accepté d'être membre de ce jury, je voudrais lui présenter mes plus vifs remerciements.

Les nombreuses discussions que j'ai eues avec Monsieur DESTRUEL, Directeur de Recherche au CNRS de Toulouse, lors de mes séjours à Toulouse, ont contribué à l'avancement de cette thèse. Je lui suis reconnaissante d'avoir consacré du temps à regarder ce travail de près et de participer à ce jury.

Mes remerciements vont également à Monsieur MOSTEFA, Professeur à l'université d'Oran, pour avoir bien voulu faire partie de ce jury et pour toutes les discussions que nous avons eues sur l'aspect théorique de ce travail.

Je ne saurais oublier Monsieur SEGUI, Directeur du LGE de Toulouse, qui m'a accueillie dans son laboratoire chaque fois que mes recherches le nécessitaient et a toujours consacré de son temps, lors de nos entrevues, malgré ses nombreuses tâches administratives.

Qu'il me soit permis de remercier Monsieur BOULANGER et Madame FOURMAUX, techniciens au LGET, pour l'aide technique qu'ils m'ont apportée.

Collègues amis et famille doivent également être remerciés pour m'avoir encouragé à conclure ce travail.

Toute ma gratitude va enfin à Monsieur SAIDI, Maître de Conférences à l'USTHB, qui m'a accompagné vers l'aboutissement de ce travail et qui m'a encouragé à aller au bout de mes idées, tant sur le plan expérimental que sur le plan théorique.

A la mémoire de mon père

A la mémoire de mon oncle M.

A mon mari et mes enfants

A ma famille

A tout ceux que j'aime

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION GENERALE	1
------------------------------	----------

CHAPITRE I

COMPORTEMENT ELECTRIQUE DES ISOLANTS SOLIDES: CAS DES POLYMERES

I. INTRODUCTION	3
II. RAPPEL DES PRINCIPALES THEORIES DE LA CONDUCTION	
ELECTRIQUE EN REGIME PERMANENT	6
II. 1. Courants limités par l'interface métal-isolant	6
II. 2. Courants régis par le volume	7
II. 2. a. Modèle de Hopping	7
II. 2. b. Modèle de Poole-Frenkel	8
II. 2. c. Modèle de conduction ionique	9
II. 3. Courants limités par la charge d'espace	11
III. LES COURANTS TRANSITOIRES	15
III. 1. Mécanisme dipolaires	16
III. 1. Réponse fréquentielle : Approximation de Hamon	19
III. 3. Injection d'homocharges à une électrode	20
III. 3. a. Diélectrique sans pièges	22
III. 3. b. Diélectrique avec pièges	25
III. 3. c. Diélectrique avec une concentration de porteurs ρ_0	27
III. 4. Polarisation aux électrodes	28
III. 4. a. Modèle de Mac Donald	28
III. 4. b. Modèle de Goffaux	29
III. 5. Modèles combinés	29
III. 5. a. Modèle de Wintle	29
III. 5. b. modèle de Lowell	35

Chapitre II

DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

I. DISPOSITIF A PRESSION ATMOSPHERIQUE	38
I. 1. Cellule de mesure	41
I. 2. Système de lecture et de régulation de la température	42
I. 3. Dispositif de pompage et d'injection de gaz	42
I. 4. Circuits d'alimentation électrique et de mesure du courant	42
II. DISPOSITIF DE HAUTE PRESSION	45
II.1. Enceinte et Générateur de pression	45
II. 2. Circuit électrique de mesure	45
III. DISPOSITIF DE METALLISATION DES ECHANTILLONS :	46
IV. PROCEDURE DE MESURE :	47

Chapitre III

LE POLYETHYLENE TEREPHTALATE (P.E.T)

I. LE MATERIAU	49
II. RESULTATS EXPERIMENTAUX	50
III. REGIME PERMANENT	55
III. 1. Effet de la température	55
III. 2. Effet du champ électrique	56
IV. REGIME TRANSITOIRE	60
V. INTERPRETATION DES RESULTATS DU REGIME TRANSITOIRE .	63
V. 1. Mouvement des charges au cours de la polarisation. $T < T_g$	63
V. 2. Mouvement des charges au voisinage de T_g et à haute température.	66
V. 3. Courants de décharge.	68
V. 4. Conclusion	71

Chapitre IV

LE POLYETHYLENE BASSE DENSITE (P.E.B.D.)

I. LE MATERIAU	73
II. RESULTATS OBTENUS EN REGIME PERMANENT	76
II. 1. Influence de la température et du champ électrique	76
II. 2. Effet de la pression	78
III. COURANT TRANSITOIRE A CHAMP FAIBLE ($F < 10\text{MV/m}$)	80
III. 1. Effet de la température sur le courant transitoire du PEBD	82
III. 2. Effet de la pression hydrostatique sur le courant transitoire	84
III. 3. Discussion	87
IV. COURANT TRANSITOIRE A CHAMP ELEVE ($F > 10\text{ MV/m}$)	88
IV. 1. Effet de la température	90
IV. 2. Effet du champ électrique	90
IV. 3. Effet de la pression	94
IV. 4. Discussion	96

Chapitre V

LE POLYIMIDE KAPTON (P.I)

I. LE MATERIAU	99
II. REGIME PERMANENT	101
II. 1. Effet de la température	102
II. 2. Effet du champ électrique	103
III. REGIME TRANSITOIRE	106
III. 1. Résultats expérimentaux	106
III. 2. Courants isochrones en fonction du champ	113
III. 3. Courants isochrones en fonction de la température	114
IV. DISCUSSION	116
IV. 1. Courants de charge : Formule empirique	116
IV. 2. Courants de décharge	121
IV. 3. Conclusion.	122

Chapitre VI

MODELISATION DES COURANTS DE DECHARGE ANORMAUX

I. CAS D'UNE REPARTITION DE CHARGE TRIANGULAIRE	123
I. 1. Equations et méthode de calcul	124
I. 2. Résultats de la simulation	125
II. CAS D'UNE REPARTITION DE CHARGE RECTANGULAIRE	127
II. 1. Résolution analytique du problème :	127
II. 1. a. Mise en équations, hypothèses simplificatrices	127
II. 1. b. Evolution de la charge d'espace	128
II. 1. c. Calcul du courant extérieur	128
II. 1. d. Etude du signe du courant	129
II. 2. Résolution numérique du système	130
II. 3. Evolution de la charge $P(t)$ et $R(t)$	130
II. 4. Profil du champ	132
II. 5. évolution du courant $I(t)$	132
II. 6. Evolution de t_i t_m et J_m avec les paramètres de calcul	134
III. COMPARAISON ENTRE L'EXPERIENCE ET LA MODELISATION	137
III. 1. Influence de la pression hydrostatique	137
III. 2. Influence de la température	139
IV. CONCLUSION	142
CONCLUSION GENERALE	143
LISTE DES SYMBOLES	147
LISTE DES ABREVIATIONS	150
LISTE DES FIGURES	151
LISTE DES TABLEAUX	155
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	157

LISTE DES SYMBOLES

α	facteur de correction compris entre 0 et 1, signifie également «proportionnel à »
β	coefficient de compressibilité
β_S	constante caractéristique de Schottky
β_{PF}	constante de Poole Frenkel
β_{FN}	constante de Fowler-Nordheim
χ_e	affinité électronique
χ_l	composante de la susceptibilité associée au processus dipolaire lent
χ	susceptibilité totale
ε	permittivité diélectrique
ε_o	permittivité diélectrique du vide
ε_r	permittivité diélectrique relative
ε_{rS}	permittivité relative en basse fréquence (statique)
$\varepsilon_{r\infty}$	permittivité relative en haute fréquence
ε_r^*	permittivité complexe relative
ε_r'	partie réelle de la permittivité diélectrique relative
ε_r''	partie imaginaire de la permittivité diélectrique relative
ϕ_o	barrière de potentiel en champ nul
ϕ_t	profondeur des pièges
$\Delta\phi$	abaissement de barrière de potentiel
γ	facteur numérique de correction
Γ	fonction eulérienne de deuxième espèce
λ	distance entre deux sites
μ, μ_n, μ_p	mobilité des porteurs de charge, des électrons et des trous
μ_d	moment dipolaire
ν	fréquence de vibration de l'ion
θ	rapport des charges libres aux charges piégées
ρ	densité de charge d'espace
σ	conductivité en courant continu.

τ	temps de relaxation
τ_c	temps de relaxation le plus probable
τ_m	temps de relaxation moyen
ω	pulsation du champ appliqué
C_o	capacité géométrique de l'échantillon
d	épaisseur de l'isolant
D	déplacement électrique
e	charge de l'électron
E	niveau d'énergie des pièges
E_J	hauteur de la barrière de potentiel
E_F	niveau d'énergie de Fermi
f	fréquence du champ électrique
F	champ électrique
F_a	champ à l'anode
F_c	champ à la cathode
$I(t)$	courant en fonction du temps
I_c, I_d	courant de charge et de décharge
I_a, I_r	courant d'absorption et de résorption
I_p	courant permanent
j	nombre imaginaire
J	densité de courant
J_S	densité de courant de Schottky
J_{PF}	densité de courant de Poole-Frenkel
J_{FN}	densité de courant de Fowler-Nordheim
k	constante de Boltzmann
n, n_t	concentration de porteurs libres et piégés
n_o, n_{to}	concentration initiale de porteurs libres et piégés
N_c	densité d'état
N_t	densité de pièges
N	densité de charge d'espace positive

P	polarisation électrique
P_S, P_∞	polarisation à saturation et polarisation induite
P_μ	polarisation dipolaire
P_l	composante dipolaire lente de la polarisation
S	surface de l'électrode
Q	charge totale par unité de surface
q	charge ponctuelle
R_p	résistance de protection
T	température absolue
T_1	température de Mott
T_C	température caractéristique
t	variable temps
V	tension ou potentiel électrique
V_A, V_C	potentiel de l'anode et de la cathode
V_{TFL}	tension correspondant au remplissage de tous les pièges
V_i^*	volume critique requis pour le transport des ions
V_f	volume libre
W	énergie de dissociation ionique
W_{ex}	énergie d'extraction
x	variable position

LISTE DES ABREVIATIONS

ADC	Anomalous Discharge Current
CE	charge d'espace
CLCE	courant limité par charge d'espace
DRS	Dielectric Relaxation Spectroscopy
HT	haute tension
HP	haute pression
IFDC	Isothermal Final Discharging Current
PAI	polyamide-imide
PE	polyéthylène
PEBD	polyéthylène basse densité
PET	polyéthylène téréphtalate
PI	polyimide
PRC	polyéthylène réticulé chimiquement
PVC	polychlorure de vinyle
PVDF	polyfluorure de vinylidène (polyvinylidene fluoride)
SCLC	Space Charge Limited Current
TFL	Trap Filled Level
TSC	Termally Stimulated Current

LISTE DES FIGURES

- I-1 :** Ensemble échantillon – électrodes planes
- I-2 :** Courant de charge en fonction du temps
- I-3 :** Courants de charge et de décharge en fonction du temps
- I-4 :** Configuration des bandes d'énergie à l'interface métal-isolant
- I-5 :** L'effet Poole-Frenkel
- I-6 :** Potentiel cristallin avec et sans champ appliqué.
- I-7 :** Vue schématique du transport des ions dans la théorie du volume libre
- I-8 :** Représentation des homocharges (a) et des hétérocharges (b)
- I-9 :** Caractéristiques densité de courant-tension dans le cas des CLCE
- I-10 :** Illustration des principaux effet pouvant causer la décroissance du courant
- I-11 :** Courant dans le cas d'une distribution de temps de relaxation
- I-12 :** Courant dû au déplacement d'un feuillet de faible charge (sans pièges)
- I-13 :** Courant dû au déplacement d'une charge importante (sans pièges)
 $J/2J_0$ en fonction de t/t_0
- I-14 :** Courants transitoires pour $\rho = 0$ et différents temps de piégeage τ^*
 (de haut en bas $\tau^* = \infty, 4, 1, 0.5, 0.25$ et 0.025)
- I-15 :** Excès de courant dans le cas sans pièges et différentes valeurs de ρ^*_0
- I-16 :** Evolution du profil de F^* dans le cas linéaire avec $\varepsilon_S = 3.5, \chi_I = 1$.
- I-17 :** Densité de courant $|J|$ dans le cas linéaire avec $\varepsilon_S = 3.5, \chi_I = 1$ et $\tau = 1$.
- I-18 :** Densité de courant en fonction du temps dans le cas non linéaire ($F_0^* = 0.1$)
- I-19 :** Représentation de charges piégées (A, C) et de sites vides (B, D)
 dans un polymère linéaire amorphe
- II-1 :** Schéma synoptique du dispositif expérimental.
- II-2 :** Schéma en coupe de la cellule de mesure
- II-3 :** Générateur de pression à deux étages
- II-4 :** Structure des échantillons métallisés
- II-5 :** Procédure expérimentale.
- II-6 :** Principe de mesure du courant
- III-1 :** Formule chimique du PET
- III-2 :** Courants de charge à $T = 40^\circ\text{C} < T_g$
- III-3 :** Courants de charge à $T = 60^\circ\text{C} < T_g$
- III-4 :** Courants de charge à $T = 80^\circ\text{C} < T_g$

- III-5 : Courants de charge à $T = 100^{\circ}\text{C} > T_g$
- III-6 : Courants de charge à $T = 140^{\circ}\text{C} > T_g$
- III-7 : Courants de décharge à $T = 40^{\circ}\text{C} < T_g$
- III-8 : Courants de décharge à $T = 140^{\circ}\text{C} > T_g$
- III-9 : Courants permanents : Effet de la température.
- III-10 : Courants permanents : Effet du champ électrique.
- III-11 : Courants permanents : Effet du champ électrique.
- III-12 : Courants permanents : Effet du champ électrique.
- III-13 : Courants isochrones à $t = 100\text{s}$ et $T = 40^{\circ}\text{C}$ en fonction du champ électrique.
- III-14 : Courants d'absorption et de résorption à $T = 40^{\circ}\text{C}$ et $F = 24\text{MV/m}$.
- III-15 : Courants d'absorption et de résorption à $T = 40^{\circ}\text{C}$ et $F = 72\text{MV/m}$.
- III-16 : Courants d'absorption et de résorption à $T = 80^{\circ}\text{C}$ et $F = 24\text{MV/m}$
- III-17 : ε'' en fonction de f : mesures effectuées au pont d'impédance par Neagu et al [8]
- III-18 : Courbes déduites des courants d'absorption par la méthode de Hamon
- III-19 : Courant transitoire limité par charges d'espace à $T = 100^{\circ}\text{C}$ et $F = 56\text{MV/m}$.
- III-20 : Courant de décharge calculé en présence de charges d'espace.
- III-21 : Comparaison entre les courants de décharge calculés et mesurés.

- IV-1 : Schéma d'une chaîne de polyéthylène
- IV-2 : Texture des grandes classes de polyéthylènes.
- IV-3 : Courants permanents : Effet de la température.
- IV-4 : Courants permanents : Effet du champ électrique.
- IV-5 : Courants permanents : Effet du champ électrique.
- IV-6 : Courants permanents à $T = 35^{\circ}\text{C}$ et $F = 15,3 \text{ MV/m}$: Effet de la pression.
- IV-7 : Courants de charge à $F = 6.3\text{MV/m}$: Effet de la température.
- IV-8 : Courants de décharge à $F = 6.3\text{MV/m}$: Effet de la température.
- IV-9 : Courants d'absorption et de résorption à $F = 6.3\text{MV/m}$ et $T = 40^{\circ}\text{C}$
- IV-10 : Courants d'absorption et de résorption à $F = 6.3\text{MV/m}$ et $T = 75^{\circ}\text{C}$
- IV-11 : Temps de relaxation $\tau(\text{s})$ en fonction de $1000/T$ à $F = 6.3\text{MV/m}$
- IV-12 : Courants de charge à $F = 2.7\text{MV/m}$, $T = 25^{\circ}\text{C}$: Effet de la pression.
- IV-13 : Courants d'absorption à $F = 2.7\text{MV/m}$, $T = 25^{\circ}\text{C}$ et $P = 1$ à 2500bars
- IV-14 : Courants d'absorption et de résorption à $F = 2.7\text{MV/m}$, $T = 25^{\circ}\text{C}$ et $P = 2000\text{bars}$
- IV-15 : Temps de relaxation τ en fonction de la pression à $F = 2.7 \text{ MV/m}$.
- IV-16 : Courants de charge à $F = 18.9\text{MV/m}$: Effet de la température.
- IV-17 : Courants de décharge à $F = 18.9\text{MV/m}$: Effet de la température.
- IV-18 : Courants de charge à $F = 22.5\text{MV/m}$: Effet de la température.

- IV-19 :** Courants de décharge à $F = 22.5\text{MV/m}$: Effet de la température.
- IV-20 :** Courants de charge à $T = 40^\circ\text{C}$: Effet du champ.
- IV-21 :** Courants de charge à $T = 75^\circ\text{C}$: Effet du champ.
- IV-22 :** Courants de décharge à $T = 75^\circ\text{C}$: Effet du champ.
- IV-23 :** Courants de charge à $F = 15.3\text{MV/m}$ et $T = 35^\circ\text{C}$: Effet de la pression.
- IV-25 :** Variation de la mobilité μ avec le champ F à partir des mesures de t_p et de l'hypothèse de SCLC.
-
- V-1 :** Formule chimique du polyimide Kapton
- V-2 :** Courants en fonction de $1000 / T$
- V-3 :** Courants en fonction de la racine carrée du champ
- V-5 :** Courants de charge à $T = 100^\circ\text{C}$: Effet du champ.
- V-6 :** Courants de décharge à $T = 100^\circ\text{C}$: Effet du champ.
- V-7 :** Courants de charge à $T = 120^\circ\text{C}$: Effet du champ.
- V-8 :** Courants de décharge à $T = 120^\circ\text{C}$: Effet du champ.
- V-9 :** Courants de charge à $T = 160^\circ\text{C}$: Effet du champ.
- V-10 :** Courants de décharge à $T = 160^\circ\text{C}$: Effet du champ.
- V-11 :** Courants de charge à $T = 180^\circ\text{C}$: Effet du champ.
- V-12 :** Courants de décharge à $T = 180^\circ\text{C}$: Effet du champ.
- V-13 :** Courants de charge à $F = 64\text{MV/m}$: Effet de la température.
- V-14 :** Courants d'absorption à $T = 100^\circ\text{C}$: Effet du champ.
- V-15 :** Courants « d'absorption » à $T = 180^\circ\text{C}$: Effet du champ.
- V-16 :** Courants isochrones de décharge en fonction du champ à 100°C .
- V-17 :** Courants isochrones de décharge en fonction du champ à 180°C .
- V-18 :** Courants isochrones de décharge en fonction de T à $t = 500\text{s}$
- V-19 :** Courants isochrones de décharge en fonction de T à $t = 1000\text{s}$.
- V-20 :** Courbe $J_\infty = 1,8.10^{-4} \text{ A/m}^2$, $A = 2.10^{-4} \text{ As/m}^2$, $B = 1,4.10^{-4} \text{ A/m}^2$, $\theta = 1,1.10^3 \text{ s}$ et $n = 1$).et points expérimentaux ($T = 180^\circ\text{C}$ et $F = 64\text{MV/m}$)
- V-21 :** Courants calculés (—) et courants expérimentaux (o) pour différents champs
- V-22 :** Courants calculés (—) et courants expérimentaux (o) à différentes températures
- V-23 :** Courant de décharge moyen normalisé à $J(1\text{s})$ à $T = 100^\circ\text{C}$.
- V-24 :** Courant de décharge moyen normalisé à $J(1\text{s})$ à $T = 180^\circ\text{C}$.
- V-25 :** Courants normalisés J / J_0 en fonction de t / t_0 pour $T = 100^\circ\text{C}$ et $T = 180^\circ\text{C}$
-
- VI-1 :** Courants calculés pour quelques valeurs de p_0/n_0 et $\mu n = 2 \mu p = 10^{-14} \text{ m}^2/\text{Vs}$
- VI-2 :** Répartition de la charge d'espace dans l'isolant au cours du temps.

- VI-3 :** Profil du champ électrique dans l'isolant au cours du temps.
- VI-4 :** Evolution de la concentration de charge $P(t)$ et de sa position $R(t)$
- VI-5 :** Evolution du front de charge $P(R)$ au cours du temps.
- VI-6 :** Evolution des champs $F_o(t)$ $F_r(t)$ et $F_d(t)$ l'instant où $F_d = F_o = -F_r$
- VI-7 :** Courants de décharge calculés pour des valeurs de N de 10^{14} à 10^{17}em^{-3}
- VI-8 :** Courants de décharge calculés pour des valeurs de μ de 10^{-12} à $10^{-9} \text{m}^2/\text{Vs}$
- VI-9 :** Variation de t_j et t_m avec la concentration N
- VI-10 :** Variation de J_m avec la mobilité N
- VI-11 :** Variation de t_j et t_m avec la mobilité μ
- VI-12 :** Variation de J_m avec la mobilité μ
- VI-13 :** variation de t_j et t_m en fonction de λ à différentes pressions
- VI-14 :** variation de J_m en fonction de λ à différentes pressions
- VI-15 :** Variation de la mobilité μ en fonction de la température [11].
- VI-16 :** Variation de $t_{j \text{ théo.}}$, $t_{j \text{ exp.}}$, $t_{m \text{ théo.}}$ et $t_{m \text{ exp.}}$ en fonction de $1000/T$
- VI-17 :** Variation de $J_{m \text{ théo.}}$ et $J_{m \text{ exp.}}$ en fonction de $1000/T$

LISTE DES TABLEAUX

I-1 :	Expressions des densités de courants limités par charges d'espace
III-1 :	Caractéristiques physiques du PET
III-2 :	Valeurs de la distance de saut λ en fonction de la température.
III-3 :	Valeurs expérimentales et théoriques des rapports selon le modèle SCLC
IV-1 :	Caractéristiques du polyéthylène PEBD
IV-2 :	Energie d'activation en fonction du champ électrique
IV-3 :	Variation des paramètres λ , ε_r et ϕ_o avec la pression à 35°C et 15.3MV/m
IV-4 :	Temps de relaxation τ en fonction de la pression à $T = 25^\circ\text{C}$.
IV-5 :	Variation de t_i , t_m , J_m et $J(0)$ avec la température pour $F = 22.5\text{MV/m}$.
IV-6 :	Variation de t_i , t_m et J_m avec le champ électrique à $T = 75^\circ\text{C}$.
IV-7 :	Variation de t_i et t_m et J_m avec la pression.
V-1 :	Principales caractéristiques du Kapton.
V-2 :	Valeurs de α en fonction de la température
V-3 :	Paramètres de calcul pour chaque champ.
V-4 :	Paramètres de calcul pour chaque température
VI-1 :	Comparaison entre les valeurs expérimentales et théoriques de J_o , t_i , t_m et J_m

INTRODUCTION GENERALE

Les polymères synthétiques sont largement utilisés dans l'industrie électrique en raison de leurs performances mécaniques, leur bonne tenue électrique, leur facilité de mise en oeuvre et leur faible coût. Ils servent dans l'isolation des bobines de transformateurs, des barres d'alternateurs, des câbles de transport d'énergie, dans la fabrication des condensateurs, l'enrobage des composants électroniques etc. Cependant, malgré ces excellentes qualités, il subsiste jusqu'à présent des problèmes liés au comportement de ces matériaux à température élevée et à haut champ : des charges électriques peuvent être injectées du métal vers l'isolant, alors que d'autres charges sont susceptibles de prendre naissance dans le volume du matériau par dissociation ionique sous l'effet combiné du champ et de la température. Ces charges, lorsqu'elles sont gênées dans leur déplacement, s'immobilisent, se concentrent dans certaines régions et constituent des charges d'espace. Le champ électrique, qui en résulte, s'ajoute au champ appliqué et leur action conjuguée entraîne un claquage prématuré de l'isolant et la détérioration du matériel électrique.

Le but de ce travail est une contribution à l'étude de la conduction électrique dans le polyéthylène téréphtalate (PET), le polyéthylène basse densité (PEBD) et le poly imide kapton (PI), en fonction du champ électrique, de la température et de la pression hydrostatique. Ces polymères sont, tous les trois utilisés en électrotechnique, mais ils ont des comportements physico-thermiques très différents : le PET présente une température de transition vitreuse à moyenne température ($T_g = 75^\circ\text{C}$), le PEBD à basse température vers -130°C et le kapton à haute température autour de 360°C .

Il s'agit dans cette étude, de déterminer, d'une part la nature des porteurs de charges responsables de la conduction électrique, et d'autre part de mettre en évidence les mécanismes qui régissent les phénomènes de conduction. La pression hydrostatique est un paramètre qui permet de savoir si la conduction est due à un mouvement d'ions ou à un déplacement d'électrons.

Dans le premier chapitre, nous rappelons les différentes théories sur la conduction électrique dans les polymères. En régime permanent, nous décrivons brièvement les mécanismes régis par l'interface métal-isolant puis ceux contrôlés par le volume. En régime transitoire, nous présentons les phénomènes de relaxation dipolaire, de relaxation de charges d'espace et d'injection d'homocharges.

Le second chapitre est consacré à la description des deux dispositifs expérimentaux que nous avons utilisés. Le premier permet d'effectuer des mesures à la pression atmosphérique en faisant varier la tension appliquée à l'échantillon de 0 à 4kV et la température du milieu ambiant de -180°C à $+250^{\circ}\text{C}$. Le second permet d'atteindre des pressions de l'ordre de 10 000 bars. Ces deux bancs, entièrement automatisés, disposent d'électromètres sensibles à des courants de 10^{-16} Ampère .

Aux chapitres III, IV, et V sont portés les résultats expérimentaux obtenus avec les trois polymères étudiés. Ces résultats sont discutés et interprétés à partir des théories exposées au premier chapitre. Une formule empirique est proposée pour traduire le comportement des courants de charge observé dans le cas du polyimide.

La modélisation des courants de décharge anormaux présentés, à haut champ, par le polyéthylène basse densité, est exposée au chapitre VI . Deux modèles qui tiennent compte de l'existence de deux types de charges d'espace, de signes différents, sont proposés :

- dans le premier on considère, à l'instant initial, deux distributions triangulaires de charges près des électrodes,
- dans le second on adopte, au moment où l'échantillon est court-circuité, une distribution rectangulaire de charges positives près de la cathode en présence de charges fixes négatives réparties dans le volume du matériau.

Chapitre I :

COMPORTEMENT ELECTRIQUE DES ISOLANTS SOLIDES: CAS DES POLYMERES

Chapitre I

COMPORTEMENT ELECTRIQUE DES ISOLANTS SOLIDES : CAS DES POLYMERES

I. INTRODUCTION

Un isolant parfait est un matériau qui ne comporte que des charges électriques liées. Lorsque les centres de gravité des charges positives et négatives coïncident le matériau ne contient pas de dipôles ; il est « apolaire ». L'action d'un champ électrique constant se traduit par un faible déplacement des charges, par rapport à leur position d'équilibre, qui entraîne la formation de dipôles : C'est la polarisation induite qui s'établit dès que le champ est appliqué.

D'autres diélectriques contiennent des molécules polaires qui forment des dipôles permanents. En raison de l'agitation thermique, ceux-ci sont orientés au hasard et le matériau n'est pas polarisé. Le champ électrique, lorsqu'il est appliqué, tend à orienter ces dipôles dans sa propre direction, il en résulte un équilibre statistique entre l'action du champ électrique et celle de la température, le diélectrique est alors polarisé. Ce phénomène constitue la polarisation dipolaire.

Ainsi l'action d'un champ électrique constant sur un diélectrique parfait se traduit par un phénomène de polarisation. Ce dernier se manifeste par un courant électrique qui, au bout d'un certain temps, finit par s'annuler : C'est le courant de polarisation. Un isolant parfait ne présente, par conséquent, aucun courant de conduction, sa conductivité électrique σ est nulle.

Les isolants réels, et les polymères en particulier, contiennent, en plus des charges liées, quelques charges libres dues à des impuretés ou issues de dissociation ionique sous l'effet de la température et du champ électrique. Ces charges d'origine intrinsèque sont appelées hétérocharges. D'autre part, sous l'action du champ, des charges peuvent être injectées à partir des électrodes, elles constituent des homocharges.

Toutes les charges libres se déplacent sous l'effet du champ, il en résulte un courant de conduction électrique.

Pour étudier ces courants de polarisation et de conduction, on place le matériau entre deux électrodes planes parallèles. L'ensemble (figure I-1) constitue un condensateur dont les armatures (électrodes) ont une surface S et sont séparées par une distance d égale à l'épaisseur de l'échantillon et nettement inférieure au diamètre des électrodes. Cela permet de présenter l'étude de ces phénomènes sous la forme d'un problème unidimensionnel. L'une des électrodes, l'anode, est portée à un potentiel positif $V_A = V$, l'autre, la cathode, est reliée à la terre $V_C = 0$.

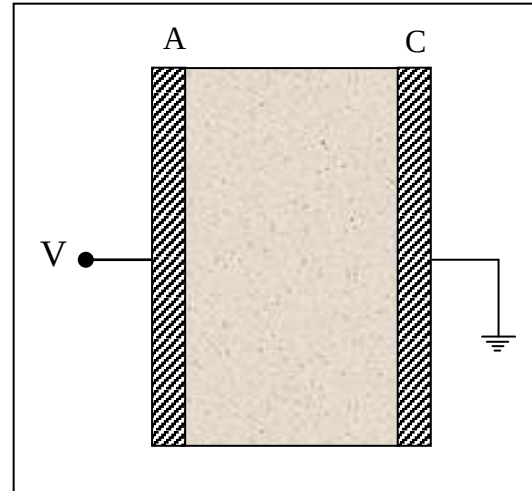


Figure I-1 :

Le courant électrique, qui circule dans le circuit extérieur, présente en général l'allure représentée sur la figure I-2. On relève un courant $I(t)$ qui décroît en fonction du temps puis à partir d'un temps t_p il se stabilise à une valeur I_p pratiquement constante.

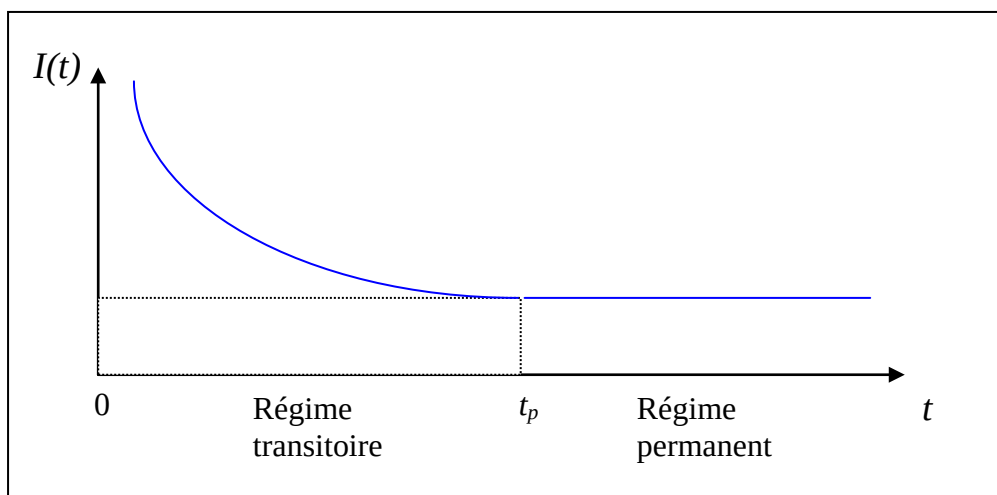


Figure I-2

On obtient alors deux régimes : Le premier qui s'étend de $t = 0$ à t_p , constitue le régime transitoire, puis au delà de t_p commence le régime permanent.

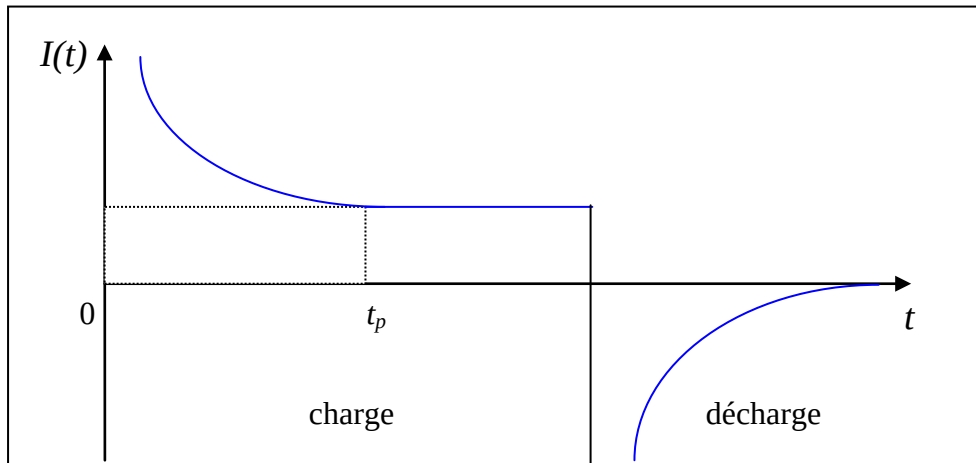


Figure I-3

Lorsque l'électrode A (fig. I-1) est portée au potentiel constant V , le courant, qui en résulte, est appelé courant de charge I_c . Le courant d'absorption

$$I_a = I_c - I_p$$

est, par définition, obtenu en retranchant du courant de charge, le courant permanent. Si on annule le potentiel V et si on court-circuite l'échantillon sur un électromètre, on relève un courant de décharge ou de résorption I_r de signe opposé à I_c .

En réalité, comme nous le verrons par la suite, les courants de charge et de décharge n'ont pas toujours l'allure représentée sur la figure I.3.

L'étude de ces phénomènes de polarisation et de conduction électrique, dans les polymères isolants, a attiré l'attention de nombreux chercheurs et une importante littérature scientifique existe à ce sujet. Le but de telles études est de connaître :

- La nature des charges ou groupements de charges responsables de ce phénomène.
- Les mécanismes régissant les mouvements de ces charges qui se produisent en régimes transitoire et permanent, dans le volume du polymère et à l'interface métal-isolant.

Divers mécanismes peuvent intervenir simultanément. Pour des raisons de commodité nous les étudions séparément en faisant intervenir le champ électrique, la température et la pression hydrostatique. Dans ce chapitre nous rappelons brièvement les principales lois de la conduction électrique en régime permanent, puis nous présentons, avec plus de détails, les phénomènes qui interviennent lors du régime transitoire.

où : $\beta_s = \sqrt{\frac{e^3}{4\pi\epsilon}}$ est la constante caractéristique de Schottky et $\phi_o = W_{ex} - \chi_e$

W_{ex} désigne le travail d'extraction et χ_e l'affinité électronique

Le parcours (c) caractérise l'effet Fowler-Nordheim. Ce mécanisme est lié au passage des porteurs de charge de l'électrode dans l'isolant par effet tunnel, c'est à dire à travers la barrière de potentiel amincie par le champ.

L'injection, par cet effet d'un électron d'une électrode plane dans le vide, à $T = 0^\circ\text{K}$ en négligeant la force image, a été étudiée par Fowler-Nordheim [2]. La densité de courant dans ces conditions s'écrit [3] :

$$J_{FN} = A F^2 \exp\left(-\frac{\beta_{FN}}{F}\right) \quad (\text{I-2})$$

où β_{FN} est la constante de Fowler-Nordheim.

Pour des températures plus élevées, le passage s'effectue, au dessous du sommet de la barrière, à un niveau dont l'énergie est supérieure à E_F (voie b). C'est l'effet Fowler-Nordheim assisté thermiquement.

Les calculs qui tiennent compte de la force image, de la permittivité diélectrique de l'isolant, et de la présence de pièges, ont été approfondis par Good et Muller [4], Coelho [5], Wilcox [6] et Wintle [7]

II. 2. Courants régis par le volume.

On considère généralement un isolant comme un semi-conducteur pourvu d'une large bande interdite de plusieurs electron-Volt. Ce « gap » correspond à l'énergie minimale nécessaire aux photons pour exciter les électrons de la bande de valence à la bande de conduction par transition directe ou indirecte.

II. 2. a. Modèle de hopping :

Dans l'approximation des champs faibles, ce mécanisme se produit entre les états localisés en énergie dans les queues de bande. Le porteur se déplace d'un site à un autre par saut assisté par phonon. En présence de champ électrique, la probabilité de saut augmente.

La théorie de Mott [8] qui concerne les états localisés au voisinage du niveau de Fermi, donne une conductivité de la forme :

$$\sigma(T) = \sigma_0 \exp\left[-(T_1/T)^{1/4}\right] \quad (\text{I-3})$$

D'après un développement de Jonscher et al [9] le champ électrique n'apparaît que dans le facteur σ_0 de l'équation (I-3)

II. 2. b. Modèle de Poole Frenkel :

L'effet Poole Frenkel résulte de l'émission d'une charge d'un piège (ou site) vers la bande de conduction ou un site voisin.

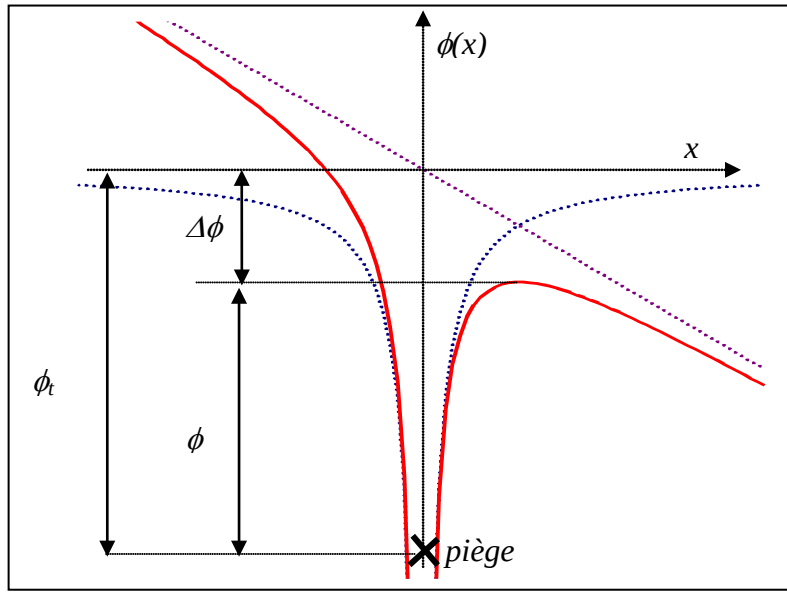


Figure I-5 : L'effet Poole-Frenkel

La figure I-5 représente le puits de potentiel associé à un centre ionisé et montre que celui-ci est déformé sous l'effet du champ appliqué F . La profondeur du puits est diminuée dans le sens de F et augmentée en sens inverse. A une distance x de l'électrode, le potentiel est :

$$V(x) = -F \cdot x - \frac{1}{4\pi\epsilon} \frac{e}{x} \quad (\text{I-4})$$

Un calcul, identique à celui effectué dans le cas de l'effet Schottky, montre que :

$$J_{PF} = e\mu F \sqrt{N_c N_t} \exp\left(-\frac{\phi_t - \beta_{PF} \sqrt{F}}{kT}\right) \quad (\text{I-5})$$

où N_c est la densité d'état des porteurs libres, N_t la densité de pièges et β_{PF} le coefficient de Poole-Frenkel: $\beta_{PF} = \sqrt{\frac{e^3}{\pi \epsilon}}$

Il est vrai que l'on admet couramment que $\beta_{PF} = 2\beta_s$. Cependant, si l'on tient compte de la position du niveau de Fermi, cette relation n'est plus valable. La preuve, le calcul effectué par Frenkel [10], en supposant le niveau de Fermi E_F à mi-chemin entre la bande de conduction et le niveau piège, donne $\beta_{PF} = \beta_s$. On considère alors de façon générale [11-14] que $\beta_{PF} = \alpha \beta_s$ avec $1 < \alpha < 2$, α étant un coefficient lié à la position du niveau de Fermi par rapport au centre piège considéré. La situation où $\alpha = 2$, correspond à un diélectrique contenant des pièges compensés par des centres accepteurs profonds.

Pour expliquer les écarts observés avec ce modèle, Taylor et al [15] supposent que le potentiel du piège n'est pas coulombien mais de la forme $\phi(x) = \frac{K e}{x^n}$ avec $n \neq 1$. Ils aboutissent, après calcul, à un courant :

$$J \propto \exp\left[\frac{\beta(n,K) F^{\frac{n}{n+1}}}{kT}\right] \quad (I-6)$$

et qui concorde mieux avec leurs résultats expérimentaux.

Plusieurs auteurs ont tenté d'améliorer le modèle de Poole-Frenkel, par exemple Adachi et al [16], Wollman [17] et Saidi [18] en tenant compte de l'interaction entre les sites.

II. 2. c. Modèle de conduction ionique :

Dans le cas d'un polymère les théories précédentes peuvent s'appliquer au cas du porteur ionique si on considère l'ion comme une charge ponctuelle qui se déplace, sous l'effet du champ électrique, dans un système de puits de potentiel d'égale profondeur et répartis uniformément comme le montre la figure I-6.

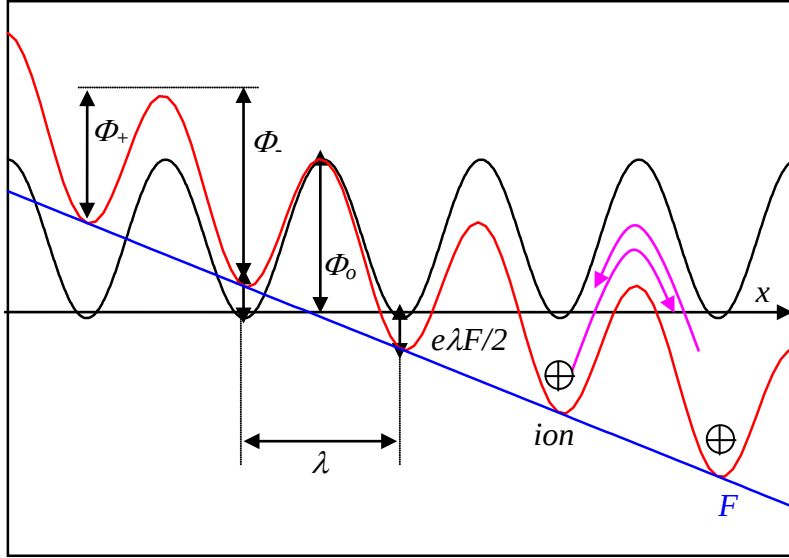


Figure I-6 : Potentiel cristallin avec et sans champ appliqué.

La densité de courant est donnée par l'expression [19]:

$$J = 2ne\lambda\nu\exp\left(-\frac{\phi_0}{kT}\right)\text{Sh}\left(\frac{eF\lambda}{2kT}\right) \quad (\text{I-7})$$

où n est la concentration des ions, ν la fréquence de vibration de l'ion, λ la distance de saut entre deux positions d'équilibre et ϕ_0 la hauteur de la barrière de potentiel à champ nul.

D'un autre coté, Miyamoto et al [20] en partant de la théorie du volume libre de Cohen et Turnbull [21] considèrent que l'ion possède un volume propre. Celui-ci ne lui permet de se déplacer que si l'arrangement des molécules et des fragments de chaîne du voisinage prennent une configuration favorable comme cela est schématisé dans la figure I-7.

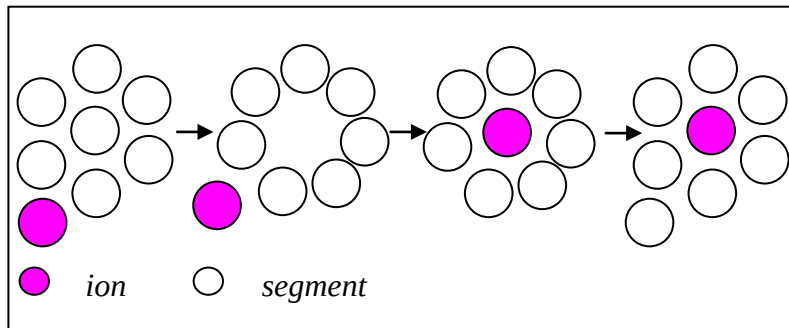


Figure I-7 : Vue schématique du transport des ions dans la théorie du volume libre

Cette théorie donne une expression de la densité de courant de la forme:

$$J = 2n_0 e \lambda \alpha \nu \exp \left[-\frac{1}{kT} \left(E_j + \frac{W}{2\varepsilon} \right) - \frac{\gamma \mathcal{V}_i^*}{V_F} \right] Sh \left(\frac{e \lambda F}{2kT} \right) \quad (\text{I-8})$$

où α est un facteur de correction compris entre 0 et 1, γ un facteur numérique de correction, $\mathcal{V}_i^*$ le volume critique requis pour le transport des ions, V_f le volume libre, E_j la hauteur de la barrière de potentiel et W l'énergie de dissociation ionique.

II. 3. Courants limités par la charge d'espace:

Lorsque la différence de potentiel, appliquée aux électrodes, est constante, le champ électrique dans le diélectrique, est uniforme. La présence d'homocharges (fig. I-8-a) dus à des porteurs injectés et d'hétérocharges (fig. I-8-b) provenant d'impuretés ou de dissociations ioniques détruisent la neutralité électrique à certains endroits et entraînent une distorsion des lignes de champ.

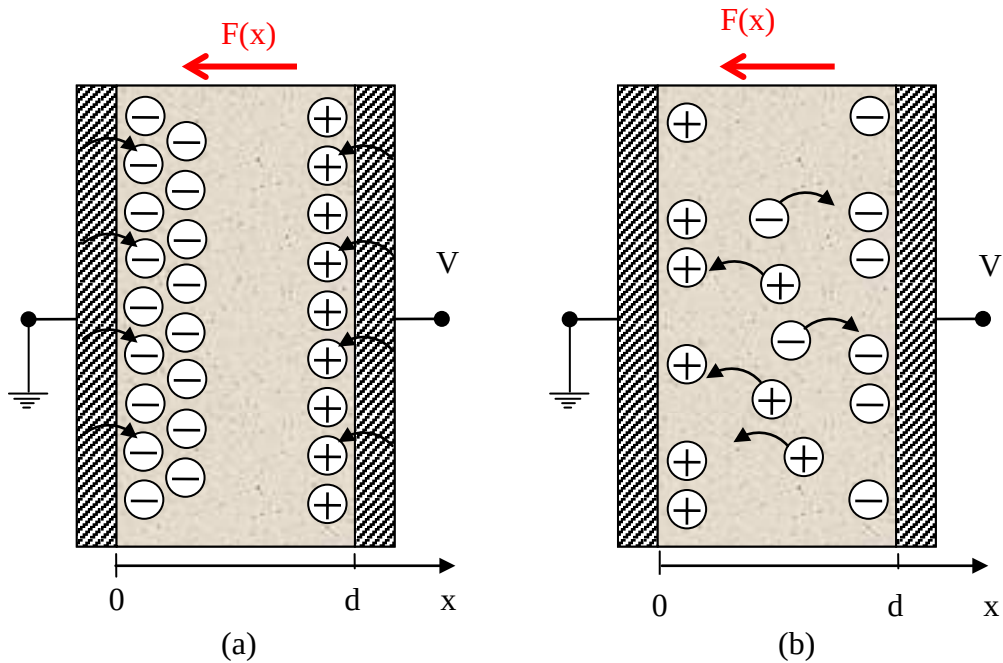


Figure I-8 : Représentation des homocharges (a) et des hétérocharges (b)

Il s'en suit que dans l'équation de Poisson, dans le cas unidimensionnel, le second membre n'est pas nul, alors :

$$\frac{\partial F(x,t)}{\partial x} = \frac{\rho(x,t)}{\varepsilon} = \frac{e}{\varepsilon} [n(x,t) - n_0 + n_t(x,t) - n_{t0}] \quad (\text{I-9})$$

où $n(x,t)$ et $n_t(x,t)$ représentent respectivement les concentrations de porteurs libres et piégés en un point d'abscisse x à un instant t alors que n_0 et n_{t0} sont les concentrations initiales correspondantes, que l'on supposera uniformes dans le volume du diélectrique. Nous envisageons dans ce qui suit, des porteurs de même signe.

En plus de l'équation de Poisson, on utilise celles qui expriment la densité de courant local $J(x,t)$ (somme des courants de conduction, de diffusion et de déplacement électrique) et la conservation de la charge électrique:

$$J(x,t) = qn(x,t)\mu F(x,t) - qD \frac{\partial n(x,t)}{\partial x} + \varepsilon \frac{\partial F(x,t)}{\partial t} \quad (\text{I-10})$$

$$\frac{\partial J(x,t)}{\partial x} = - \frac{\partial \rho(x,t)}{\partial t} \quad (\text{I-11})$$

En négligeant le courant de diffusion et en supposant la mobilité indépendante du champ électrique, les équations (I-9), (I-10) et (I-11) deviennent en régime permanent:

$$\frac{dF(x)}{dx} = \frac{\rho(x)}{\varepsilon} \quad (\text{I-12})$$

$$J(x) = q.n(x).\mu.F(x) \quad (\text{I-13})$$

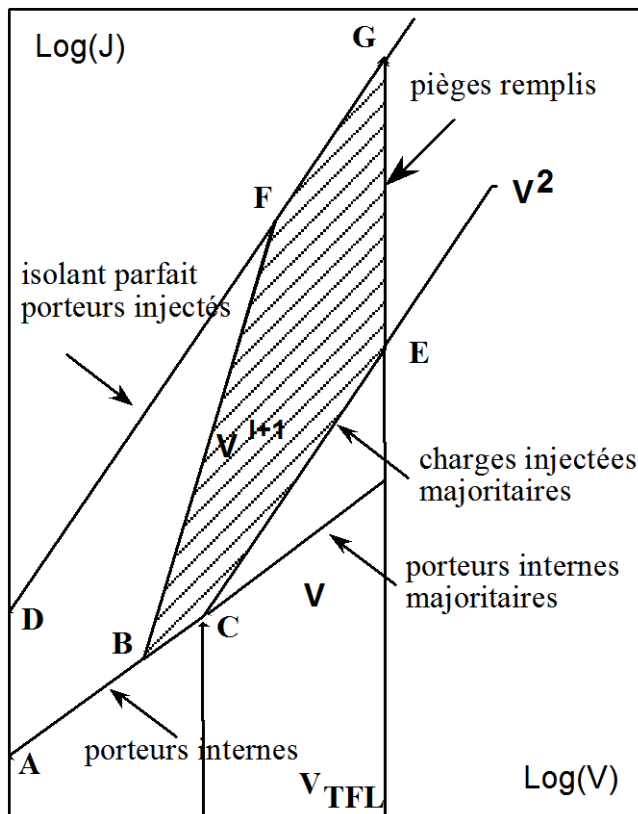
$$\frac{dJ(x)}{dx} = 0 \quad (\text{I-14})$$

De plus, il faut écrire les conditions aux limites relatives au problème étudié et au type de contact considéré. La condition de polarisation ou de charge s'écrit:

$$\int_0^d F(x)dx = V \quad (\text{I-15})$$

A ces conditions aux limites doivent s'ajouter les caractéristiques propres du matériau étudié, à savoir la concentration de pièges dans le volume du matériau et la forme de leur distribution en énergie.

Dans le cas particulier d'un contact ohmique avec injection unipolaire, la résolution des équations précédentes donnent les résultats portés sur le tableau I-1. Les caractéristiques qui leur correspondent sont schématisées dans la figure (I-9).



Dans le cas d'un diélectrique parfait sans pièges ni porteurs internes, le courant attribué aux porteurs injectés, est représenté sur la figure I-9 par la droite (DG). Pour une concentration faible de porteurs internes la caractéristique suit la droite (AC) puis (CE) pour une concentration élevée.

Si l'isolant a des porteurs internes et des pièges peu profonds, on obtient pour des champs faibles puis élevés les caractéristiques (AC) et (CE) respectivement. A partir d'une tension V_{TFL} , tous les pièges se remplissent et le courant augmente brutalement (EG).

Lorsque les pièges sont distribués exponentiellement en énergie, le courant, après un régime ohmique (AB), suit le parcours (BF).

Figure I-9 : Caractéristiques densité de courant-tension dans le cas des CLCE

D'autres mécanismes de conduction par charge d'espace ont été considérés en faisant intervenir la nature du contact métal-isolant, le mécanisme d'injection ainsi que la concentration de pièges dans le matériau [22-27].

Diélectrique sans pièges $n_t=0$		
sans porteur intrinsèque	avec porteurs intrinsèques	
	champ faible $n_0 \gg n$	champ fort $n_0 \ll n$
$J = \frac{9}{8} \varepsilon \mu \frac{V^2}{d^3}$	$J = q \mu n_0 \frac{V}{d}$	$J = \frac{9}{8} \varepsilon \mu \frac{V^2}{d^3}$
courbe DG	courbe AC	courbe CE

Diélectrique contenant des pièges et des porteurs internes n_0			
distribution discrète		distribution uniforme	distribution exponentielle
champ faible $n_0 \gg n$	champ faible $n_0 \ll n$	$n_t = \frac{N_t}{E_2 - E_1}$ avec $E_1 < E_2 < E_F$	$n_t = \frac{N_t}{kT_c} \exp\left(-\frac{E}{kT_c}\right)$
$J = q \mu n_0 \frac{V}{d}$	$J = \frac{9}{8} \varepsilon \mu \frac{V^2}{d^3} \theta$ $\theta = \frac{N_c}{N_t} \exp\left(-\frac{\phi}{kT}\right)$	$J \propto V \exp(cV)$	$J = B \frac{V^{(l+1)}}{d^{(2l+1)}}$
courbe AC	courbe CE puis courbe EG à V_{TFL}		courbe AB puis courbe BF en V^{l+1}

Tableau I-1₂ : Expressions des densités de courants limités par charges d'espace

III. LES COURANTS TRANSITOIRES

Dans de nombreux cas, le courant électrique traversant un isolant après l'application d'un échelon de tension, décroît approximativement suivant la loi empirique de Curie et Von Schweidler [1]:

$$I(t) \propto t^{-n} \quad (\text{I-16})$$

dont la formulation est due à Cole et Cole, où t est le temps qui s'est écoulé depuis l'application de la tension et n un exposant voisin de 1.

Plusieurs mécanismes ont été proposés [28] pour expliquer le comportement des courants transitoires: La polarisation dipolaire [29-31], l'injection d'homocharges [15,32-35], la polarisation aux électrodes due aux hétérocharges [36,37], le "hopping" des porteurs de charge d'un état localisé à un autre. [38-40], la polarisation interfaciale dans le volume du matériau, entre zones amorphes et zones cristallines [41,42] et l'effet tunnel vers des pièges vides [7].

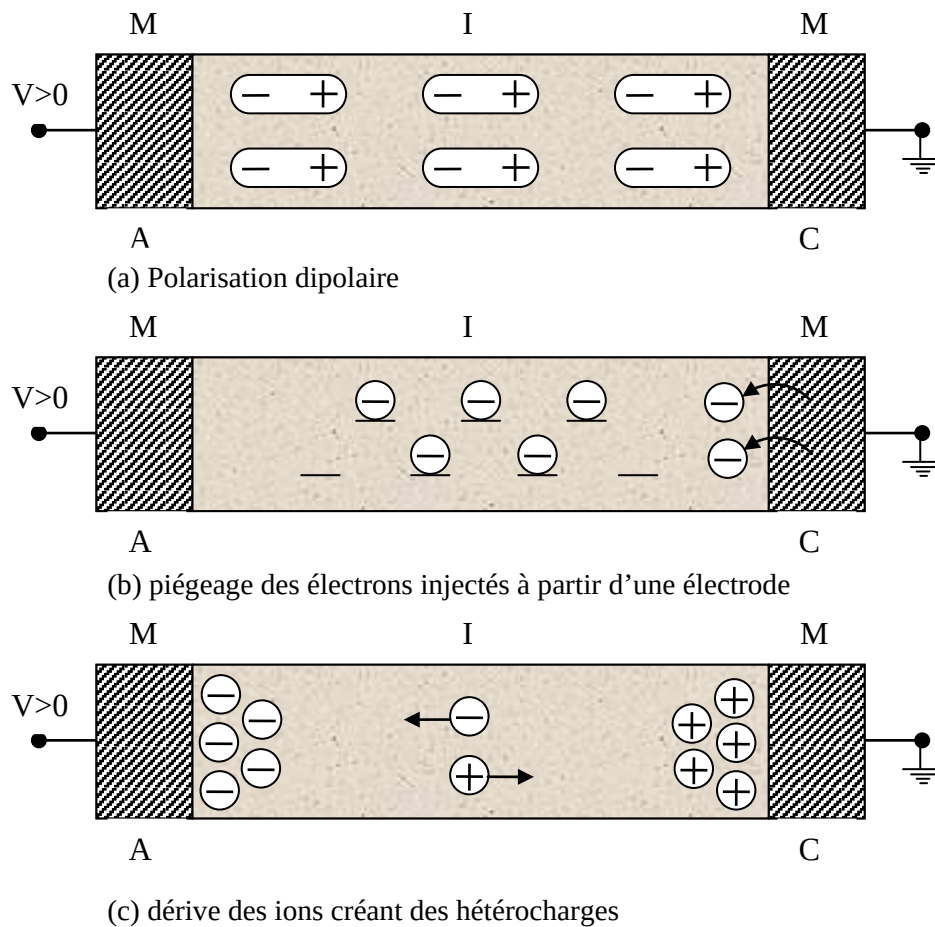


Figure I-10:

La figure I-10 illustre les principaux effets causant la décroissance du courant avec le temps. En effet, dans le cas des polymères, le courant de charge I_c est généralement la superposition de deux composantes à savoir un courant de polarisation produit par une relaxation dipolaire, et un courant de conduction causé par un transport de charges. A la température ambiante et à champ faible, la dernière composante est souvent masquée par la première. Mais si l'on augmente la température ou le champ, la composante due à la conduction peut devenir prépondérante devant celle de la polarisation. Dans ce cas plusieurs critères entrent en jeu pour déterminer la prédominance de l'une ou l'autre. Parmi ces critères, la réversibilité des courants d'absorption et de résorption peut être utilisée pour identifier la polarisation dipolaire, car si une charge d'espace est formée lors de charge, il n'y a plus de réversibilité.

III. 1. Mécanismes dipolaires

L'une des armatures du condensateur est reliée à la terre $V = 0$, l'autre à un potentiel V constant. Le champ F dans le diélectrique est uniforme le condensateur se charge

$$q(t) = C_0 \varepsilon_r(t) V \quad (\text{I-17})$$

où C_0 est la capacité géométrique de l'échantillon

Dans le cas d'une relaxation de Debye, le matériau possède un seul temps de relaxation τ , tous les dipoles sont identiques et indépendants les uns des autres. Au cours de la charge du condensateur la polarisation dipolaire $P_\mu(t)$ est donnée par :

$$\frac{d}{dt} [P_\mu(t)] = \frac{1}{\tau} [(P_s - P_\infty) - P_\mu(t)] \quad (\text{I-18})$$

où P_s est la polarisation à saturation et P_∞ la polarisation induite. La résolution de cette équation avec la condition initiale

$$t = 0 \Rightarrow P_\mu(t) = 0 \quad (\text{I-19})$$

donne

$$P_\mu(t) = (P_s - P_\infty) \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right] \quad (\text{I-20})$$

En tenant compte de la polarisation induite la permittivité relative s'écrit :

$$\varepsilon_r(t) = \varepsilon_{r\infty} + (\varepsilon_{rs} - \varepsilon_{r\infty}) \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right] \quad (\text{I-21})$$

Il en résulte un courant de polarisation :

$$I(t) = \frac{dq}{dt} = \frac{C_o V}{\tau} (\varepsilon_{rs} - \varepsilon_{r\infty}) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (\text{I-22})$$

D'où une densité de courant :

$$J = J_o \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (\text{I-23})$$

Au cours de la décharge du condensateur, le matériau se dépolarise et l'équation qui régit cette dépolarisation, est :

$$\frac{d}{dt} [P_\mu(t)] = \frac{1}{\tau} P_\mu(t) \quad (\text{I-24})$$

$$\text{Avec } t = 0 \Rightarrow P_\mu = (P_S - P_\infty) \quad (\text{I-25})$$

On trouve

$$P_\mu(t) = (P_S - P_\infty) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (\text{I-26})$$

Il en résulte un courant de déplacement qui, au cours de la décharge, correspond au courant de dépolarisation

$$J_d = \frac{dD}{dt} = \frac{d}{dt} [P_\mu(t)] = -\frac{(P_S - P_\infty)}{\tau} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (\text{I-27})$$

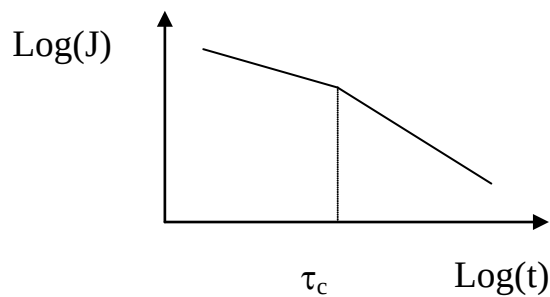
On remarque que les courant d'absorption et de décharge sont égaux et de signes contraires.

$$J_d = -J_p \quad (\text{I-28})$$

Il y a, par conséquent, réversibilité entre les courants d'absorption et de décharge.

Dans le cas d'une distribution de temps de relaxations, on obtient en général, un courant de la forme :

$$J \propto t^{-n} \quad (\text{I-29})$$



avec $n < 1$ pour $t < \tau_c$

et $n > 1$ pour $t > \tau_c$

En coordonnées bilogarithmiques, la variation de J en fonction du temps est représentée par deux droites se coupant en $t = \tau_c$.

Figure I-11: Courant dans le cas d'une distribution de temps de relaxation

Plusieurs types de distributions de temps de relaxation autour d'une valeur plus probable τ_c , on été proposées, nous citerons celles de Gevers, Wagner, Fuoss-Kirkwood et Cole-Cole [43].

Calcul de $I(t)$ dans le cas d'une distribution de type Wagner

Considérons le cas où le courant de polarisation est dû à un processus de relaxation dipolaire avec une distribution de temps de relaxation $f(\tau)$:

Le courant de polarisation s'écrit:

$$I_P(t) = C_o \cdot V \Delta \varepsilon_r \int_0^{+\infty} \frac{f(\tau)}{\tau} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) d\tau \quad (I-30)$$

où $\Delta \varepsilon_r$ est l'incrément de permittivité caractérisant l'amplitude du processus de polarisation.

La fonction de Wagner [43], basée sur une distribution de Gauss, s'écrit :

$$f(\tau) d\tau = \frac{b}{\sqrt{\pi}} \exp\left[-b^2 \left(\text{Log}\left(\frac{\tau}{\tau_m}\right)\right)^2\right] d\left(\text{Log}\left(\frac{\tau}{\tau_m}\right)\right) \quad (I-31)$$

où b caractérise la largeur de la distribution et τ_m est le temps de relaxation moyen,

alors (I-30) devient:

$$I(t) = \frac{C_o V}{\tau_m} \Delta \varepsilon_r \left(\frac{b}{\sqrt{\pi}}\right) \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left[-b^2 z^2 + z + \left(\frac{t}{\tau_m}\right) \exp(-z)\right] dz \quad (I-32)$$

$$\text{et } z = \text{Log}\left(\frac{\tau}{\tau_m}\right) \quad (I-33)$$

Si les temps de relaxation obéissent à une loi d'Arrhénius

$$\tau = \tau_o \exp\left(\frac{E}{kT}\right) \quad (I-34)$$

la résolution numérique de (I-30) donne des courants tels que

$$\text{Log}(J) = f[\text{Log}(t)] \quad (I-35)$$

présente des régions linéaires de pentes comprises entre 0,6 et 1 . Ces courants suivent la loi de Curie Von Schweidler :

$$J \propto t^{-n} \quad (I-36)$$

III. 2. Réponse fréquentielle : Approximation de Hamon

On sait que, dans la mesure où ils sont linéaires, les mécanismes de polarisation peuvent en principe être étudiés indifféremment en analysant la réponse indicielle ou la réponse fréquentielle du système. En général l'emploi de l'une ou l'autre de ces méthodes est dicté par les difficultés expérimentales auxquelles elles conduisent respectivement.

Si la réponse à un échelon de tension est linéaire, on peut passer à la réponse fréquentielle en appliquant la transformée de Fourier à la fonction courant d'absorption - temps. Cette méthode permet d'accéder jusqu'à des fréquences de l'ordre de 10^6 Hz. Cependant, la transformation directe des données de la réponse indicielle n'est pas très commode et nous avons employé une méthode simplifiée proposée par Hamon [44] pour le calcul de ε_r'' .

A partir de la théorie des circuits linéaires, nous savons que la réponse fréquentielle d'un échantillon est donnée à partir de la réponse indicielle par la relation:

$$\varepsilon_r^*(\omega) - \frac{\sigma}{\omega \varepsilon_0} = \varepsilon_{r\infty} + \frac{1}{C_0 V_0} \int_0^{\infty} I(t) \exp(-j\omega t) dt \quad (\text{I-37})$$

Dans le cas où les résultats expérimentaux montrent une dépendance de la forme At^{-n} , on peut remplacer dans l'expression (I-37) $I(t)$ par l'expression analytique:

$$I(t) = At^{-n} C_0 V_0 \quad (\text{I-38})$$

où A et n sont des paramètres dépendant du matériau considéré. Le calcul des parties réelle et imaginaire de la permittivité complexe donnent :

$$\varepsilon_r'(\omega) - \varepsilon_{r\infty} = \omega^{n-1} A \Gamma(1-n) \sin\left(\frac{n\pi}{2}\right) \quad \text{pour } 0 < n < 1 \quad (\text{I-39})$$

$$\varepsilon_r''(\omega) - \frac{\sigma}{\omega \varepsilon_0} = \omega^{n-1} A \Gamma(1-n) \cos\left(\frac{n\pi}{2}\right) \quad \text{pour } 0 < n < 2 \quad (\text{I-40})$$

où Γ est la fonction eulérienne de deuxième espèce ou fonction Gamma [45]. La méthode proposée par Hamon consiste d'une part à introduire, dans l'expression (I-40) la valeur de $I(t)$ donnée en (I-38)

$$\varepsilon_r''(\omega) - \frac{\sigma}{\omega \varepsilon_o} = \frac{I(t)}{C_o V_o \omega} \cdot \frac{\Gamma(1-n) \cos\left(\frac{n\pi}{2}\right)}{(\omega t)^{-n}} \quad (\text{I-41})$$

et d'autre part à faire l'approximation suivante:

$$\varepsilon_r''(\omega) - \frac{\sigma}{\omega \varepsilon_o} = \frac{i(t)}{C_o V_o \omega} \quad (\text{I-42})$$

pour un t donné, il en résulte donc:

$$\omega t = \left\{ \Gamma(1-n) \cos\left(\frac{n\pi}{2}\right) \right\}^{-1/n} \quad (\text{I-43})$$

Le deuxième membre de cette dernière égalité vaut environ 0,63 pour des valeurs de n comprises entre 0,3 et 1,2, ce qui permet d'obtenir à partir de la courbe des courants d'absorption ou de résorption $I(t)$, la valeur de $\varepsilon_r''(\omega)$:

$$\varepsilon_r''(\omega) - \frac{\sigma}{\omega \varepsilon_o} = \frac{I(t)}{C_o V_o \omega} \quad \text{avec} \quad t \cong \frac{0.63}{\omega} \cong \frac{0.1}{f} \quad (\text{I-44})$$

L'approximation de Hamon est valable avec une erreur de l'ordre de 5%

III. 3. Injection d'homocharges à une électrode

L'étude des courants de conduction en régime permanent dans le cas d'un seul type de porteur injecté se fait en général en supposant une "bonne" électrode injectante, c'est à dire un réservoir suffisamment grand pour fournir autant de charges que le courant (limitée par la charge d'espace) en demande, pour une tension de polarisation donnée. En fait, cela revient à idéaliser le contact en le considérant comme un réservoir infini de charges. L'étude des courants transitoires dans le cas d'un seul type de porteurs de charge injectée, est différente.

Nous présenterons d'abord la théorie pour un isolant, parfait sans pièges, où l'écoulement du courant commence à $t = 0$, sous une différence de potentiel V constante. L'influence des pièges sera considérée ultérieurement.

Les équations de base, permettant d'obtenir la dépendance temporelle du courant d'injection, sont déduites de I-9, I-10 et I-11

- équation de la densité de charge totale:

$$J(x,t) = e n(x,t) \mu F(x,t) + \varepsilon \frac{\partial F(x,t)}{\partial t} \quad (\text{I-45})$$

où le premier terme représente le courant de conduction et le second, le courant de déplacement

- le théorème de Gauss:
$$\varepsilon \frac{\partial F(x,t)}{\partial x} = e n(x,t) \quad (I-46)$$

- la conservation de la charge
$$\frac{\partial}{\partial x} [J(x,t)] = -e \frac{\partial}{\partial t} [n(x,t)] \quad (I-47)$$

Dans l'équation (I-45) le courant de diffusion est négligé, cette approximation est valable dans le cas où $V \gg \frac{kT}{e}$ autrement dit pour des champs moyens et forts ($F > 10^5$ V/cm). Le fait

que le courant J dépende uniquement de t et pas de x , provient de (I-47)

Pour obtenir une solution unique au système d'équations (I-45) et (I-46) il faut prendre en compte les conditions aux limites, $F(x,0)$ et $F(0,t)$. Les champs à la cathode $F_c(0,t)$ et à l'anode $F_a(d,t)$ sont reliés à la charge totale $Q(t)$ par unité de surface,

$$F_c(t) = F_a(t) - \frac{Q(t)}{\varepsilon} \quad (I-48)$$

qui n'est autre que l'intégrale de l'équation (I-46). En remplaçant dans l'équation (I-45) $e n(x,t)$ par sa valeur dans (I-46), on obtient:

$$J(t) = \varepsilon \left(\left(\frac{\mu}{2} \right) \frac{\partial F^2(x,t)}{\partial x} + \frac{\partial F(x,t)}{\partial t} \right) \quad (I-49)$$

En intégrant (I-49) de la cathode à l'anode, on a :

$$J(t) = \frac{\varepsilon \mu}{2d} \{F_a^2(t) - F_c^2(t)\} \quad (I-50)$$

puisque
$$\int_0^d \left(\frac{\partial F}{\partial t} \right) dx = \frac{\partial}{\partial t} \left[\int_0^d F dx \right] = \frac{\partial V}{\partial t} = 0 \quad (I-51)$$

Avec (I-48) on peut écrire :

$$F_a^2 - F_c^2 = (F_a - F_c)(F_a + F_c) = \frac{Q}{\varepsilon} \left\{ 2F_a - \frac{Q}{\varepsilon} \right\} \quad (I-52)$$

et l'équation (I-50) devient:

$$J(t) = \frac{\mu Q(t)}{2d} \left\{ 2F_a - \frac{Q(t)}{\varepsilon} \right\} \quad (I-53)$$

III. 3. a. diélectrique sans pièges

Nous allons d'abord étudier l'évolution de $J(t)$ dans le cas simple d'un diélectrique sans pièges. Il se présente alors deux situations selon que la valeur de Q soit faible ou élevée.

1er cas : La charge $Q(t)$ est faible et indépendante du temps:

$$Q(t) = Q = \text{constante} \quad \text{et} \quad Q \ll \varepsilon F_d \quad (\text{I-54})$$

qui est la charge totale, par unité de surface, que peut stocker le matériau compte tenu de sa capacité. Alors les équations (I-48) et (I-53) deviennent:

$$F_c(t) = F_a(t) = \frac{V}{d} \quad (\text{I-55})$$

$$J(t) = J = \frac{\mu \cdot Q \cdot V}{d^2} = \text{constante} \quad (\text{I-56})$$

Le feuillet de charge Q , initialement près d'une électrode (cathode), atteindra l'autre électrode (anode) au bout d'un temps t_o donné par l'intégrale :

$$d = \int_0^{t_o} \mu \cdot F \cdot dt : \quad \text{soit} \quad t_o = \frac{d^2}{\mu \cdot V} \quad (\text{I-57})$$

Le courant constant, donné par l'équation (I-56), circule uniquement durant l'intervalle de temps compris entre 0 et t_o . Puisqu'il n'y a pas atténuation de la charge Q , le courant passe brusquement à $t = 0$ de zéro à J donné par (I-56), persiste pendant un temps t_o , nécessaire au feuillet de charges pour arriver à l'autre électrode, puis chute brutalement à une valeur nulle comme cela est illustré par la figure I-12

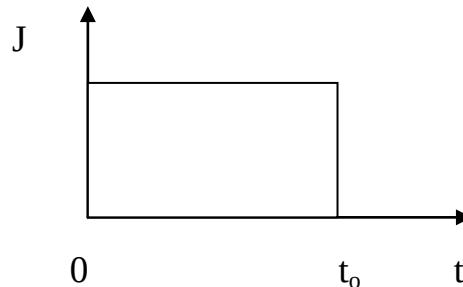


Figure I-12 : Courant dû au déplacement d'un feuillet de faible charge (sans pièges)

2ème cas : La charge Q est assez importante pour constituer un réservoir de porteurs à la cathode, soit par utilisation d'une impulsion lumineuse intense ou parce que l'échantillon est pourvu de contacts injectants, la réponse transitoire diffère du cas précédent. Les courbes obtenues par Many et Rakavy [32], représentées en figure I-13, présentent les caractéristiques suivantes:

- un courant instantané J_0 à $t = 0$
- un accroissement monotone du courant jusqu'à sa valeur maximale J_1 au temps $t_1 < t_0$
- un changement de pente discontinu puis une décroissance du courant (point anguleux).
- une décroissance du courant jusqu'à une valeur légèrement inférieure au courant permanent.
- "atteinte" du courant permanent après un temps $t = 2 t_0$.

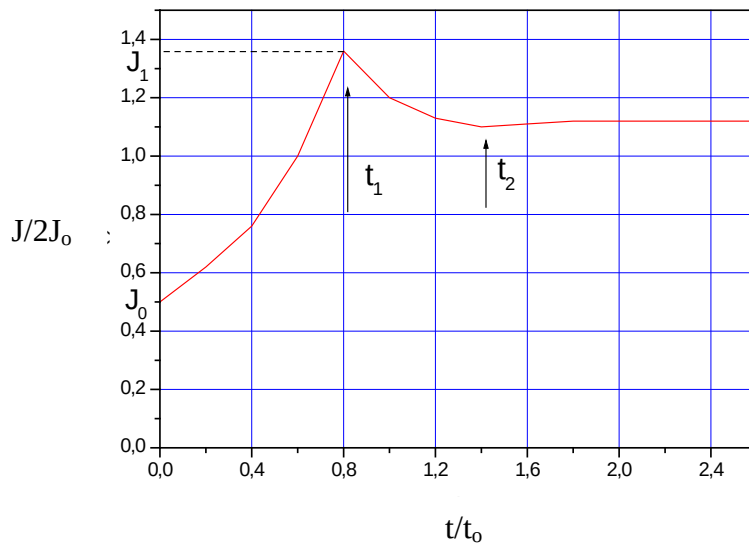


Figure I-13 : Courant du au déplacement d'une charge importante (sans pièges) $J/2J_0$ en fonction de t/t_0

Le comportement du courant jusqu'au pic peut être obtenu simplement à partir des équations (I-45) et (I-46) et de la condition aux limites:

$$F_c(t) = 0 \quad (\text{I-58})$$

Considérons donc le courant dans l'intervalle de temps $0 < t < t_1$ où t_1 est le temps que met le front de charge pour arriver à l'anode. Pendant cet intervalle de temps le courant de conduction (I-45), évalué à l'anode, est nul, tant que les porteurs injectés ne sont pas encore arrivés à l'anode. D'où, en combinant les équations (I-45), (I-50) et (I-58) on obtient l'équation différentielle:

$$\frac{dF_a}{F_a^2} = \frac{\mu}{2d} dt \quad (\text{I-59})$$

dont la solution est :

$$\frac{d}{V} - \frac{1}{F_a} = \frac{\mu t}{2d} \quad (\text{I-60})$$

d'où

$$F_a = \frac{V}{d} \cdot \frac{1}{\left\{1 - \frac{t}{2t_o}\right\}} \quad (\text{I-61})$$

avec $F(x,0) = \frac{V}{d}$ puisqu'il n'y a pas encore de charges injectées dans l'isolant.

A partir de (I-48) la charge totale injectée $Q(t)$ dans le matériau au temps t , est donnée par:

$$Q(t) = \varepsilon F_a = \frac{\varepsilon V}{d} \cdot \frac{1}{\left\{1 - \frac{t}{2t_o}\right\}} \quad (\text{I-62})$$

En utilisant (I-61) et (I-50), on obtient:

$$J = J_o \frac{1}{\left\{1 - \frac{t}{2t_o}\right\}^2} \quad \text{avec} \quad J_o = J(0) = \frac{\varepsilon \mu V^2}{2d^3} \quad (\text{I-63})$$

ce qui conduit à calculer t_1 , sachant que le champ sur le front de charge, à $t < t_1$, est le même que le champ à l'anode au temps t , $F_a(t)$. En utilisant (I-61), on a:

$$d = \mu \int_0^{t_1} F_a dt = \frac{2\mu t_o V}{d} \text{Log} \left\{ \frac{1}{1 - \frac{t_1}{2t_o}} \right\} \quad (\text{I-64})$$

A partir de la définition de t_o on obtient finalement:

$$t_1 = 2 \cdot \left(1 - e_o^{-1/2}\right) \cdot t_o \cong 0,786 \cdot t_o \quad (\text{I-65})$$

En posant :

$$J_1 = J(t_1) \quad \text{et} \quad J_\infty = J(\infty) = \frac{9}{8} \frac{\varepsilon \cdot \mu \cdot V^2}{d^3} = \frac{9}{4} J_o \quad (\text{I-66})$$

(courant limité par charge d'espace dans un isolant sans pièges et en régime permanent) et en utilisant les équations (I-63) et (I-65) on obtient les rapports suivants:

$$\frac{J_1}{J_o} = e_o \cong 2,72 \quad (\text{I-67}) \quad \frac{J_1}{J_\infty} = \frac{4}{9} e_o \cong 1,21 \quad (\text{I-68})$$

Notons que la diffusion aurait pour effet d'arrondir le pic obtenu à t_1 .

L'article historique de Many et Rakavy [32] est une bonne référence pour la solution complète du problème pour tous les temps.

Par raison de commodité ,dans le calcul qui va suivre et dans les figures I-10 à I-12, les grandeurs sont normalisées comme suit :

$$J^* = J / 2J_o , \quad t^* = t / t_o , \quad \tau^* = \tau / t_o , \quad x^* = x/d, \quad F^* = Fd/V \text{ et } \rho^* = \rho d^2 / \varepsilon V \quad (\text{I-69})$$

Dans l'intervalle de temps entre t^*_1 et t^*_2 et en tenant compte de la condition de continuité du champ en t^*_1 , on obtient le courant:

$$J^*(t) = \frac{e_o}{2} \left(\frac{t_1^*}{t^*} \right)^2 \left\{ 1 - (\sqrt{e_o} - 1) \text{Log} \left(\frac{t^*}{t_1^*} \right) \right\}^{-1} \quad \text{pour } t_1 < t < t_2 \quad (\text{I-70})$$

Après calculs on trouve $t^*_2 = 1,915$ et $t^*_1 = 1,51$.

Dans la zone suivante(III) pour $t^* > t^*_2$, la solution nécessite la résolution de trois équations différentielles qui n'ont pas de solution analytique. Cependant, cette solution présente peu d'intérêt puisqu'à $t^* = t^*_2$, $J^*(t^*)$ est très proche de sa valeur en régime permanent

$J^*(t^*_2) = 1.11$ alors que $J^*(\infty) = 1.12$

Pour les temps supérieurs, $t^* \gg t^*_2$, on se trouve en régime permanent avec:

$$J^*(\infty) = \frac{9}{8} \quad (\text{I-71}) \quad F^*(x, \infty) = \frac{3}{2} \sqrt{x^*} \quad (\text{I-72}) \quad \text{et} \quad \rho^*(x, \infty) = \frac{3}{4} \frac{1}{\sqrt{x^*}} \quad (\text{I-73})$$

équations qui peuvent être déduites des expressions I-12 à I-13 trouvées en régime permanent.

III. 3. b. diélectrique avec pièges

Le diélectrique contient des pièges, les valeurs du temps de piègeage τ ne sont donc pas infinies, mais il n'y a pas de porteurs intrinsèques ($\rho = 0$). En traitant le cas où $\tau^* \gg t^*_1$

et en posant :
$$\eta = \frac{\theta_0}{1 + \theta_0} \quad \text{et} \quad \tau^* = \frac{\tau^*}{1 + \theta_0} \quad \text{avec} \quad \theta_0 = \frac{n_o}{n_{to}} \quad (\text{I-74})$$

on obtient l'expression du courant :

$$J^*(t) = \frac{9}{8} \left[(1 - \eta) \exp\left(-\frac{t^*}{\tau^*}\right) + \eta \right] \quad (\text{I-75})$$

qui décroît exponentiellement depuis $\frac{9}{8}$ jusqu'à la valeur du courant permanent $\left(\frac{9}{8}\right) \cdot \frac{\theta_0}{1 + \theta_0}$.

En fait même si cette approximation a été faite pour $t^* > 2t^*_1$ elle peut être étendue aux temps plus courts en tenant compte de la forme exacte $J^*_\infty(t^*)$ (courant en l'absence de piègeage).

Dans cette région, l'équation I-75 peut être remplacée par:

$$J^*(t) = J^*_\infty(t) - \frac{9}{8} (1 - \eta) \left[1 - \exp\left(-\frac{t^*}{\tau^*}\right) \right] \quad (\text{I-76})$$

Pour $t^* \geq 2t^*_1$ $J^*_\infty(t) = \frac{9}{8}$ et l'équation I-76 coïncide avec I-75.

Cette dernière (I-76) est une très bonne approximation pour $t^* \geq t^*_1$ uniquement pour un temps de piègeage aussi petit que $\tau^* = 2$. Dans la région comprise entre 0 et t^*_1 , on peut supposer que la champ électrique ne change pas encore de façon appréciable, ce qui donne un courant

$$J^*(0) - J^*(t) = \left(\frac{1}{\tau^*}\right) \left\{ 0.47t^* + 0.15t^{*2} + 0.22t^{*3/2} + 0.58 \left[t^* \left(1 - \frac{1}{2}t^*\right)^{-1} + 2 \cdot \text{Log}\left(1 - \frac{1}{2}t^*\right) \right] \right\} \quad (\text{I-77})$$

Cette approximation est valable pour un seul niveau de pièges.

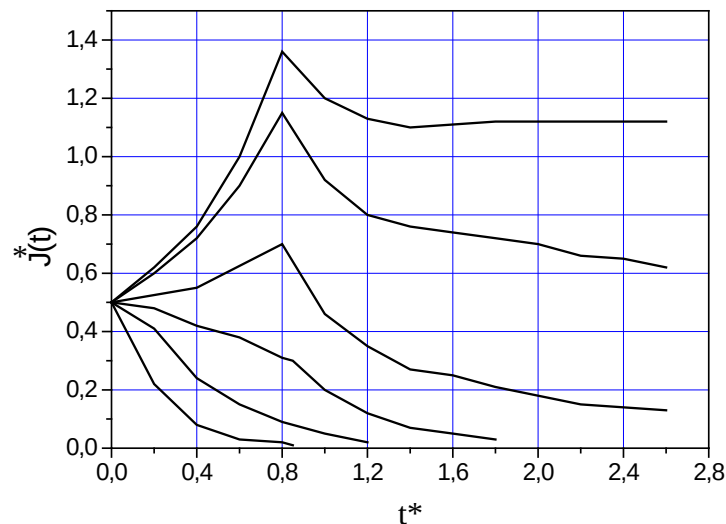


Figure I-14 : Courants transitoires pour $\rho = 0$ et différents temps de piégeage τ^*
(de haut en bas $\tau^* = \infty, 4, 1, 0.5, 0.25$ et 0.025)

La solution pour tous les temps et en présence de pièges, a été donnée par Many et Rakavy. Les courants ont été calculés numériquement et les résultats sont présentés en figure I-14 pour différentes valeurs de τ^* et pour $\theta_0 = 0$. Plus la valeur de τ^* est faible plus le courant décroît rapidement. D'un autre côté le temps de transit t^*_{I1} augmente légèrement

III. 3. c. Diélectrique avec une concentration de porteurs ρ_0

Le traitement dans ce cas est similaire à celui d'un diélectrique sans porteurs. Les solutions analytiques sont obtenues uniquement dans la zone où $t^* < t^*_{I1}$ et dans la zone asymptotique. Le reste est calculé numériquement.

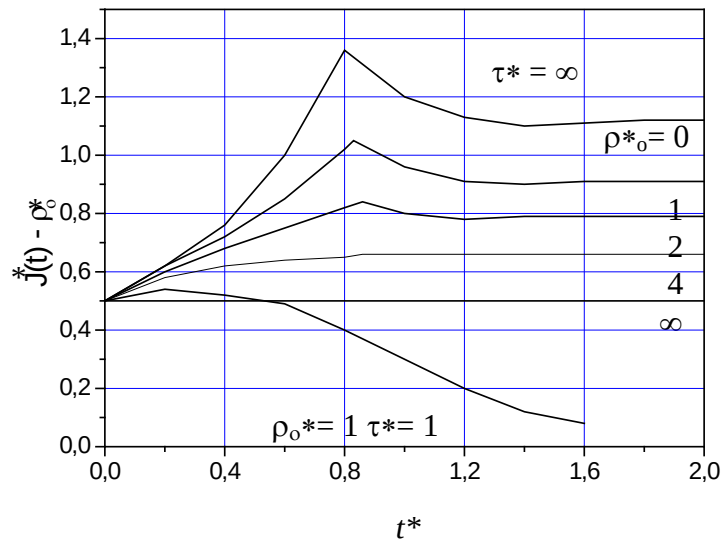


Figure I-15 : Excès de courant dans le cas sans pièges et différentes valeurs de ρ^*_0

La figure I-15 représente l'excès de courant dans un diélectrique contenant des porteurs intrinsèques. Les courbes du haut correspondent au cas sans pièges et la courbe du bas est obtenue pour $\rho^*_0 = 1$, $\tau^* = 1$ et $\theta_0 = 0$

D'autres modèles ont été proposés : Walden [33] a étudié la relation entre le piégeage des électrons et le courant qui dépend du champ à l'interface métal-isolant. Wintle [34] a généralisé la théorie de Walden en tenant compte de la création d'une charge d'espace et

explique la décroissance du courant de décharge, au cours du temps, par l'abaissement du champ à l'électrode injectante. Pour des temps longs il retrouve la loi de Curie-Von Schweidler

$$J(t) \propto t^{-n}$$

III. 4. Polarisation aux électrodes:

La dérive des ions aboutit à la création de charges d'espace positives à la cathode et négatives à l'anode. Ce qui conduit à un profil de potentiel distordu et affecte le courant électronique. En particulier, si la conduction électronique est limitée par les électrodes, l'amplitude du courant, qui en résulte, augmente avec le temps lorsque la charge d'espace près de la cathode augmente. En plus, le mouvement des ions crée un courant supplémentaire décroissant avec le temps. La conduction électronique régie par le volume donne probablement aussi une contribution supplémentaire au courant $J(t)$ mais il n'est pas clair si elle croît ou décroît avec le temps.

La condition de contacts bloquants signifie qu'il n'y a aucun passage de porteurs et que le phénomène de transport, qui intervient, est lié aux charges créées et qui préexistent. Cette condition s'écrit :

$$J_n(0,t) = J_n(d,t) = 0 \quad \text{et} \quad J_p(0,t) = J_p(d,t) = 0 \quad (\text{I-78})$$

III. 4. a. Modèle de Mac Donald :

Dans ce modèle, le système considéré consiste en un matériau liquide ou solide, contenant des charges mobiles négatives et positives, compris entre deux électrodes planes identiques séparés d'une distance d . Ces charges sont supposées non recombinautes et de mobilités égales. Les réponses transitoires et fréquentielles sont comparées dans le cas de deux électrodes totalement bloquantes pour les deux types de porteurs. La méthode utilisée, qui inclut les effets d'électromigration, ne requiert pas la neutralité électrique et donne des résultats qui satisfont l'équation de Poisson dans toute l'épaisseur de l'échantillon, pour tous les temps et fréquences. Ces résultats peuvent s'appliquer à la conduction ionique ou électronique [36]. En utilisant la transformée de Laplace de l'admittance, il obtient des courants de la forme :

$$J \propto t^{-1/2} \quad (\text{I-79})$$

En 1979 Mac Donald [46] a examiné, par simulation numérique, les propriétés électriques en régime transitoire, d'un matériau contenant un ou deux types de porteurs de charges, avec des électrodes bloquantes. La décroissance du courant total après l'application d'une tension continue est assimilée à une somme d'exponentielles décroissantes. Le caractère non linéaire de la réponse du système devient apparent lorsque le courant transitoire, associé à la formation de charge d'espace en réponse à un échelon de tension, est comparé à celui accompagnant la décroissance de la charge d'espace succédant la mise en court-circuit des électrodes.

III. 4. b. Modèle de Goffaux

Goffaux [47] a étudié les courants transitoires de charge et de décharge associés au déplacement des porteurs dans un milieu diélectrique pourvu d'électrodes bloquantes. Il suppose que les charges positives fixes compensent les charges positives mobiles (drainées sous l'effet du champ vers l'électrode) et tient compte de la diffusion qui s'oppose à l'action du champ. A partir des équations de base, il obtient à champ élevé, un courant de charge de la forme :

$$J \propto \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (\text{I-80})$$

et un courant de décharge non superposable au courant de charge, et qui présente le comportement asymptotique suivant :

$$J \propto t^{-n} \quad \text{avec } 0,5 < n < 1 \quad t \ll \tau \quad (\text{I-81})$$

$$J \propto t^{-1,5} \quad t \gg \tau \quad (\text{I-82})$$

A champ moyen le courant de résorption est de forme exponentielle ne se superpose pas au courant de charge. En résumé, à champ moyen et fort, il y a irréversibilité des propriétés transitoires de conduction.

III. 5. Modèles combinés.

III. 5. a. Modèle de Wintle

Cet auteur [48] propose un traitement numérique du comportement du champ et de la charge d'espace durant la décharge dans des matériaux contenant aussi bien des charges d'espace que des dipôles en quantités comparables.

Il considère un seul type de porteurs libres en équilibre thermique avec leurs pièges, ces pièges ont une même profondeur énergétique, et le phénomène de diffusion est négligée. D'autre part, il n'y a qu'un seul temps de relaxation dipolaire

- Notations

- ρ : densité de charge d'espace (libre + piégée)
- μ : mobilité effective ou modulée par les pièges
- P_l : composante dipolaire lente de la polarisation
- ε_s : permittivité diélectrique haute fréquence.
- ε_∞ : permittivité diélectrique basse fréquence
- χ_l : composante de la susceptibilité associée au processus dipolaire lent : $\varepsilon_s = \varepsilon_o \chi_l + \varepsilon_\infty$

On part de l'équation de continuité et du théorème de Gauss :

$$\frac{\partial J_c}{\partial x} = -\frac{\partial \rho}{\partial t} \quad (\text{I-83}) \qquad \frac{\partial D}{\partial x} = \rho \quad (\text{I-84})$$

L'expression du courant de conduction est:

$$J_c = \mu \rho F \quad (\text{I-85})$$

Les équations constitutive :

$$D = \varepsilon_o F + P \quad (\text{I-86})$$

$$D = \varepsilon_\infty F + P_l \quad (\text{I-87})$$

donnent
$$F = \frac{D - P_l}{\varepsilon_\infty} \quad (\text{I-88})$$

A l'équilibre la relation entre la polarisation et le champ électrique s'écrit :

$$P_l = \varepsilon_o \chi_l F \quad (\text{I-89})$$

Hors équilibre, P_s , relaxe vers sa valeur à l'équilibre avec un temps de relaxation τ donné par :

$$\frac{\partial P_l}{\partial t} = -\frac{P_l - \varepsilon_o \chi_l F}{\tau} \quad (\text{I-90})$$

L'équation (I-90) devient, en remplaçant le champ par l'expression (I-88) :

$$\frac{\partial P_l}{\partial t} = -\frac{1}{\tau} \left[P_l - \frac{\varepsilon_o \chi_l}{\varepsilon_\infty} (D - P_l) \right] \quad (\text{I-91})$$

Les expressions (I-84) et (I-85) aboutissent à :

$$J_C = \mu \frac{\partial D}{\partial x} F \quad (\text{I-92})$$

La densité de courant J , mesurée dans le circuit extérieur, est donnée par :

$$J = J_C + \frac{\partial D}{\partial t} \quad (\text{I-93})$$

L'équation (I-93) s'écrit en utilisant (I-88) et (I-92) :

$$J = \frac{\partial D}{\partial t} + \frac{\mu}{\varepsilon_\infty} \frac{\partial D}{\partial x} (D - P_l) \quad (\text{I-94})$$

Les conditions aux limites sont :

$$\left. \begin{array}{ll} V = V_a & \text{en } x = 0 \\ V = 0 & \text{en } x = d \end{array} \right\} \quad \text{d'où} \quad \int_0^d F dx = V_a \quad (\text{I-95})$$

Les contacts sont supposés ohmiques

Cette dernière condition signifie qu'il n'y a pas de chute de potentiel à l'interface électrode-isolant et pas de barrière pour la "sortie" des porteurs.

L'équation (I-95) s'écrit pour la décharge :

$$\frac{1}{\varepsilon_\infty} \int_0^d (D - P_l) dx = V_d \quad (\text{I-96})$$

où V_a représente la tension de décharge à $t < 0$ et V_d celle à $t > 0$

Les conditions initiales requises sont $\rho(x, 0)$ et $P(x, 0)$ ce qui donne $D(x, 0)$ à une constante près à partir de (I-84) puis $F(x, 0)$ à une constante près à partir de (I-79), la constante elle-même est déterminée à partir de (I-95).

- Equations normalisées

En premier lieu les équations sont réécrites en éliminant le champ F à l'aide de (I-87) puis en introduisant des variables normalisées :

$$F^* = \frac{F d}{V_a} ; \quad D^* = \frac{D}{D_o} ; \quad P_l^* = \frac{P_l}{D_o} ;$$

$$\tau^* = \frac{\tau}{t_o} ; \quad x^* = \frac{x}{d} ; \quad J^* = \frac{J}{J_o} \quad (\text{I-97})$$

$$\text{où} \quad D_o = \varepsilon_S \frac{V_a}{d} ; \quad t_o = \frac{\varepsilon_\infty}{\varepsilon_S} \frac{d^2}{\mu V_a} ; \quad J_o = \frac{\varepsilon_S}{\varepsilon_\infty} \left\{ \frac{\varepsilon_\infty \mu V_a^2}{d^3} \right\} \quad (\text{I-98})$$

les équations I-91, I-94 et I-96 deviennent:

$$J^* = \frac{\partial D^*}{\partial t^*} + \mu \frac{\partial D^*}{\partial x^*} (D^* - P_l^*) \quad (\text{I-99})$$

$$\frac{\partial P_l^*}{\partial t^*} = -\frac{1}{\tau^*} \left[P_l^* - \frac{\chi_l}{\varepsilon_\infty} (D^* - P_l^*) \right] \quad (\text{I-100})$$

$$\int_0^1 \{D^* - P_l^*\} dx^* = \frac{V_d}{V_a} \frac{\varepsilon_\infty}{\varepsilon_S} \quad (\text{I-101})$$

En intégrant (I-99) et (I-100) par rapport à x^* , en différenciant (I-101) par rapport à t et en éliminant $\int_0^1 \left(\frac{\partial P_l^*}{\partial t^*} \right) dx^*$, on obtient pour (I-99):

$$\int_0^1 J^* dx^* = J^* \quad (\text{I-102})$$

$$J^* = \int_0^1 \frac{\partial D^*}{\partial x^*} (D^* - P_l^*) dx^* - \int_0^1 \frac{P_l^*}{\tau^*} dx^* + \frac{\chi_l}{\varepsilon_S \tau^*} \frac{V_d}{V_a} + \frac{\varepsilon_\infty}{\varepsilon_S V_a} \frac{\partial V_d}{\partial t^*} \quad (\text{I-103})$$

Au temps $t = 0_-$, nous avons la condition $V = V_a$. Au temps $t = 0$, la tension bascule de V_a à V_d . La tension V_d est normalement constante (couramment nulle) mais dans ce cas elle peut varier au cours du temps. Au temps $t = 0_+$, ni la polarisation lente P_l^* ni la densité de charge ne sont altérées, par conséquent les champs, avant et après la suppression de V_a , sont reliés par.

$$\begin{aligned} P_l^*(t = 0_+) &= P_l^*(t = 0_-), \\ F^*(t = 0_+) &= F^*(t = 0_-) + \left[\frac{V_d}{V_a} - 1 \right], \\ D^*(t = 0_+) &= D^*(t = 0_-) + \frac{\varepsilon_\infty}{\varepsilon_S} \left[\frac{V_d - V_a}{V_a} \right] \end{aligned} \quad (\text{I-104})$$

qui sont les conditions initiales pour le calcul numérique.

Pour résoudre le système on suppose qu'aux premiers instants les phénomènes sont linéaires. La densité de courant et la polarisation augmentent linéairement à partir de zéro en traversant l'échantillon de l'électrode injectante à l'électrode collectrice :

$$D^* = 2.x^* \quad (I-105)$$

$$P^* = \frac{\chi}{\varepsilon_s} . 2.x^* \quad (I-106)$$

Dans ces conditions on obtient l'évolution du profil du champ représenté en figure (I-16)

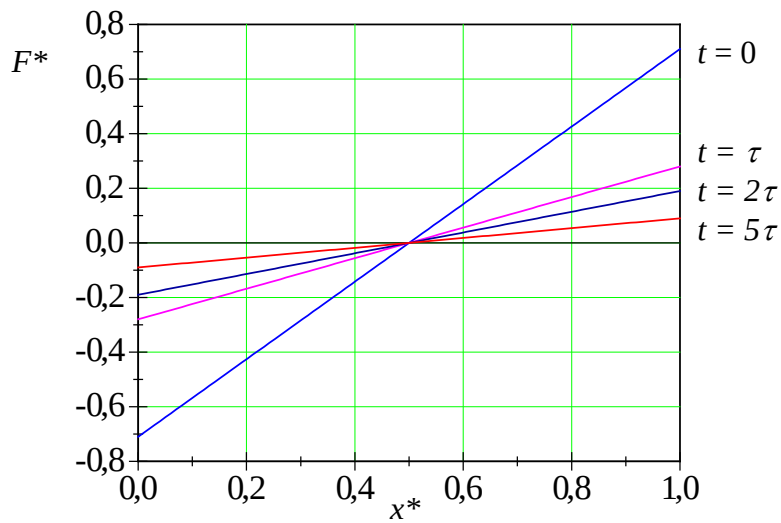


Figure I-16 : Evolution du profil de F^* dans le cas linéaire avec $\varepsilon_s = 3.5$, $\chi_l = 1$.

et un courant qui décroît exponentiellement avec le temps figure (I-17):

$$J \propto \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (I-107)$$

τ est le temps de relaxation le plus probable.

Ce comportement est lié au fait que la charge d'espace est uniforme

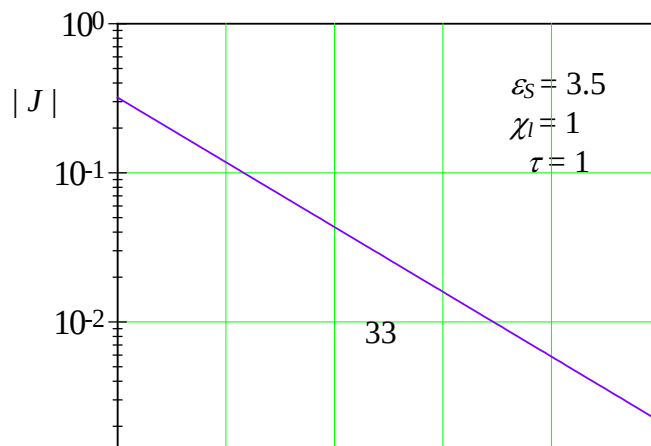


Figure I-17: Densité de courant $|J|$ dans le cas linéaire avec $\varepsilon_S = 3.5$, $\chi_l = 1$ et $\tau = 1$.

En fait, deux situations extrêmes peuvent se présenter : soit le champ électrique à l'électrode injectante F_o , durant le régime permanent est nul et le courant est alors limité par charge d'espace, soit $F_o^* = 1$) et le champ est donc uniforme dans l'isolant et on se trouve dans un système purement polaire avec un courant permanent nul.

Entre ces deux limites, le courant est perturbé par la charge d'espace et la détermination des variations de : la charge d'espace, F , D et P_l , dépendent des quatre paramètres $\varepsilon_\infty, \chi_l$ (ou ε_s), τ et F_o .

Le calcul de la densité de courant, dans le cas où les effets dipolaires et de charge d'espace sont d'importances comparables, aboutit aux conclusions suivantes :

Si la relaxation dipolaire est significative ($\frac{\chi_l}{\varepsilon_s} > 0.3$), la vitesse d'atténuation de la charge

d'espace et de la polarisation est largement gouvernée par le temps de relaxation dipolaire. Mais dans une large gamme de variation de τ et F_o , les courbes courant-temps sont limitées par les courbes supérieures de la figure I-16. La variation de F_o n'affecte le courant que durant l'intervalle de temps entre 0 et τ .

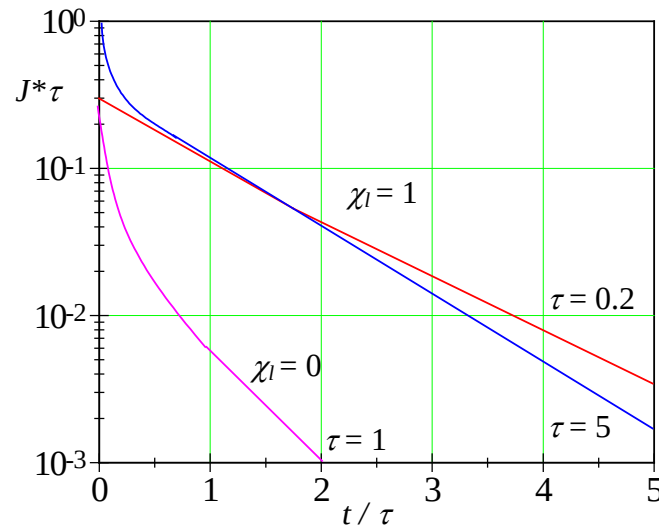


Figure I-18: Densité de courant en fonction du temps dans le cas non linéaire ($F_o^* = 0.1$)

Le cas où le courant est uniquement perturbé par la charge d'espace est représenté en figure I-18. où $\chi_l = 0$ et $\tau = 1$.

Les courbes obtenues ne présentent pas une forme particulière. Cependant, une importante charge d'espace injectée est responsable de la réponse quadratique du courant avec la tension de polarisation

III. 5. b. modèle unifié de Lowell

L'application d'un champ électrique génère dans le matériau une pression qui peut conduire à une réduction progressive de son épaisseur, c'est le phénomène d'électrostriction. Ceci est observé en particulier pour les matériaux viscoélastiques comme la plupart des polymères. Cet effet provoque un déplacement de la charge dans le circuit extérieur et génère ainsi un courant de l'ordre de quelques pA, qui peut contribuer de façon non négligeable au courant mesuré.

Lowell [49] considère que les électrons ont une façon particulière de se mouvoir en milieu polymérique. Il suggère, en présence d'un champs électrique, un électron piégé sur un site particulier d'une chaîne polymérique puisse participer à une distorsion viscoélastique locale de la chaîne, ce qui lui permettrait de sauter vers un site d'une chaîne voisine où il serait de nouveau piégé et ainsi de suite. En partant de cette dernière considération, Lowell aboutit à une loi de variation de courant de type Curie-Von-Schweidler avec $n=1$.

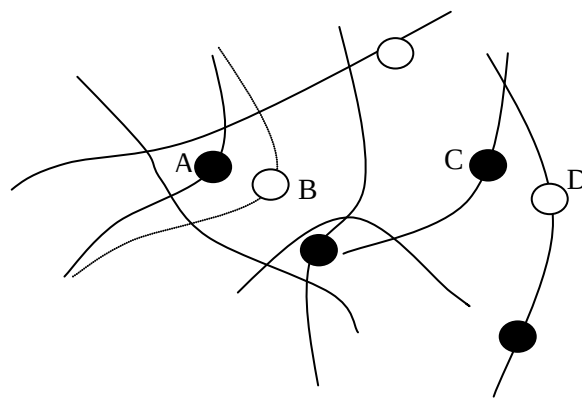


Figure I-19 : Représentation de charges piégées (A, C) et de sites vides (B, D) dans un polymère linéaire amorphe

IV- CONCLUSION.

Ce chapitre a passé en revue les principaux mécanismes intervenant dans les phénomènes de conduction en régime transitoire. Ces phénomènes sont fort complexes, certains d'entre eux ne sont pas encore très bien compris et continuent à faire l'objet de nombreuses recherches. L'article de Wintle [50], sur la physique des isolants, constitue une excellente mise au point bibliographique avec plus de 200 références.

La première difficulté réside dans l'établissement du régime permanent. Le régime transitoire peut durer plusieurs jours, certains auteurs vont jusqu'à douter de l'existence d'un courant permanent. C'est ainsi que Coelho et Aladenize [1], se demandent s'il s'agit d'un mythe ou d'une réalité.

En régime transitoire de nombreux mécanismes sont, comme le montre ce chapitre, représentés par la loi empirique de Curie Von Schweidler. Toutefois le recouvrement des courbes des courants d'absorption et de résorption implique un phénomène de relaxation diélectrique alors que tout écart entre ces courbes sera attribué à un mouvement de charges libres.

Il faut préciser que pour déterminer les mécanismes qui interviennent dans un isolant durant le régime transitoire, il ne suffit pas d'étudier la forme des courbes $i(t)$, mais il faut également considérer les effets, du champ électrique, de l'épaisseur de l'échantillon, de la nature des électrodes, de la température, de la pression hydrostatique [50], etc.

Chapitre II :

DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ET PROCEDURE DE MESURE

Chapitre II

DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ET PROCEDURE DE MESURE

Les mesures des courants, en régimes transitoire et permanent en fonction de la température et du champ électrique, ont été effectuées au Laboratoire des Diélectriques de l'Institut de Physique de l'USTHB sur un banc de mesures conçu et réalisé dans le cadre de notre thèse de magister [1]. L'étude expérimentale, en fonction de la pression hydrostatique a été menée au Laboratoire de Génie Electrique de Université Paul Sabatier de Toulouse.

Il faut noter que les mesures de courant de conduction, dans les isolants en général et les polymères en particulier, nécessitent une attention particulière. Tout d'abord dans le temps d'établissement du régime permanent : en effet si, dans le cas d'un conducteur, l'application d'un échelon de tension conduit à un courant instantané, dans un isolant le courant présente un régime transitoire de quelques secondes à plusieurs jours avant d'atteindre une valeur stable. Par ailleurs, un isolant réel possède une conductivité extrêmement faible, ce qui nécessite un appareillage spécial à savoir :

- un électromètre de très haute sensibilité jusqu'à 10^{-16} A,
- des sources de tension stabilisée de plusieurs kilovolts,
- des passages électriques étanches et de très haute résistivité
- un blindage de tout le dispositif de mesures qui permet d'éviter les effets parasites électrostatiques et électromagnétiques,
- une température stable pendant toute la durée de l'expérience
- et enfin un contrôle de l'atmosphère où baigne l'échantillon.

En plus de toutes ces précautions, l'expérimentation en haute pression exige un soin particulier et des mesures de protection spéciales.

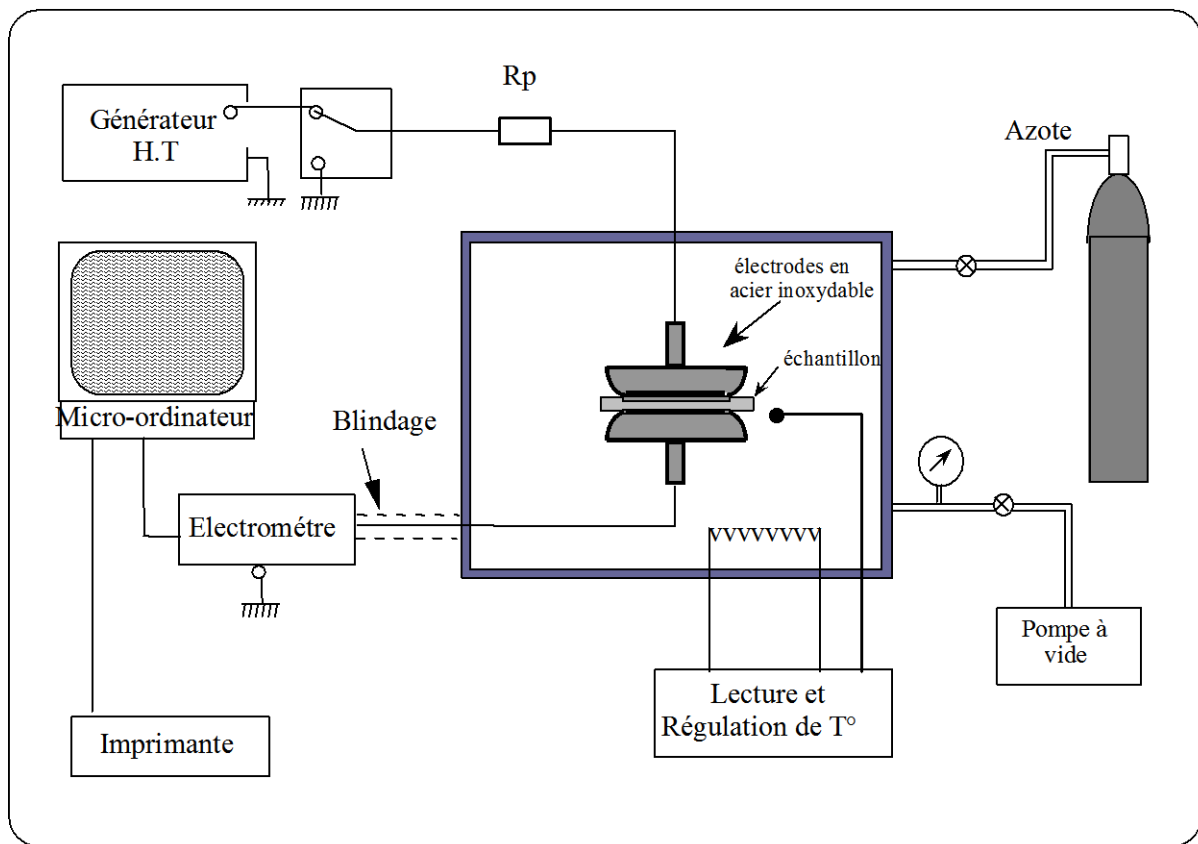


Figure II-1 : Schéma synoptique du dispositif expérimental.

I . DISPOSITIF A PRESSION ATMOSPHERIQUE

Le banc de mesures est représenté en figure II-1 et sur la photographie N°1. Ce dernier est constitué essentiellement :

- d'une cellule à l'intérieur de laquelle se trouve l'échantillon,
- d'un système de chauffage, de lecture et de régulation de la température,
- d'un dispositif de pompage et d'injection de gaz,
- et de circuits d'alimentation électrique et de mesure du courant.

- A** Couvercle
- B** Partie centrale
- C** Cylindre amovible

- | | |
|--|--|
| (1)- Passage électrique de haute tension | (5)-Résistance chauffante de type thermocoax |
| (2)-Quatre passages latéraux pour : | (6)-Cylindre métallique |
| la mesure du courant | (7)-Electrode de haute tension |
| le vide | (8)-Echantillon |
| l'arrivée du gaz | (9)-Electrode de mesure |
| -la mesure de T° et le thermocoax | (10)-Support réglable |
| (3)-Tiges métalliques | (11)-Vis de réglage |
| (4)-Support en Téflon | |

Légende de la figure II. 2.

I-1 –Cellule de mesure

Une première cellule à été utilisée pour quelques mesures à atmosphère ambiante avec des surfaces d'électrodes importantes. La seconde cellule (photo 1 et figure II-2) permet d'opérer dans un milieu dont on peut faire varier la nature, le taux d'humidité relative, la température de -190°C à 200°C, et la pression de 10^{-6} à 2 bars.

Cette cellule, en acier inoxydable, est reliée à la terre, et constitue un blindage électrostatique. Elle comporte trois parties

- Une partie centrale fixe munie de quatre passages étanches et portant le système d'électrodes
- un couvercle comportant un passage électrique à haut isolement ($10^{18}\Omega\text{cm}$) qui permet d'injecter la haute tension
- et un cylindrique amovible de longueur 49 cm et de diamètre 7.6 cm qui entoure le système porte échantillon.

Cette enceinte peut être utilisée pour des mesures aux basses températures. Le cylindre est alors placé dans un vase Dewar rempli d'azote liquide.

I-2-Système de lecture et de régulation de la température

Afin d'obtenir une température uniforme au voisinage de l'échantillon, une résistance chauffante, blindée de type thermocoax, est enroulée en spirale sur un cylindre en cuivre entourant les électrodes. Elle est alimentée par le secteur par l'intermédiaire d'un transformateur variable (220V/0 à 24V) de type Variac. Une sonde, à résistance de platine, placée près de l'échantillon, permet de relever la température du milieu. Un régulateur Minicor 41, relié à cette sonde et à la résistance chauffante, maintient autour de l'échantillon une température constante avec une précision de 0.5°C

I-3- Dispositif de pompage et d'injection de gaz

Un premier passage relie l'enceinte à une pompe à vide Alcatel ASM10 et un second, à une bouteille de gaz par l'intermédiaire d'une vanne tout ou rien et d'une vanne micrométrique permettant de régler la pression de gaz dans la cellule avec précision. Cette pression est lue sur un manomètre de Bourdon et la mesure du vide est effectuée à l'aide d'une jauge Pirani. L'azote a été utilisé comme milieu ambiant en raison de sa neutralité électrique et de sa bonne rigidité diélectrique (32KV/cm)

I. 4-Circuits d'alimentation électrique et de mesure du courant

Pour maintenir les tensions appliquées constantes durant plusieurs heures, deux sources de tension continue ont été utilisées :

- un générateur (HP 652517 DC, 0-4000V, 0-50 mA)
- et un assemblage en série de piles, de 90 volts chacune, pouvant atteindre 990V, placées dans un boîtier métallique relié à la terre

La source de tension est connectée à un circuit de polarisation-dépolarisation qui permet de relier l'échantillon tantôt à la source tantôt à la terre. Le courant qui traverse l'échantillon est mesuré à l'aide d'un électromètre Keithley 617 programmable pouvant détecter des courants de valeurs comprises entre 10^{-16} A et 10^{-3} A. Ce dernier est relié au passage à haute résistance d'isolation par l'intermédiaire d'un câble de type BNC, et par un bus à un micro-ordinateur .

Ce dispositif de mesure a été automatisé en installant une interface de type GPIB (IEEE 488) entre le micro-ordinateur et l'électromètre et en réalisant un programme en basic permettant le pilotage de ce dernier.

II - DISPOSITIF DE HAUTE PRESSION

Ce dispositif , monté au Laboratoire de Génie Electrique de Toulouse par T.G.Hoang [2], permet d'effectuer des mesures de courant sous pression hydrostatique. Comme le précédent, il comporte essentiellement quatre parties :

- une enceinte de haute pression
- un régulateur de température
- un générateur de pression.
- et des circuits électriques

II .1- Enceinte et Générateur de pression

Le laboratoire de Génie Electrique possède deux cellules dont l'une est représentée en photo 2. L'enceinte de volume intérieur égal à 100cm^3 , que nous avons utilisée, est un cylindre à deux enveloppes fermé par deux obturateurs. L'obturateur sur lequel est placé le porte échantillon possède une traversée à haute résistance d'isolement en saphir et trois traversées constituées de cônes métalliques enrobés d'une gaine thermorétractable et d'une couche de téflon en feuilles minces.

La température de l'enceinte est régulée grâce à un système de circulation de fluide à travers un serpentin disposé entre l'âme et la frette. Elle est donnée à 0.1°C près, par un thermocouple cuivre-constantan

Le générateur de pression est constitué de deux étages de compression (figureII-3). Le premier étage ou transmetteur permet d'amener le gaz provenant d'une bouteille d'azote (120 à 200 bars) à 2500 bars. Le second étage ou sur presseur permet d'atteindre 10000 bars. Afin de protéger l'expérimentateur et l'appareillage électrique, le dispositif de haute pression est isolé à l'intérieur d'une chambre conçue à cet effet.

II -2-Circuit électrique de mesure

Le circuit électrique est similaire à celui qui a été décrit précédemment

La haute tension est obtenue à partir d'une série de piles de 67.5 volts chacune. Le courant électrique est mesuré à l'aide d'un électromètre Keithley 642 pouvant déceler des courants de l'ordre de 10^{-17} ampère et relié à un micro-ordinateur qui enregistre les valeurs affichées par ce dernier.

III . DISPOSITIF DE METALLISATION DES ECHANTILLONS :

Les échantillons , que nous avons utilisés, se présentent sous forme de films d'épaisseur 25 et 100 μ m. Des électrodes circulaires en aluminium, d'environ 1cm de diamètre, ont été déposées sur les deux faces du polymère (figure II-4) par évaporation thermique sous vide pour garantir un bon contact électrique.

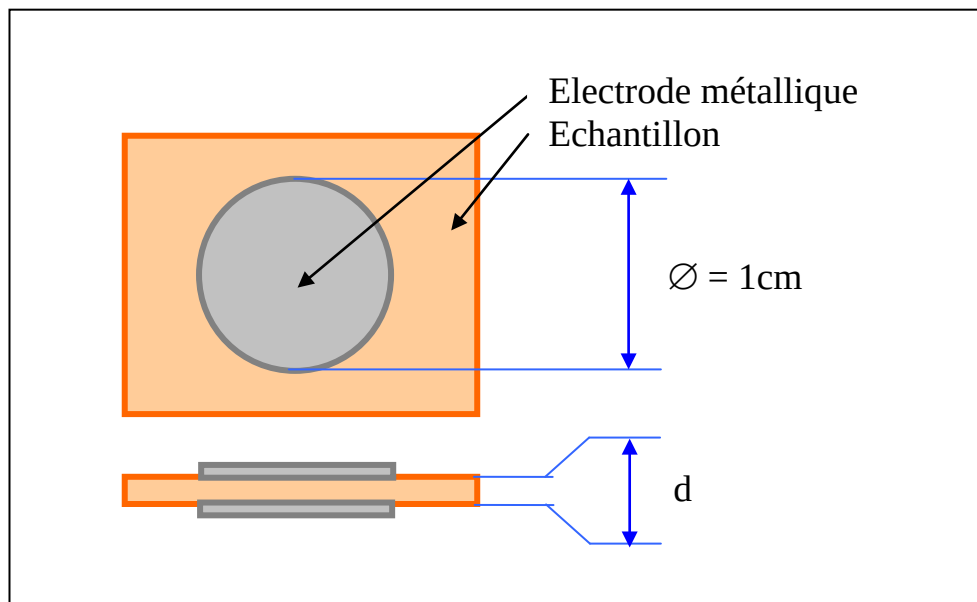


FIGURE II-4 : Structure des échantillons métallisés

Les films de polymère sont placés entre deux masques identiques munis d'orifices circulaires en regard, ce qui permet d'avoir les deux électrodes représentées en figure (II-4). Le procédé de métallisation est le suivant : Le matériau (aluminium), qui servira à la métallisation, est d'abord dégraissé dans l'acétone bouillante puis séché. Il est ensuite déposé sous forme de morceaux dans un creuset en tungstène qui sert aussi de résistante chauffante. Une fois le vide (de l'ordre de 10^{-6} torr) atteint dans la cloche, le passage d'un courant de 40 A à travers le creuset permet l'élévation de la température du métal jusqu'à son évaporation.

IV. PROCEDURE DE MESURE :

Dans la plupart des cas le courant dans un isolant varie très rapidement les premières secondes et de plus en plus lentement au fur et à mesure que le temps passe, pour cette raison, il est nécessaire de représenter le courant et le temps sur des échelles logarithmiques. Les caractéristiques courant-temps ne peuvent pas être enregistrées directement sur table traçante. A cet effet un programme a été élaboré pour prélever les valeurs du courant toutes les secondes pendant les dix premières secondes, puis toutes les 10 s les 90s suivantes, toutes les 100 s les 900 s suivantes et ainsi de suite. Ce programme permet aussi d'initialiser et d'effectuer tous les réglages de l'électromètre (remise à zéro, choix du calibre, affichage etc.) avant chaque mesure.

Avant chaque expérience, les échantillons métallisés sont court-circuités pendant plusieurs heures pour éliminer les charges résiduelles contenues dans le matériau. Après avoir effectué un vide primaire, on injecte l'azote pour revenir à la pression atmosphérique. On procède ensuite au chauffage de l'enceinte jusqu'à la température de consigne. Lorsque celle ci est atteinte et l'équilibre thermique établi, on branche la source de tension et procède à la mesure du courant (figure II-5). L'application d'un échelon de tension à l'échantillon fait apparaître un courant $I_c(t)$ décroissant dans le temps appelé courant de charge ou de polarisation (figure II-6).

La mise en court-circuit de l'échantillon, après polarisation, permet d'enregistrer le courant de décharge ou de résorption $I_r(t)$, de signe opposé au courant d'absorption. Lorsque l'échantillon est totalement déchargé, l'opération est renouvelée à la même température et à une tension plus élevée (figure II-5). Ces séries de mesures sont répétées à d'autres températures.

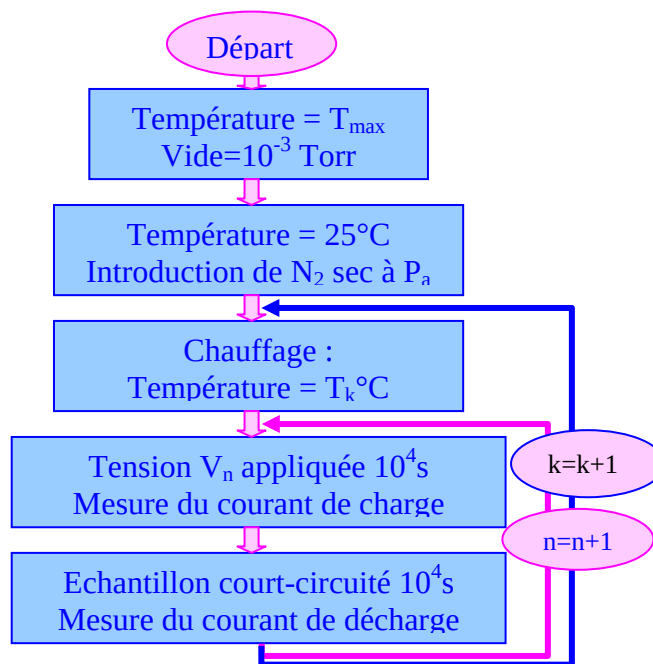


Figure II-5 : Procédure expérimentale.

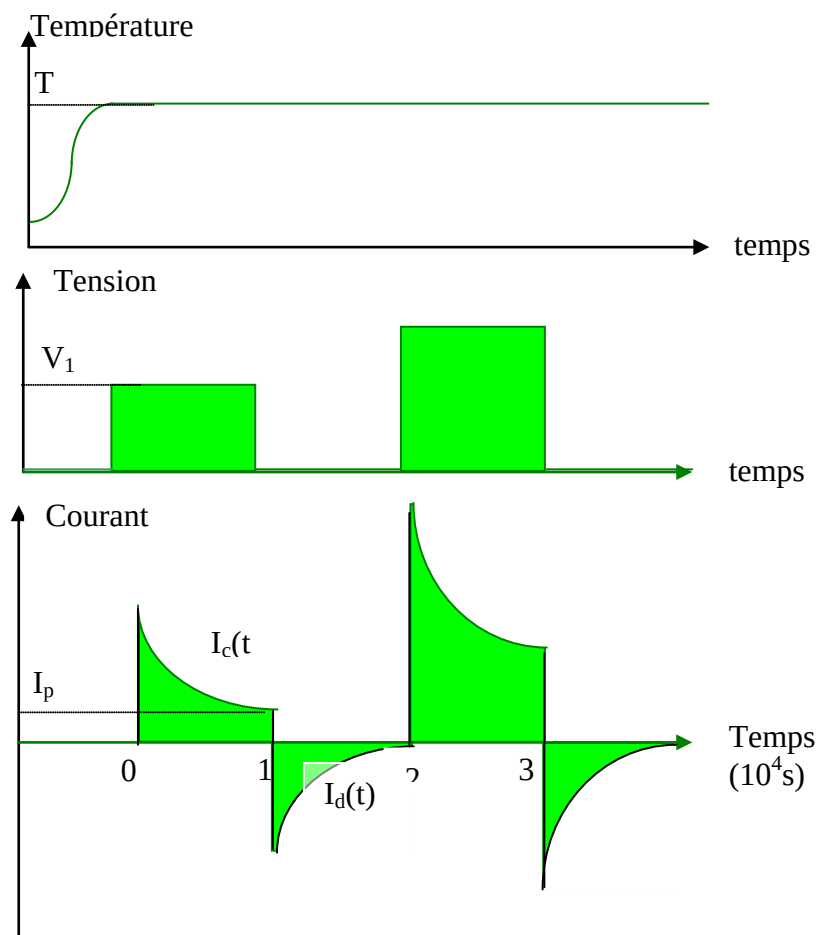


Figure II-6 : Principe de mesure du courant

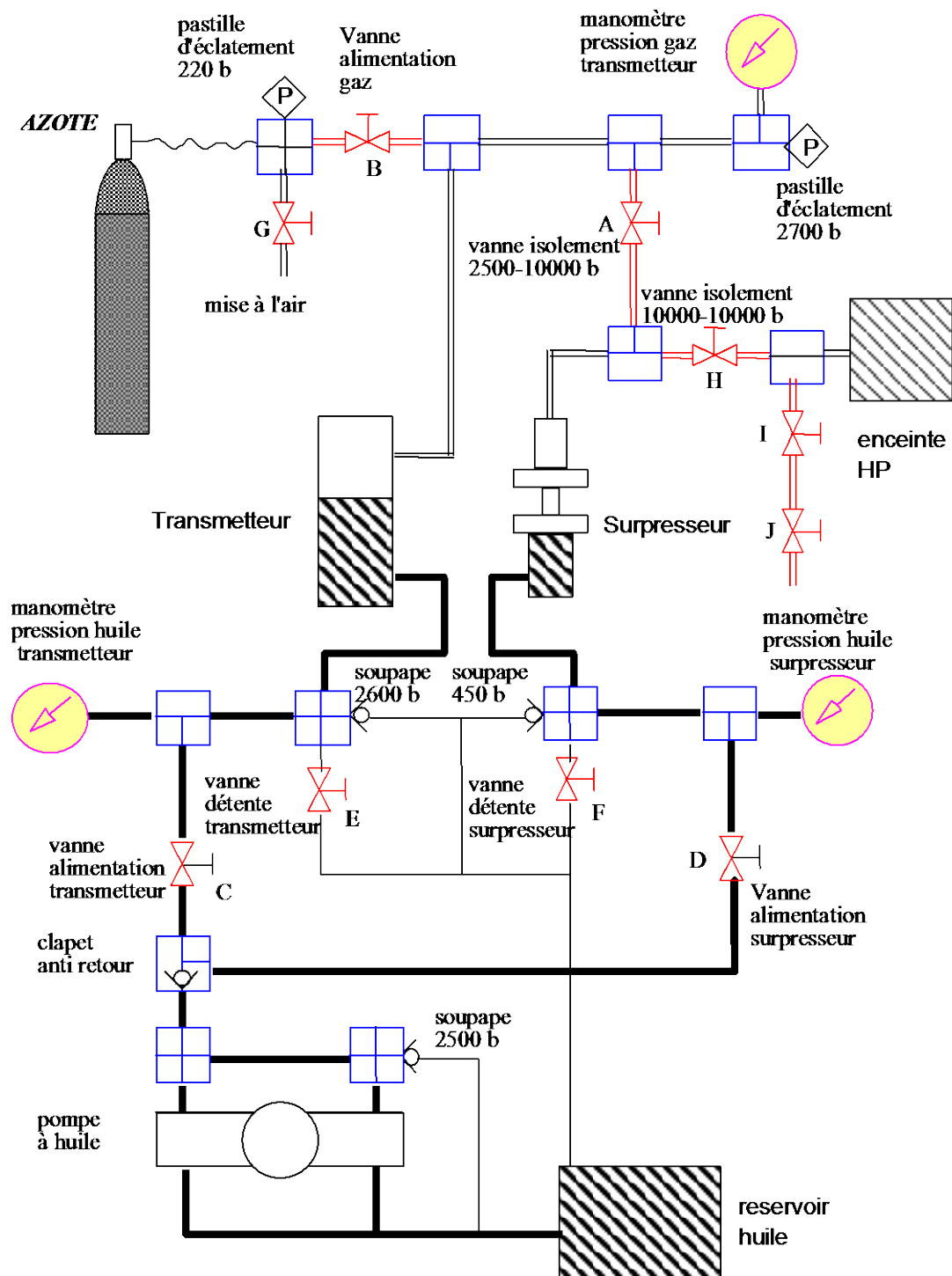


Figure II-3 : Générateur de pression à deux étages

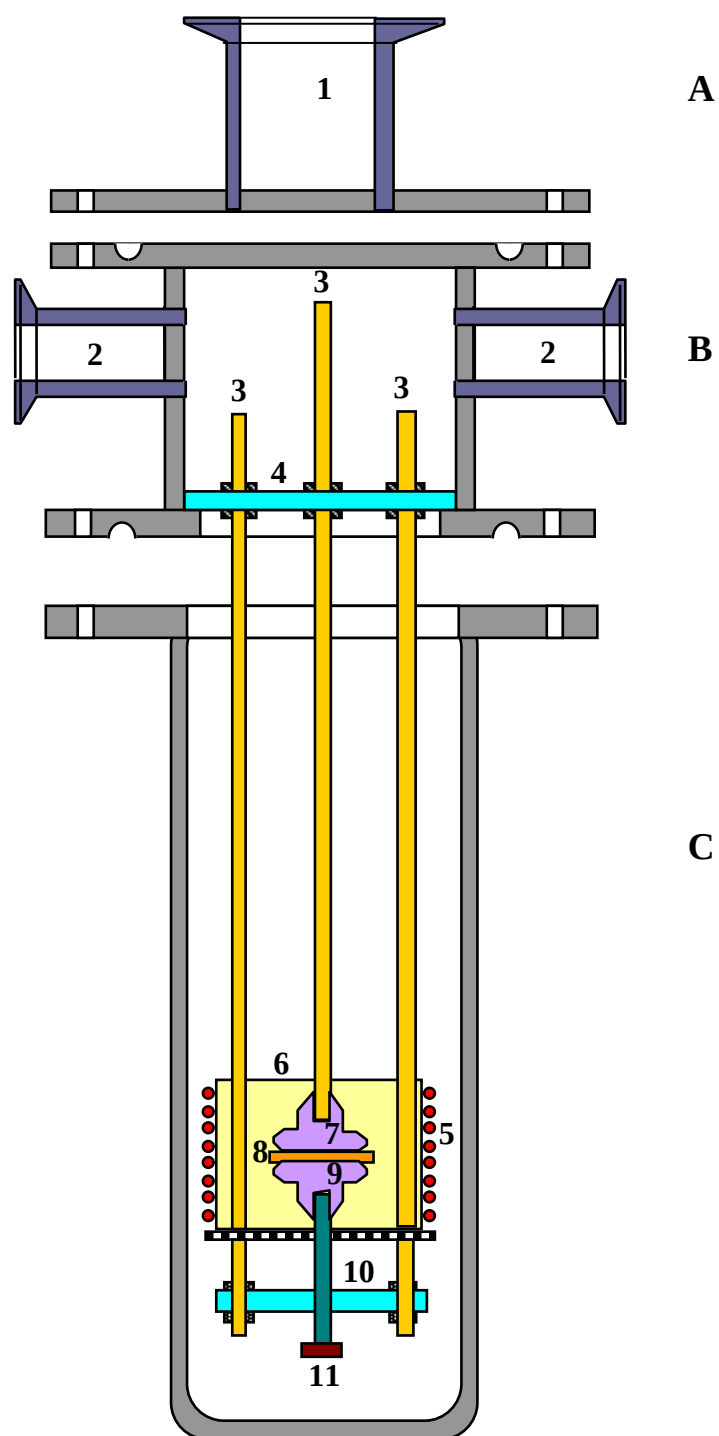


Figure II-2 : Schéma en coupe de la cellule de mesure

Chapitre III :

LE POLYETHYLENE TEREPHTHALATE (PET)

Chapitre III

LE POLYETHYLENE TEREPHTALATE (P.E.T)

I. LE MATERIAU

Le polyéthylène téréphtalate (PET) dont la formule chimique est représentée sur la figure III-1 est préparé par une réaction de polycondensation du glycol et de l'acide téréphtalique en passant par l'intermédiaire du téréphtalate diméthyle.

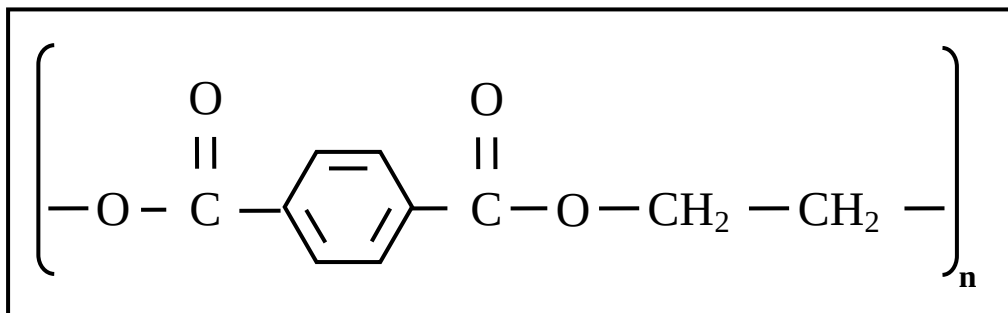


Figure III-1 : Formule chimique du PET

Les échantillons de PET que nous avons utilisés, nous ont été fournis par la société Rhône Poulenc. Leurs caractéristiques physiques sont portées sur le tableau III-1.

Le PET possède, comme le montre le tableau III-1, d'excellentes propriétés mécaniques aux températures moyennes, et de bonnes propriétés électriques. Bien que ses performances, en ce qui concerne les pertes, restent moyennes, il a une bonne rigidité diélectrique et une résistivité électrique élevée même en atmosphère humide. Ces excellentes

qualités lui ouvrent un large domaine d'utilisation en électrotechnique. Il est employé pour l'isolation des machines, des câbles et des fils électriques notamment en basse tension.

La possibilité d'obtenir des films de PET très minces, dont l'épaisseur peut atteindre 1µm, permet d'utiliser ce matériau pour la fabrication des condensateurs.

Caractéristiques physiques	Valeurs	Conditions d'essais
Masse volumique (g/cm ³)	1,395	
Module de Young (Pa)	$3,4 \cdot 10^9$	
Température de fusion (°C)	$T_f = 255$	
Température de transition vitreuse (°C)	$T_g = 73$	
Conductivité thermique (W / m °K)	0,16	
Chaleur spécifique volumique (J / m ³ °K)	$1,74 \cdot 10^6$	
Absorption d'eau en 24 heures	< 0,5 %	
Permittivité relative	$3 \leq \epsilon_r \leq 3,2$	$50 \text{ Hz} \leq f \leq 10^6 \text{ Hz}$
Facteur de pertes diélectriques	$10^{-3} \leq \tan \delta \leq 10^{-1}$	$50 \text{ °C} \leq T \leq 200 \text{ °C}$ à 60 Hz
Résistivité électrique (Ωcm)	$10^{12} \leq \rho \leq 10^{20}$	$60 \text{ °C} \leq T \leq 100 \text{ °C}$
Tension de claquage (kV)	9	pour une épaisseur de 50 µm

Tableau III-1 : Caractéristiques physiques du PET

D'un autre coté le polyéthylène téréphtalate trouve de nombreuses applications dans les autres secteurs de l'industrie : Emballage, fabrication de bouteilles pour les boissons gazeuses, de films pour la photographie, de transparents pour les rétroprojecteurs etc.

Nos échantillons de PET se présentent sous forme de films de 25µm d'épaisseur, et les électrodes déposées sous vide sont en aluminium.

II. RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les principaux résultats, obtenus lors de la charge, sont représentés sur les figures III-2 à III-5. On note que l'allure des courbes diffère selon que la température est inférieure ou supérieure à T_g température de transition vitreuse.

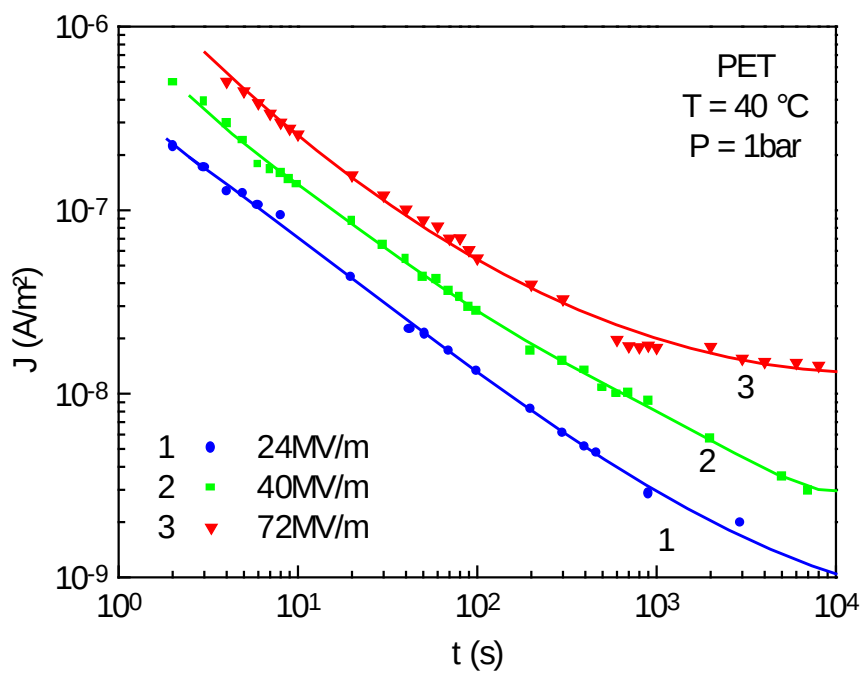


Figure III-2 : Courants de charge à $T = 40^\circ\text{C} < T_g$

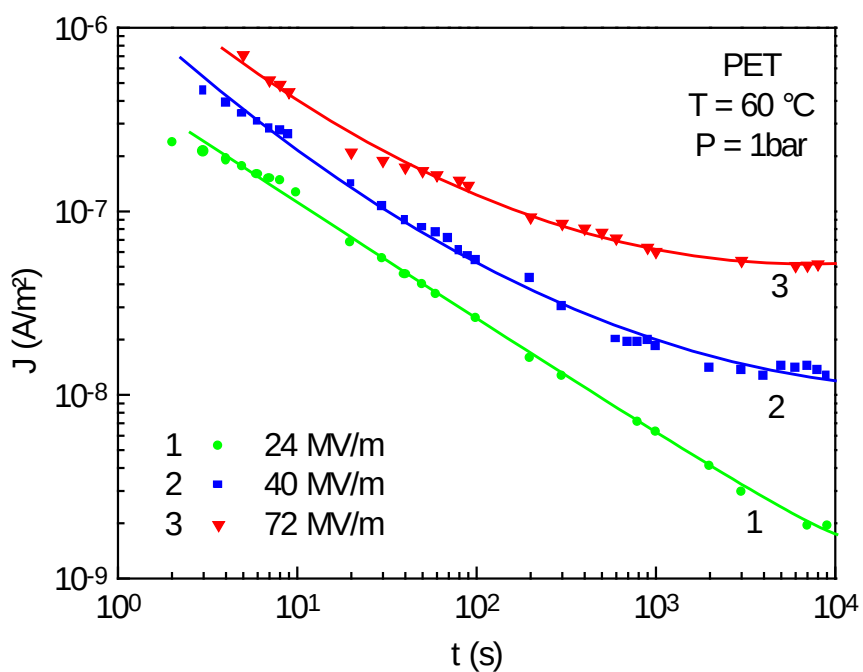


Figure III-3 : Courants de charge à $T = 60^\circ\text{C} < T_g$

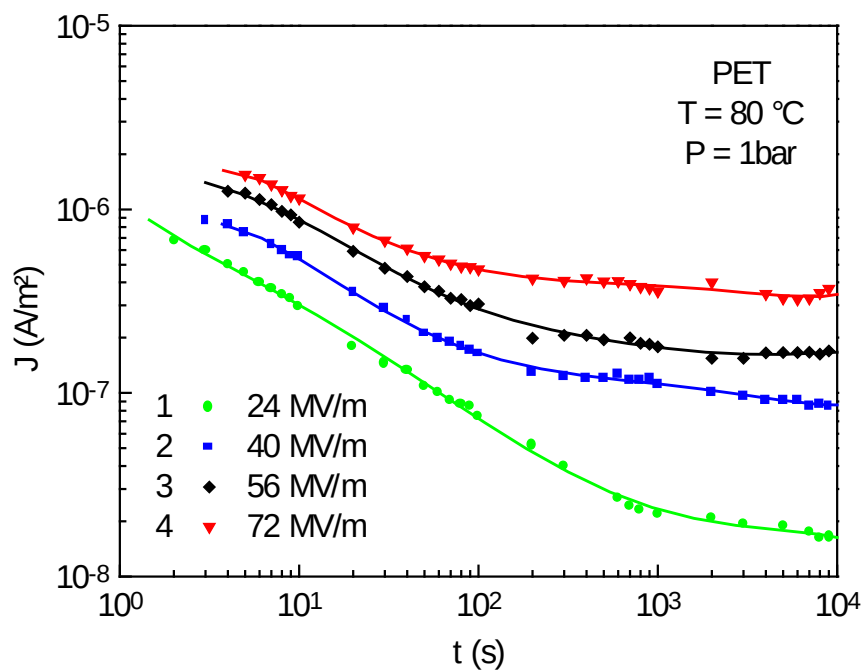


Figure III-4 : Courants de charge à $T = 80^\circ\text{C} > T_g$

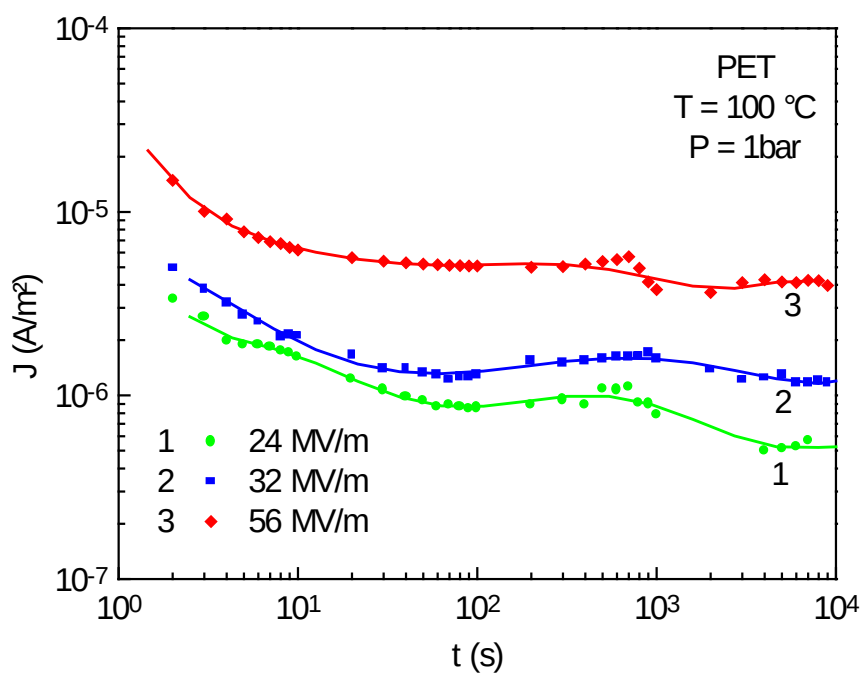


Figure III-5 : Courants de charge à $T = 100^\circ\text{C} > T_g$

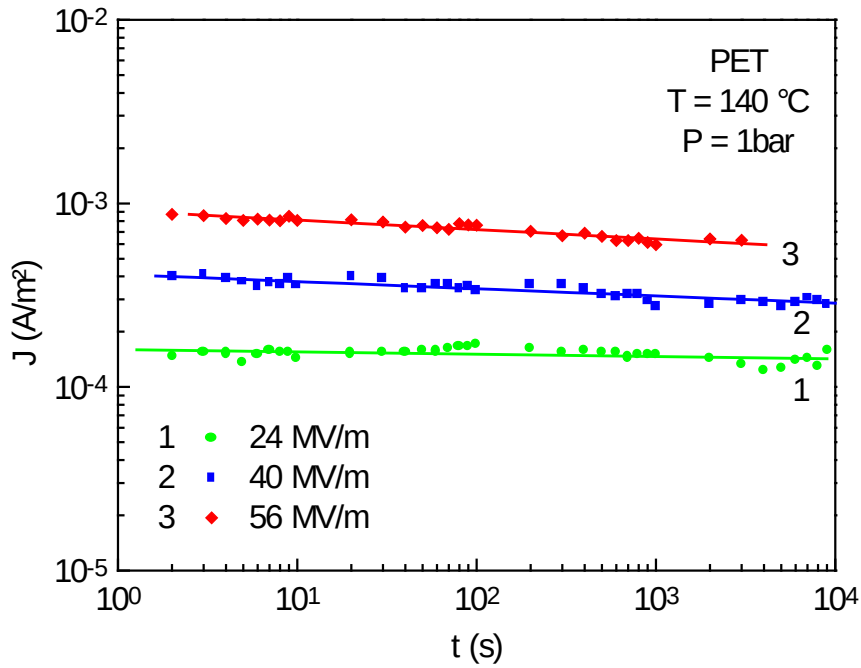


Figure III-6 : Courants de charge à $T = 140^{\circ}\text{C} > T_g$

A l'état vitreux ($T < T_g$), les figures III-2 et III-3 montrent que le courant décroît de façon monotone en fonction du temps et se stabilise lorsque le régime permanent est atteint. On remarque que la durée du régime transitoire diminue nettement à mesure que l'intensité du champ électrique augmente. C'est ainsi qu'avec un champ de 72 MV/m le régime permanent est atteint au bout de trente minutes environ alors qu'à 24 MV/m il faut une dizaine d'heures pour mesurer le courant permanent. L'écart entre les courants isochrones mesurés à 10, 100, 1000 et 10000 secondes se creuse au fur et à mesure que le temps s'écoule.

Au-delà de T_g , (figures III-4 et III-5), les courants de charge semblent présenter un maximum entre 10^2 et 10^3 secondes. Ce dernier est plus accentué à 100°C . A haute température, $T = 140^{\circ}\text{C}$ (figure III-6), le courant électrique décroît très lentement.

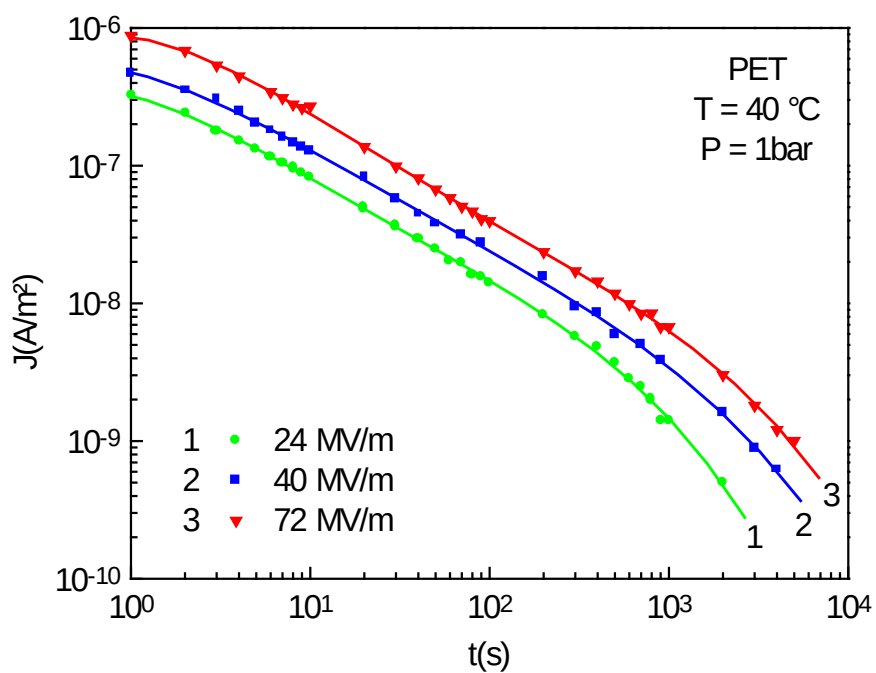


Figure III-7 : Courants de décharge à $T = 40^\circ\text{C} < T_g$

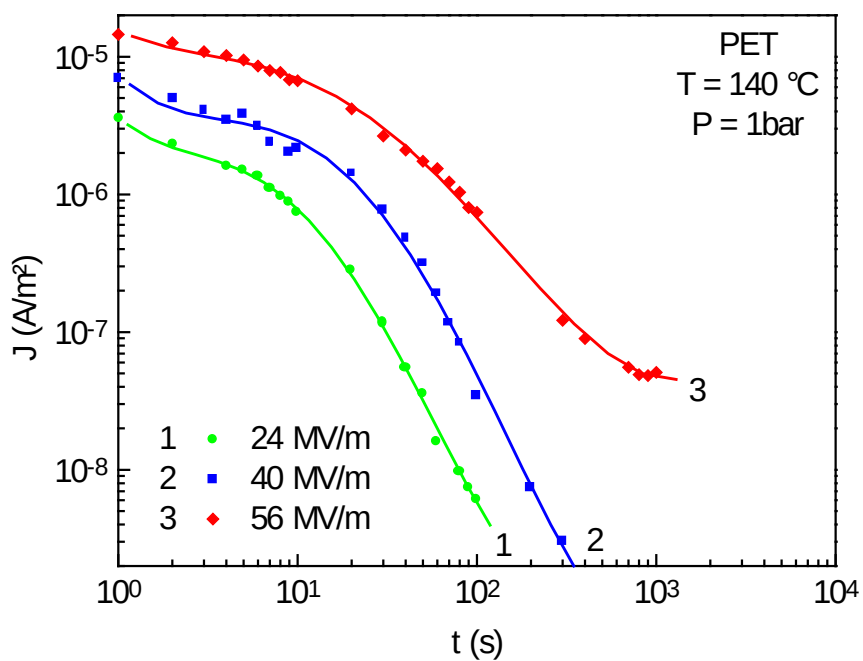


Figure III-8 : Courants de décharge à $T = 140^\circ\text{C} > T_g$

Les figures III-7 et III-8 représentent les courants de décharge, à l'état vitreux $T = 40^{\circ}\text{C}$. et à l'état caoutchoutique $T = 140^{\circ}\text{C}$. Là encore les courants ne présentent pas la même allure selon que l'on opère au dessous ou au dessus de T_g . Dans le premier cas, le courant décroît régulièrement pour atteindre au bout de quelques heures une valeur pratiquement nulle. Par contre, dans le second cas, les courbes présentent un point d'inflexion et la durée de la décharge augmente à mesure que le champ électrique devient intense.

III. REGIME PERMANENT

L'étude de la conduction électrique, en régime permanent, dans le polyéthylène téréphtalate a fait l'objet de nombreuses études depuis une trentaine d'années. Une étude bibliographique est donnée dans la thèse de magister de Z. Amalou [1]. Il ressort de cette étude que la nature des porteurs de charge peut être aussi bien ionique qu'électronique. D'autre part de nombreux mécanismes de conduction (effet Schottky, Poole-Frenkel, charge d'espace, conduction ionique etc.) ont été invoqués pour expliquer les résultats obtenus.

III. 1. Effet de la température

La courbe $\text{Log } J = f(1/T)$, représentée sur la figure III-9, met en évidence un phénomène d'activation thermique et un changement de pente au voisinage de la température de transition vitreuse. Les énergies d'activation déduites des pentes des droites obtenues, en supposant une loi d'Arrhenius :

$$J = J_o \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right)$$

sont :	$E_a = 0,6 \text{ eV}$	lorsque	$T < T_g$
	$E_a = 1,7 \text{ eV}$	lorsque	$T > T_g$

Ces valeurs sont de l'ordre de celles trouvées dans la littérature

Matsumoto et al [2]	$E_a = 1,3 \text{ eV}$	pour	$T > 90^{\circ}\text{C}$
Lilly et al [3]	$E_a = 1,9 \text{ eV}$	avec	$40^{\circ}\text{C} < T < 120^{\circ}\text{C}$.

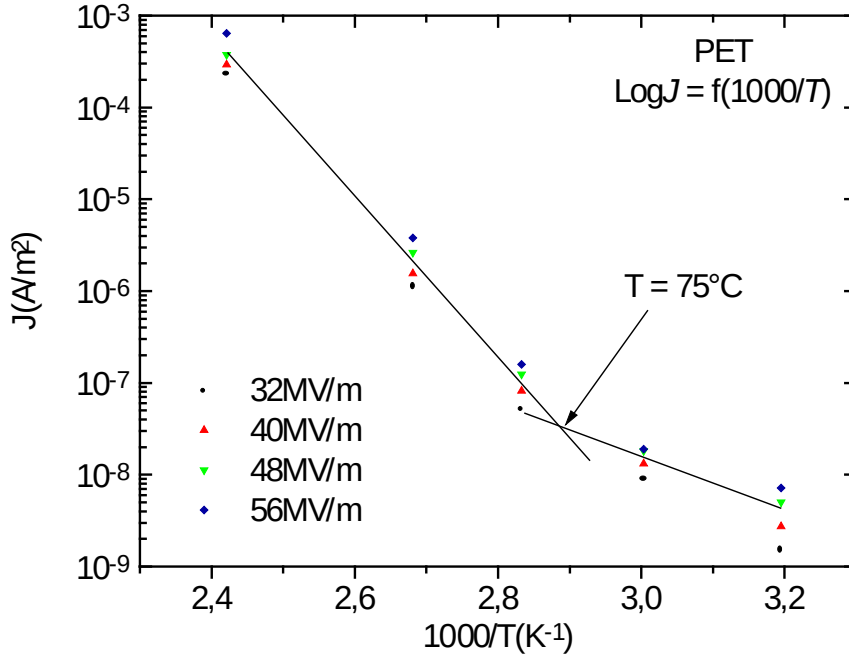


Figure III-9 : Courants permanents : Effet de la température.

Des mesures effectuées sur des échantillons similaires par N.Zebouchi et al [4] en faisant intervenir la pression hydrostatique, ont montré une prédominance de porteurs de charges d'origine ionique, que la température soit inférieure ou supérieure à T_g température de transition vitreuse.

III. 2. Effet du champ électrique

Les résultats expérimentaux (figures III-2 à III-6) mettent en évidence une augmentation de la densité de courant avec le champ électrique appliqué. Dans le cas d'une conduction générée par des porteurs d'origine ionique, la théorie (Ch.I) montre que la densité de courant s'exprime par :

$$J = 2ne\lambda v \exp\left(-\frac{\phi_0}{kT}\right) \text{Sh}\left(\frac{eF\lambda}{2kT}\right) \quad (\text{III-1})$$

A haut champ, on peut faire l'approximation suivante :

$$J = J_o \exp\left(-\frac{2\phi_0 - eF\lambda}{2kT}\right) \quad (\text{III-2})$$

Afin de déterminer les distances de saut mises en jeu, ainsi que leur évolution avec la température, nous avons représenté sur la figure III-10, les courbes $\text{Log } J = f(F)$.

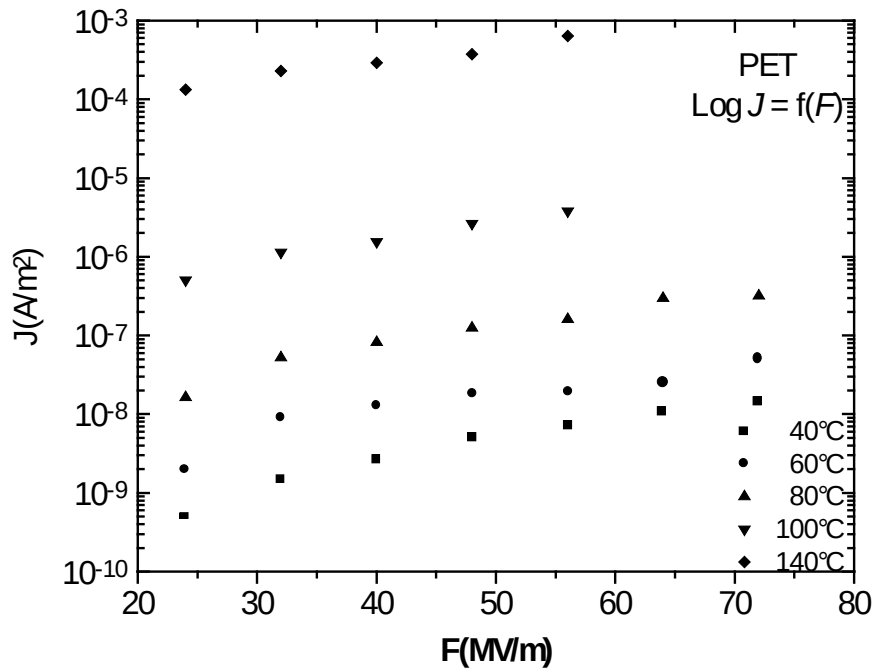


Figure III-10 : Courants permanents : Effet du champ électrique.

Les valeurs de la distance de saut λ , obtenues à partir des pentes à haut champ, sont résumées dans le tableau III-2

$T(^{\circ}\text{C})$	40	60	80	100	140
$\lambda(\text{\AA})$	23	24	26	32	32

Tableau III-2 : Valeurs de la distance de saut λ en fonction de la température.

Celles-ci sont comparables à celles obtenues par Hanscomb et al [5]. Pour les températures comprises entre 40°C et 80°C, la valeur de λ , bien qu'elle augmente légèrement, se situe autour de 25Å. Pour les températures supérieures à 80°C, λ a une valeur constante et plus élevée que dans la gamme précédente.

Encore une fois on constate un changement de comportement au voisinage de la température de transition vitreuse.

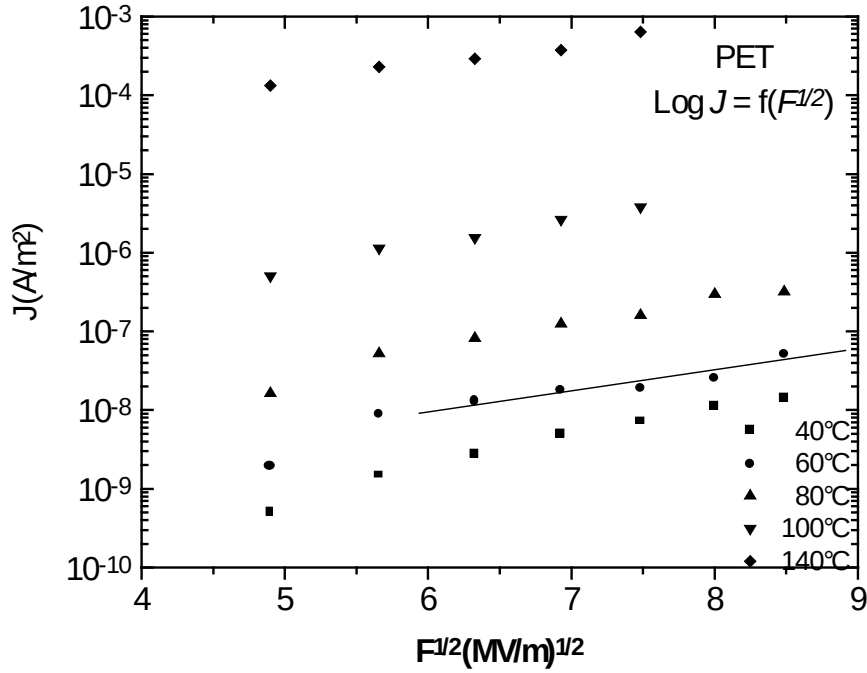


Figure III-11 : Courants permanents : Effet du champ électrique.

Afin de mettre en évidence les mécanismes intervenant à l'interface métal-isolant, nous avons tracé sur la figure III-11, les courbes $\text{Log } J = f(F^{1/2})$.

En effet, si on considère un mécanisme d'interface de type Schottky, le seul possible dans les conditions présentes, la densité de courant est donnée par l'équation (Ch.I) :

$$J_s \propto \exp\left(-\frac{\phi_o - \beta_s \sqrt{F}}{kT}\right) \quad (\text{III-3})$$

Pour les températures $T < T_g$, et pour les champs faibles, les valeurs expérimentales s'écartent de cette loi. Pour le reste, les valeurs de $\beta_{s\text{-exp}}$, calculées à partir de la pente de la courbe à haut champ, sont comparées à la valeur théorique $\beta_{s\text{-théo}}$, (calculée en prenant $\epsilon_r = 3,2$). On obtient un rapport moyen égal à l'unité. Un bon accord est obtenu entre ce modèle et les résultats expérimentaux dans les conditions particulières sus-citées.

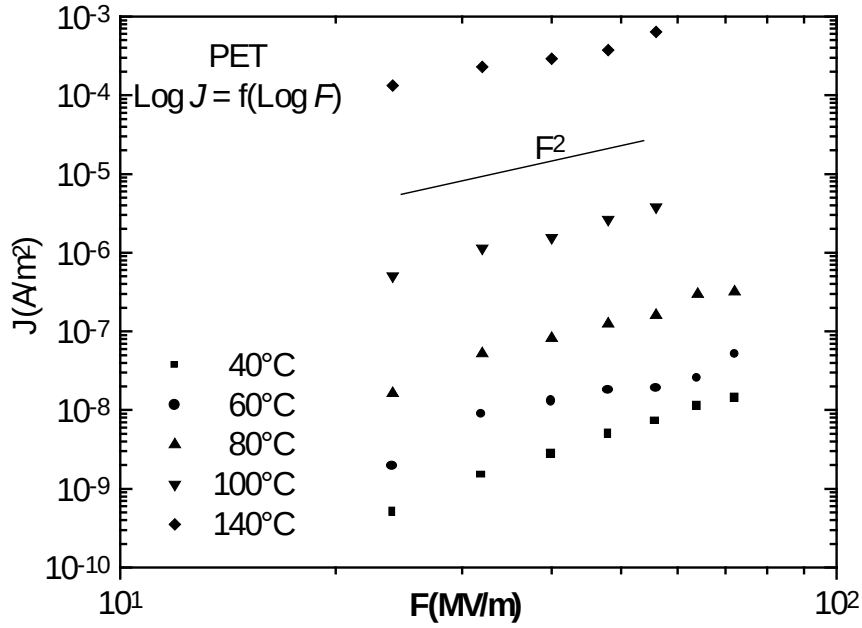


Figure III-12 : Courants permanents : Effet du champ électrique.

Les courbes $\text{Log } J = f(\text{Log } F)$ de la figure III-12 ne présentent pas un comportement ohmique dans toute la gamme de champ et pour toutes les températures. Pour les températures inférieures à T_g , les pentes n des courbes diminuent et tendent vers $n = 2$, pour les températures supérieures à T_g , les courbes peuvent être assimilées dans toute la gamme de champ, à des droites de pente $n = 2$. Dans ce cas, le courant peut être exprimé par la loi (ch.I):

$$J = \frac{9}{8} \varepsilon \mu \theta \frac{V^2}{d^3} \quad (\text{III-4})$$

En résumé, on peut dire que, dans le volume de l'isolant, la conduction est due essentiellement à un mouvement d'ions en présence de charges d'espace. A $T > T_g$ vient se superposer un phénomène d'injection d'électrons à l'interface métal-isolant. A $T < T_g$ cet effet ne se manifeste que pour les valeurs élevées du champ électrique.

IV. REGIME TRANSITOIRE

A l'état vitreux ($T < T_g$) et aux temps courts, les courbes représentées sur les figures III-14 et III-15, obtenues à 40°C et avec des champs $F = 24$ MV/m et 72 MV/m, mettent en évidence un recouvrement entre les courants d'absorption I_a et de résorption I_r . Ces courants sont, par conséquent, dus à un mécanisme dipolaire. Ceci est confirmé par la figure III-13 qui

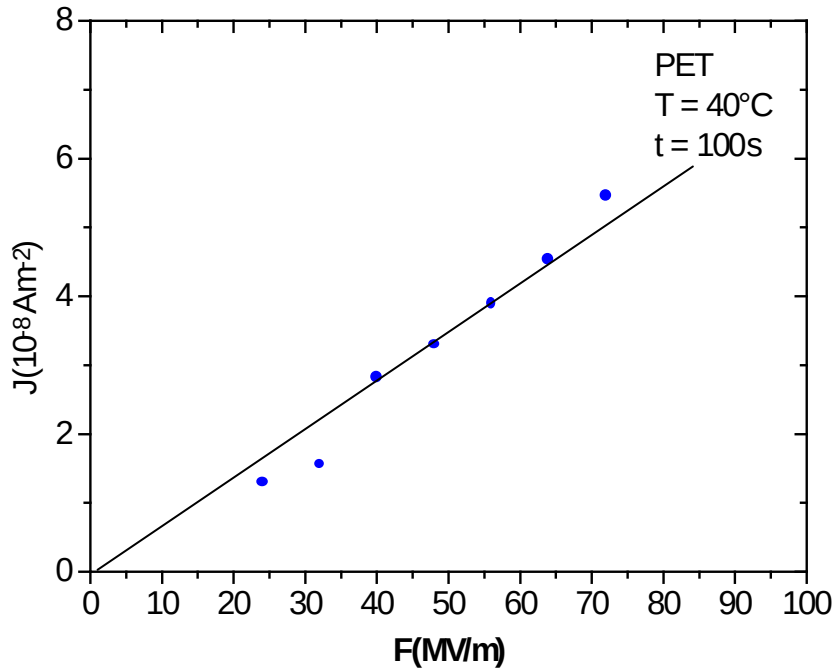


Figure III-13 : Courants isochrones à $t = 100$ s et $T = 40^\circ\text{C}$ en fonction du champ électrique.

montre une variation linéaire, avec le champ appliqué, des courants isochrones relevés au bout de 100 secondes. Ces courants obéissent à la loi Curie-Von Schweidler $I = A t^{-n}$

avec $n = 0,78$ pour $F = 24$ MV/m et $F = 72$ MV/m

aux temps longs, I_a et I_r ne sont plus superposables. Le phénomène de conduction, généré par le mouvement des charges libres, commence à prendre de l'importance.

Pour une même température ($T = 40^\circ\text{C}$ par exemple) ce phénomène se manifeste plus tôt à mesure que le champ électrique augmente :

Au bout de	1000s	pour	$F = 24$ MV/m
et	200s	lorsque	$F = 72$ MV/m

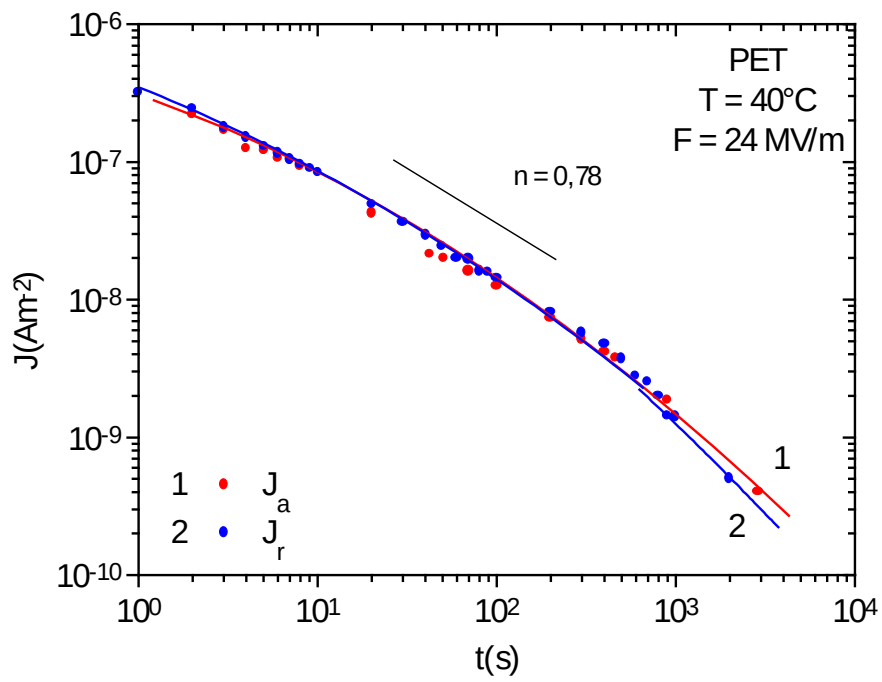


Figure III-14 : Courants d'absorption et de résorption à $T = 40^{\circ}\text{C}$ et $F = 24 \text{ MV/m}$.

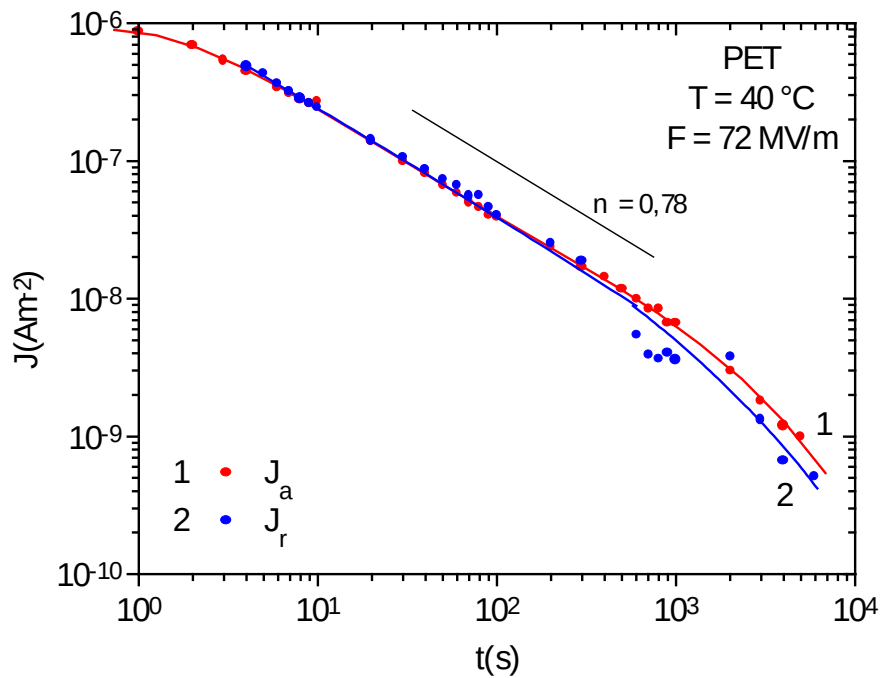


Figure III-15 : Courants d'absorption et de résorption à $T = 40^{\circ}\text{C}$ et $F = 72 \text{ MV/m}$.

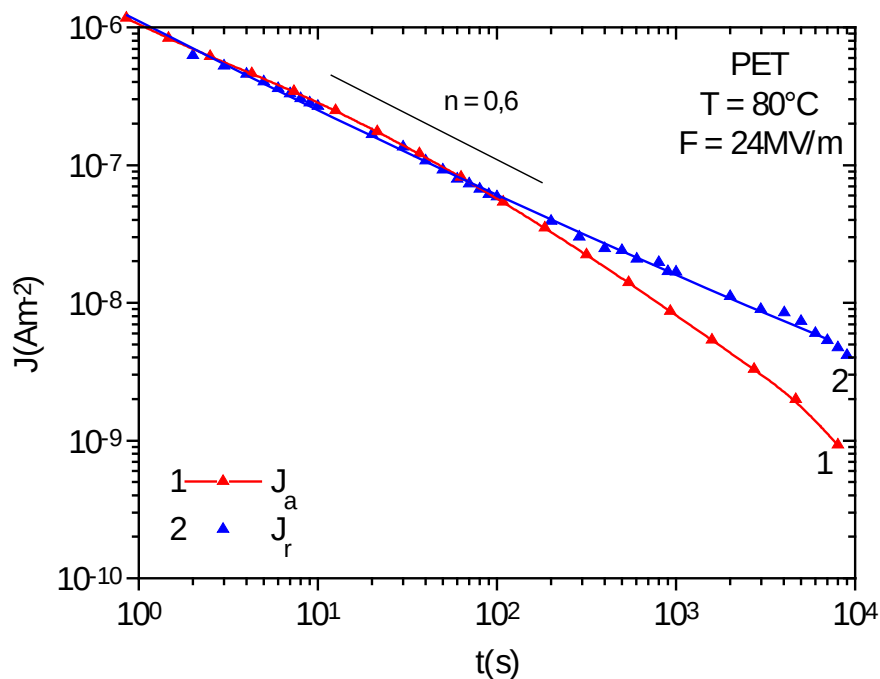


Figure III-16 : Courants d'absorption et de résorption à $T = 80^{\circ}\text{C}$ et $F = 24\text{MV/m}$

A l'état caoutchoutique ($T > T_g$) la superposition des courants ne peut se faire qu'à des températures légèrement supérieures à T_g , aux faibles champs, et aux temps courts. Sur la figure III-16, la courbe $\text{Log } J = f(\text{Log } t)$, relevée à 80°C ($T_g = 73^{\circ}\text{C}$) avec $F = 24\text{ MV/m}$, présente l'allure d'une droite de pente $n = 0.60$, durant les 100 premières secondes seulement.

A plus hautes températures l'examen des courbes, représentées sur les figures III-6 et III-8 par exemple, montre que la symétrie entre courants d'absorption et de résorption n'existe plus. La relaxation dipolaire devient alors négligeable devant le mouvement des charges libres.

V. INTERPRETATION DES RESULTATS DU REGIME TRANSITOIRE .

V. 1. Mouvement des charges au cours de la polarisation. $T < T_g$

Lorsqu'on applique un champ électrique constant, à température constante, à un polymère les unités polarisables et les charges libres, qui existent ou qui prennent naissance, vont subir différents mouvements. La polarisation induite s'établit presque instantanément. Elle est suivie de la polarisation dipolaire : Ce sont les groupements latéraux de faible encombrement qui relaxent les premiers, puis interviennent les entités polarisables plus volumineuses et enfin c'est la chaîne principale qui se meut sous l'action du champ. A haute température et lorsque le champ est intense, un mouvement de charges libres prend naissance dans le matériau, il en résulte un phénomène de conduction. Si ces charges sont gênées dans leur déplacement, elles s'immobilisent, s'accumulent au niveau des discontinuités ou près des électrodes et forment des charges d'espace. Lorsque le matériau est entièrement polarisé (polarisation dipolaire et par charges d'espace) seul un courant permanent, dû à un mouvement de charges libres, circule dans le circuit extérieur.

L'annulation du champ électrique et la mise en court-circuit de l'échantillon, se traduit par un phénomène de dépolarisation. La polarisation induite s'éteint immédiatement, les dipôles se réorientent au hasard, en raison de l'agitation thermique, et les charges d'espace diffusent à travers le milieu, le matériau retrouve son état initial.

L'étude de ces phénomènes par spectroscopie diélectrique DRS (Dielectric Relaxation Spectroscopy), se fait à l'aide d'un champ électrique de fréquence f . Ces spectres font apparaître des pics de relaxation diélectrique : le premier (pic α) résulte des mouvements de grandes amplitudes puis lorsque la fréquence augmente on obtient un pic β dû à la rotation d'unités polarisables moins volumineuses et ensuite un pic γ etc.

La relaxation des charges d'espace intervient aux très basses fréquences et se manifeste par un pic ρ .

L'étude de ces mécanismes peut se faire également par des mesures de courants de dépolarisation thermostimulés TSC (Thermally Stimulated Current) [6, 7].

Les pics γ , β , α et ρ apparaissent, sur les thermogrammes, au fur et à mesure que la température croît. Le pic α se manifeste au voisinage de la transition vitreuse, les relaxations β et γ interviennent aux basses températures et le pic ρ au delà de T_g

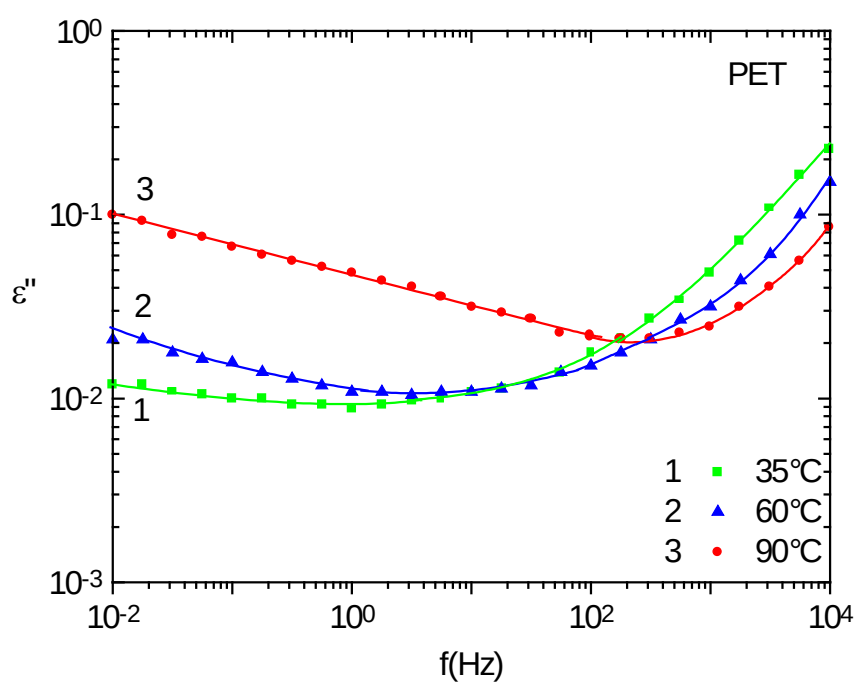


Figure III-17 : ε'' en fonction de f : mesures effectuées au pont d'impédance par Neagu et al [8]

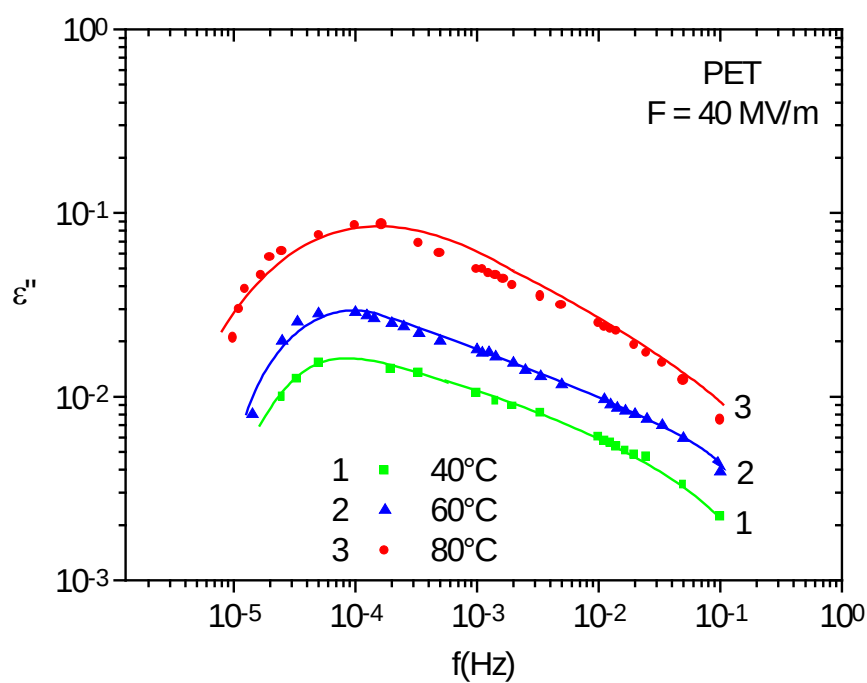


Figure III-18 : Courbes déduites des courants d'absorption par la méthode de Hamon

Nous avons reporté sur la figure III-17 les résultats des expériences, effectuées par DRS sur du PET par Neagu et al [8] à 35°C, 60°C et 90°C. Le pic obtenu entre 10^4 et 10^5 Hz est attribué à la relaxation β . On note en basses fréquences, entre 10 et 10^2 Hz, l'amorce des pics ρ dû à la relaxation des charges libres. Sur cette figure le pic α est masqué par ces deux relaxations. La figure III-18 représente l'allure des courbes $\varepsilon'' = f(f)$ déduites, par la méthode de Hamon (voir chapitre I § III-2), des mesures de courants d'absorption que nous avons effectuées. Ces courbes complètent celles de Neagu représentées sur la figure III-17 et montrent que les pics ρ présentent, à ces températures, des maxima au voisinage de 10^4 Hz. Ces maxima se déplacent vers des fréquences plus élevées à mesure que la température augmente. C'est ainsi que, dans le même article, Neagu a relevé un pic ρ à 180°C dont le maximum se situe à 0.1Hz.

Benrekaa [9] a étudié la relaxation diélectrique dans le PET, par des mesures de TSC, en opérant avec des champs faibles et des temps de polarisation courts (5minutes) afin d'éliminer toute relaxation de charges d'espace. Les thermogrammes obtenus mettent en évidence deux pics principaux l'un à basse température vers - 95°C, attribué à la relaxation β et l'autre, le pic α , au voisinage de la température de transition vitreuse à 75°C.

Neagu [10] a effectué des mesures de TSC sur du PET avec des champs intenses et des durées de polarisation plus longues (840 minutes) il obtient un large pic entre 60°C et 120°C qu'il a décomposé en quatre pics élémentaires par la méthode des polarisations fractionnées à 85, 90, 105 et 125°C. Les trois derniers sont dus à des charges d'espace libérées des pièges ayant une distribution continue en énergie. Gorokhovatsky et al [11] et Tiehlen et al. [12] d'autre part ont eux aussi obtenu par la méthode TSC un pic α à 80°C et un pic ρ à 125°C en ce qui concernent les premiers et 160° C pour le seconds.

A partir de tous ces résultats et de ceux que nous avons obtenus on peut dire qu'en régime transitoire, pour des températures inférieures à T_g et aux champs faibles, les courants sont dus essentiellement à la polarisation diélectrique. La relaxation β qui se manifeste en premier, est due, dans le cas du PET, aux rotations des anneaux phényle de la chaîne principale, et à des mouvements des groupes glycol qui jouent le rôle de charnière entre les cycles de benzène [13, 14]. Ensuite intervient la relaxation α , qui constitue la manifestation diélectrique de la transition vitreuse. Elle est associée à des mouvements de grande amplitude de la chaîne principale. Enfin pour des temps plus longs ce sont les charges libres qui commencent à se déplacer.

V. 2. Mouvement des charges au voisinage de T_g et à haute température.

Au delà de T_g les mouvements des charges libres commencent à prendre de l'importance devant les mécanismes dipolaires à mesure que la température augmente et que le champ devient plus intense. La complexité du pic α obtenu par des mesures de TSC [8] montre que plusieurs mécanismes de conduction peuvent intervenir simultanément. Ces mécanismes, notamment ceux qui concernent la formation de la charge d'espace, ne sont pas bien compris. Cependant de nombreux auteurs s'accordent pour dire que, entre 70°C et 110°C, la relaxation α ne peut être expliquée uniquement par un processus dipolaire mais implique également l'effet de la charge d'espace [12, 15]: Ainsi le dépiégeage des charges est relié aux mouvements coopératifs de la chaîne polymérique c'est ce que Thielen [12] appelle un dépiégeage assisté par la relaxation dipolaire "Dipolar assisted detrapping". Ce résultat est en accord avec l'hypothèse de Lowell (Ch I § III-5).

Les résultats expérimentaux que nous avons obtenus à 100°C (figure III-5) peuvent être interprétés en considérant un mécanisme de conduction résultant d'un processus dipolaire et d'un mouvement de charges d'espace dans un diélectrique sans pièges.

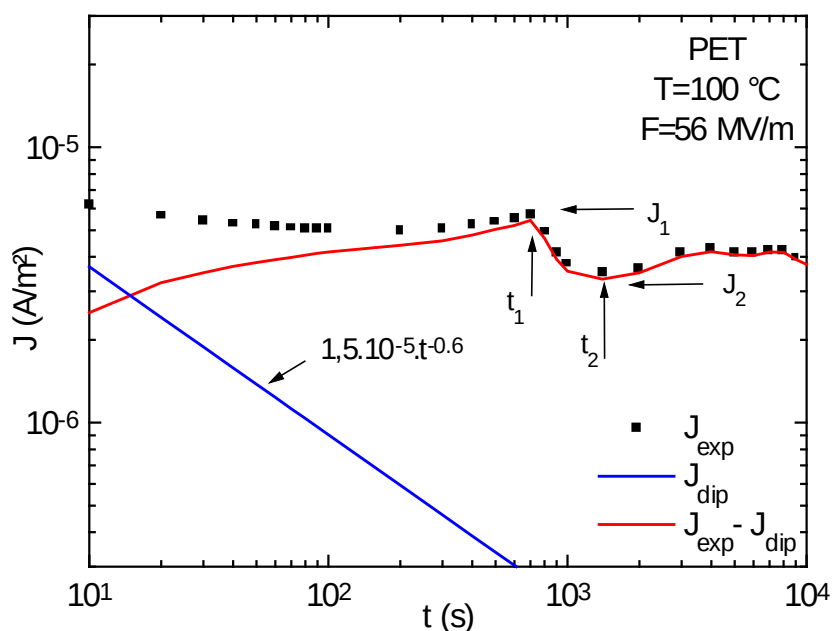


Figure III-19 : Courant transitoire limité par charges d'espace à $T = 100^\circ\text{C}$ et $F = 56\text{ MV/m}$.

La composante, d'origine dipolaire, du courant transitoire décroît au cours du temps selon la loi de Curie-Von Schweidler et prédomine au début de la charge du matériau, alors que l'autre composante intervient un peu plus tard et présente un comportement différent. Après avoir considéré le courant en t^{-n} , durant les premières secondes, on obtient l'expression de la composante dipolaire :

$$J(t) = 1,5.10^{-5}.t^{-0.61} \quad (\text{III-5})$$

Ensuite cette composante est retranchée du courant total, de sorte que le reste constitue la composante due à la charge d'espace.

La courbe portée en figure III-19 ressemble à celle obtenue dans la théorie d'un courant limité par charge d'espace (fig. I-13). En utilisant les notations relatives à cette théorie, les paramètres suivants ont pu être déterminés à partir des résultats obtenus à 100°C lorsque $F = 56 \text{ MV/m}$

$$\begin{array}{lll} J_0 = 2,51.10^{-6} \text{ A/m}^2 & J_1 = 5,42.10^{-6} \text{ A/m}^2, & t_1 = 700\text{s} \\ J_\infty = 4.10^{-6} \text{ A/m}^2 & J_2 = 3,32.10^{-6} \text{ A/m}^2 & t_2 = 1400\text{s} \end{array}$$

La valeur de J_0 est en réalité la valeur obtenue par extrapolation de la courbe puisque on ne peut accéder à la valeur expérimentale. Dans le tableau III-3 sont comparées les valeurs expérimentales et celles calculées à partir des expressions I-34 et I-35 :

Rapports	Valeurs théoriques	Valeurs expérimentales
t_2/t_1	1,91	2,0
J_1/J_0	2,72	2,2
J_1/J_2	1,22	1,6
J_1/J_∞	1,2 0	1,3

Tableau III-3 : Valeurs expérimentales et théoriques des rapports selon le modèle SCLC

Nous remarquons un bon accord entre ces deux valeurs

L'évolution de t_1 avec le champ électrique ne peut être obtenue avec précision à partir des courbes, surtout pour les champs faibles. Néanmoins, il est possible de vérifier si les valeurs de t_1 pour les champs autres que 56 MV/m, sont bien contenues dans l'intervalle prédit par la théorie.

Dans le cas d'un diélectrique sans pièges :

$$t_1 = 0.786 \frac{L^2}{\mu V} \quad (\text{III-6})$$

et si $24 < F < 56 \text{ MV/m}$ alors t_1 devrait varier entre 7.10^2 s et $1,6.10^3 \text{ s}$. Or sur la figure III-5 on voit bien que toutes les valeurs sont comprises entre 6.10^2 s et $1,5.10^3 \text{ s}$, même si le sens de variation n'est pas toujours respecté.

La valeur de μ déduite de t_1 est : $\mu = 5.10^{-16} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$.

Les résultats en régime permanent ont montré que $J \propto V^n$ avec une valeur moyenne $n = 2$, ce qui se rapporte à un courant limité par la charge d'espace avec un seul niveau énergétique de pièges.

A haute température , 140°C , les courants dus à la polarisation dipolaire s'effacent devant les courants de conduction. Le régime permanent a montré que les porteurs de charges sont constitués essentiellement par des ions. Ces porteurs sont libérés sous l'action du champ et de la température et se déplacent créant ainsi un courant ionique. Ces ions sont bloqués aux électrodes et constituent des charges d'espace. Elles intensifient le champ électrique, la barrière de potentiel est ainsi abaissée ce qui conduit à une injection d'électrons par effet Schottky.

V. 3. Courants de décharge.

A haute température $T = 140^\circ \text{C}$, la décroissance du courant devient plus importante à partir de 10s. Les courbes $J_d(t)$ peuvent être divisées en deux parties pour des temps supérieurs et inférieurs à 10s:

$$J_d \propto t^{-0,5} \quad \text{pour } t < 10\text{s} \quad (\text{III-7})$$

$$J_d \propto t^{-3} \quad \text{pour } t > 10\text{s} \quad (\text{III-8})$$

Dans le cas où il se forme une charge d'espace lors de la mise sous tension de l'échantillon, le courant de décharge, qui suit l'annulation du champ et la mise en court-circuit, dépend étroitement de la répartition de cette charge d'espace à la fin de la charge, c'est à dire du régime permanent. Cette charge d'espace peut être localisée près des électrodes ou répartie dans le volume.

Dans le premier chapitre, nous avons vu (Ch.I § II-3) que, dans le cas d'un diélectrique sans pièges ou avec un seul niveau énergétique, pourvu de contacts ohmiques, le courant permanent est une fonction quadratique du champ électrique :

$$J \propto V^2 \quad (\text{III-9})$$

Nous allons calculer le courant de décharge obtenu après avoir court-circuité un échantillon présentant un courant limité par la charge d'espace durant la charge. On pose :

$$\begin{aligned} \text{avec } \rho &= \rho^* \varepsilon \frac{V_a}{d^2}, & x &= x^* \cdot d, & J &= J^* \frac{\mu \varepsilon V_a^2}{d^3}, \\ F &= F^* \frac{V_a}{d} & \text{et } t &= t^* \frac{d^2}{\mu V_a} \end{aligned} \quad (\text{III-10})$$

où V_a est la tension appliquée pendant la charge et d l'épaisseur de l'isolant
La répartition de la charge d'espace dans le volume est (Ch.I § III-3.a):

$$\rho^* = \left(\frac{3}{4}\right) (x^*)^{-1/2} \quad (\text{III-11})$$

et le profil du champ s'écrit :

$$F^* = \left(\frac{3}{2}\right) (x^*)^{1/2} \quad (\text{III-12})$$

Ces équations vont constituer les conditions initiales de la décharge. Les équations de base sont : les équations de Poisson, de continuité et de la densité de courant total où la diffusion est négligée :

$$\frac{\partial F^*}{\partial x^*} = \rho^* \quad (\text{III-13})$$

$$\frac{\partial J^*}{\partial x^*} = 0 \quad (\text{III-14})$$

$$\text{et} \quad j^* = F^* \frac{\partial F^*}{\partial x^*} + \frac{\partial F^*}{\partial t^*} \quad (\text{III-15})$$

On tient compte également de la condition de court circuit

$$\int_0^1 F^* dx^* = 0 \quad (\text{III-16})$$

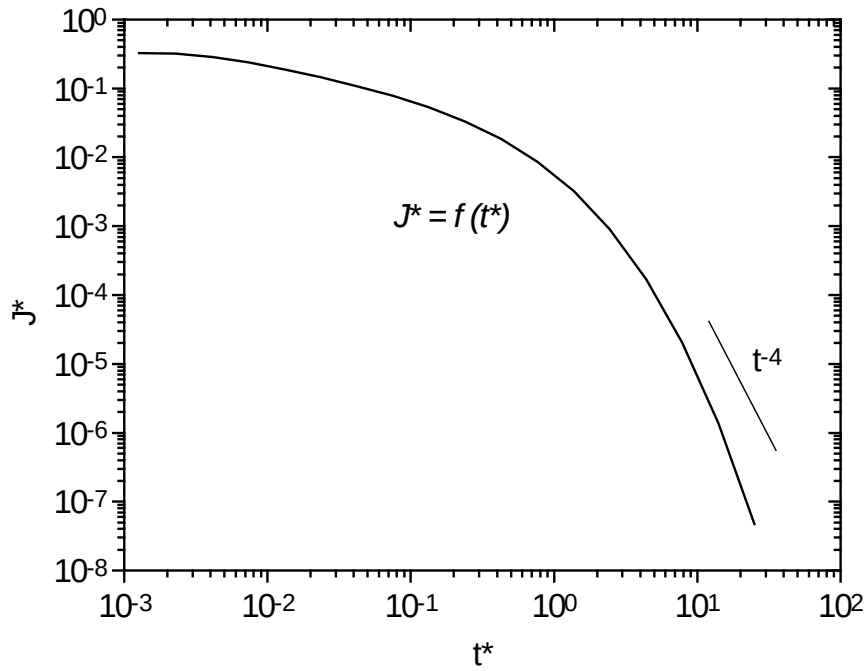


Figure III-20 : Courant de décharge calculé en présence de charges d'espace.

La résolution numérique de ces équations, par la méthode de Runge-Kutta, en prenant comme conditions initiales

$$F^*(t=0) = \left(\frac{3}{2}\right) (x^*)^{1/2} \quad (\text{III-17})$$

et en faisant quelques approximations [16], permet d'obtenir les résultats présentés sur la figure III-20.

Les courants aux temps courts et longs peuvent être assimilés aux expressions suivantes :

$$J^* = -\frac{3}{8} + \frac{3}{2} t^{*1/2} \quad t^* < 0,05 \quad (\text{III-18})$$

$$J^* = -\frac{2}{27} t^{*-4} \quad t^* > 5 \quad (\text{III-19})$$

en prenant une valeur de $\mu = 5.10^{-14} \text{m}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$, on calcule t et J pour $V = 600 \text{V}$. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure III-21 et comparés aux valeurs expérimentales obtenues à $T = 140^\circ \text{C}$ et $F = 24 \text{ MV/m}$. On constate un bon accord entre la théorie et l'expérience.

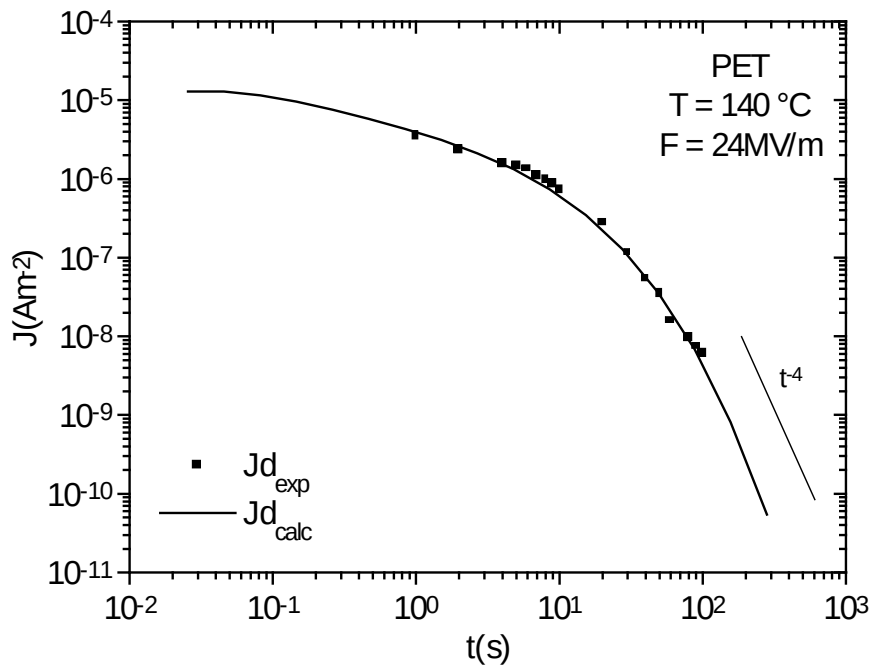


Figure III-21 : Comparaison entre les courants de décharge calculés et mesurés.

Des mesures par la technique IFDC [17,.18] (Isothermal Final Discharging Current), ont montré qu'il existait des charges localisées dans le PET ayant un temps de relaxation très long seulement à haute température. Mais ce sont les résultats de Néagu et al [19] sur le PET à 180°C, qui montrent, aux temps longs, une pente aussi importante ($n = 4$) et très faible aux temps courts ($n = 0,04$).

Les résultats de Matsumoto et al [2] sur le PET ont également montré une telle décroissance du courant à 150°C que ces auteurs associent à la présence d'une charge d'espace.

V. 4. Conclusion

Le recouvrement entre le courant d'absorption et de résorption, observé à l'état vitreux, montre que ces derniers sont, en grande partie, dus à un processus dipolaire.

Au voisinage de la transition vitreuse et à des températures légèrement supérieures, les mouvement de grande amplitude de la chaîne principale libèrent des charges dont le déplacement, sous l'effet du champ électrique, contribue au courant de charge.

A 100°C ce courant résulte d'une relaxation dipolaire et d'un mouvement de charge d'espace. Cette deuxième composante a été interprétée à l'aide de la théorie de Many et Rakavy.

A haute température, $T = 140^{\circ}\text{C}$, les mécanismes dipolaires sont négligés. Les courants de charge sont dus à un déplacement d'ions sous l'effet du champ électrique. Quant aux résultats obtenus lors de la décharge, ils ont été expliqués par un calcul théorique basé sur la diffusion de la charge d'espace constituée au cours de la charge du matériau.

Références :

- 1-Z.Amalou
Thèse de Magister, USTHB, Alger, (1998)
- 2-S.Matsumoto, K.Kamisako et K.Shinohara,
Jap. J. Appl. Phys. , Vol. 15, No. 1, (1976)
- 3-A.C.Lilly et J.R..Mc Dowell
J. Appl. Phys., 39, p.141-7 (1968);
- 4-N. Zebouchi, M. Bendaoud, R. Essolbi, D. Malec, Bui Aï et T.G.Hoang.
J.Appl.Phys.Vol.79, No.5, p.2497, (1996)
- 5-J.R.Hanscomb et Y.Kaahwa
Journal of Physics D. , Vol. 12, p. 587-599, (1979)
- 6-C.bucci, R.Pieschi et G Guidi ,
Phys. Rev.,148, 16, (1966)
- 7 A.Gourari, M. Bendaoud, C.Lacabane et R.F.Boyer
Journ. of Polym. Sc. Polym. Phys. Ed., vol.23, No.5, p.889-916, (1985)
- 8-E.Neagu, P.Pissis, L.Apekis et J.L.Gomez Ribelles
J.Phys.D :Appl.Phys., 30, p.1551-1560 (1997)
- 9-N.Benrekaa
Thèse de Magister, USTHB, Alger, (1999)
- 10- E.Neagu, J.N.Marar-Mendes, D.K.Das-Gupta, R.M.Neagu et R.Igreja
J.Phys.D.Appl.Phys.,Vol.82, No.5, p.2488-96 (1997)
- 11-Y.Gorokovatsky, D. Temnov, J.N.Marar-Mendes, C.J.M.Dias et D.K.Das-Gupta
J.Appl..Phys., Vol.83, No.10, p.5337 (1998)
- 12- Tielhen, J.Niezette,G. Feyder et J. Vanderschueren
8th Int. Sym. On Electrets ISE8 , (1994)
- 13-Tatsumi Ito Hayakawa
J.Polym.Sci.Phys., 30, 701-706 (1992)
- 14 -J.Menegotto, P.Deuront et C.Lacabane
10th Intern.Symp. on Electrets ISE10, Delphi Greece (1999)
- 15-S.Havriliak et J.Shortridge
Polymer, 31, 1782 (1990)
- 16-H.J.Wintle
J.Appl.Phys.,Vol.62, No.7, p.2933-36, (1987)
- 17 E.R. Neagu,J.N.Marar-Mendes, D.K.Das-Gupta et R.M. Neagu
ISE 10, p.111-14 (1999)
- 18- E.Neagu, P.Pissis et L.Apekis
J.Appl.Phys.,Vol.87, No.6, p.2914-22 (2000)
- Ou E.R.Neagu et R.M.Neagu
ThinSolidFilms-358-(1-2)p.283-91 (2000)
- 19- E.R.Neagu,J.N.Marar-Mendes, D.K.Das-Gupta et R.M. Neagu
ISE 10, p.111-14 (1999)

Chapitre IV :

LE POLYETHYLENE BASSE DENSITE (PEBD)

Chapitre IV

LE POLYETHYLENE BASSE DENSITE (P.E.B.D.)

I. LE MATERIAU

Le polyéthylène de formule chimique $(-\text{CH}_2-)_n$, représenté en figure (IV-1), est obtenu par la polymérisation de l'éthane. Il existe différents types de polyéthylènes comme le montre la figure (IV-2).

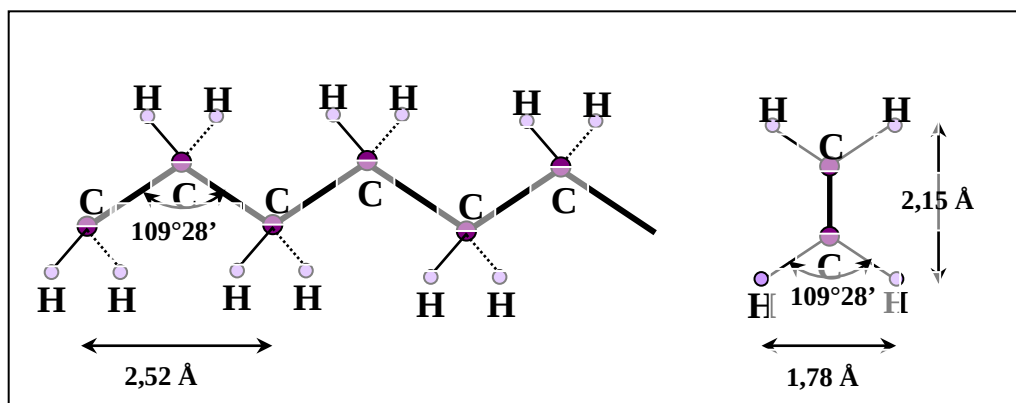


Figure IV-1: Schéma d'une chaîne de polyéthylène

Le PEBD possède une faible résistivité électrique, une grande rigidité diélectrique et c'est le polymère qui présente le plus faible facteur de pertes ($\tan \delta$).

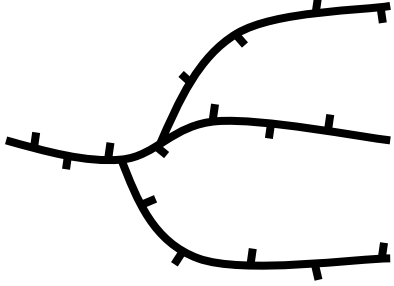
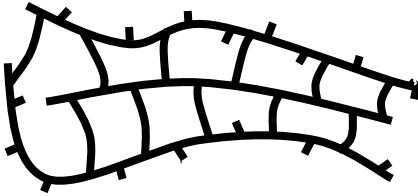
 Le polyéthylène basse densité radicalaire est obtenu par un procédé « haute pression ». Son indice de branchements longs et son taux de branchements courts sont élevés.	 Le polyéthylène haute densité est obtenu par un procédé « basse pression ». Il a peu de branchements courts et pas de branchements longs.
 Le polyéthylène basse densité linéaire est obtenu par un procédé « basse pression ». IL a beaucoup de branchements courts et pas de branchements longs.	 Le polyéthylène réticulé présente de nombreux pontages entre les chaînes.

Figure IV-2: Texture des grandes classes de polyéthylènes.

D'un autre coté, il est stable à la chaleur et présente une grande inertie chimique.

Grâce à ses hautes qualités isolantes, à ses performances thermiques et mécaniques et à son faible coût de fabrication, le PEBD est largement utilisé en câblerie électrique, il remplace, depuis plus d'une trentaine d'années, le papier imprégné.

Il trouve d'autres applications industrielles, notamment dans l'industrie de l'emballage

Caractéristiques physico-chimiques	Valeurs
Densité (g/cm ³)	0,9128
Taux de cristallinité	52%
Indice de fluidité	0,21g/10mn
Viscosité	1,08dP/g
Répartition moléculaire en poids M_v	133900
Répartition moléculaire en nombre M_n	17250
Polydispersité	$M_v/M_n=7,7$
Indice de branchement court	0,53 (pour 1000 C)
Indice de branchement long	25,4 (<5 C pour 1000 C)
Groupements méthyle	46 pour 1000 C
Groupements vinyle	0,12 pour 1000 C
Groupements vinylidène	0,23 pour 1000 C
Groupements vinylène	0,028 pour 1000 C
Groupements carbonyle	0,05 pour 1000 C
Température de la filière	190°C
Vitesse d'étirement	5 m/mn et 10 m/mn
Taux de gonflement	2,4
Chaleur spécifique	$2 \cdot 10^6 \text{ J/m}^3\text{°K}$
Conductivité thermique	0,35 W/m°K
T_f	115°C
T_g	-130°C
Constante diélectrique (ϵ_r)	2,3
Rigidité diélectrique	300 à 1000KV/cm
Facteur de perte ($tg\delta$)	$3 \cdot 10^{-4}$

Tableau IV-1 : Caractéristiques du polyéthylène PEBD

Nous avons utilisé un polyéthylène basse densité radicalaire (1002 CN22) fourni par la firme ATOCHEM. Il se présente sous forme de films extrudés de 100µm d'épaisseur dans lesquels nous avons découpé nos échantillons.

Ses principales caractéristiques sont portées sur le tableau IV-1. On remarque que le PEBD possède un fort taux de cristallinité et quelques groupements polaires.

II. RESULTATS OBTENUS EN REGIME PERMANENT

Les valeurs des courants de conduction ont été relevées une fois le régime permanent atteint, c'est à dire plusieurs heures après l'application du champ électrique.

II. 1. Influence de la température et du champ électrique

Les mesures de courant de conduction en régime permanent, reportées en figure (IV-3) montrent que ces courants sont activés thermiquement avec une énergie d'activation de l'ordre de l'électron-volt.

F (MV/m)	15,3	18,9	22,5
E_a (eV)	1,2	1,1	1,0

Tableau IV-2 :

Celle-ci diminue légèrement lorsque le champ appliqué augmente. On note également une augmentation de la densité de courant avec le champ.

Pour des champs faibles ($F = 6,3$ et $12,6$ MV/m) on observe un changement de pente des droites $\text{Log } J = f(1/T)$ autour de $T = 55^\circ\text{C}$, ce qui laisse supposer un changement de mécanisme de conduction ou de la nature des porteurs de charge à cette température. Des mesures effectuées par Saidi [1] sur des échantillons similaires, en faisant intervenir la pression hydrostatique, ont fait apparaître une conduction électronique lorsque $T < 55^\circ\text{C}$ et ionique pour $T > 55^\circ\text{C}$.

D'autre part, les courbes de densité de courant $\text{Log}(J)$ en fonction de $F^{1/2}$ (figure IV-4) montrent que les mécanismes de conduction peuvent être représentés par le modèle de Poole-Frenkel caractérisé par le coefficient $\beta_{PF} = 5.10^{-5} \text{ eV}^{1/2} \text{ m}^{1/2}$ pour $\epsilon_r = 2.3$. Les valeurs expérimentales de β_{PF} calculées à partir des pentes de ces courbes sont : 2.0, 1.9 et 1.8 fois supérieures à la valeur théorique, pour 40°C , 55°C et 75°C respectivement. Ce comportement est probablement dû à la formation d'une charge d'espace, près des électrodes, qui modifie le champ interne dans cette région, de sorte que le champ effectif est supérieur au champ appliqué : c'est ce qui a été suggéré par Davis [2] et Petrovsky [3].

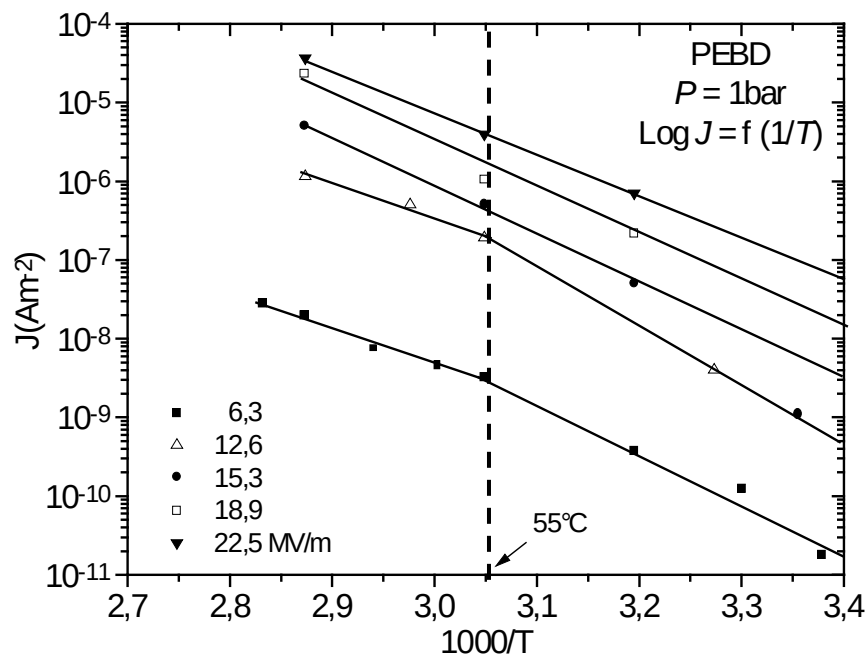


Figure IV-3: Courants permanents : Effet de la température.

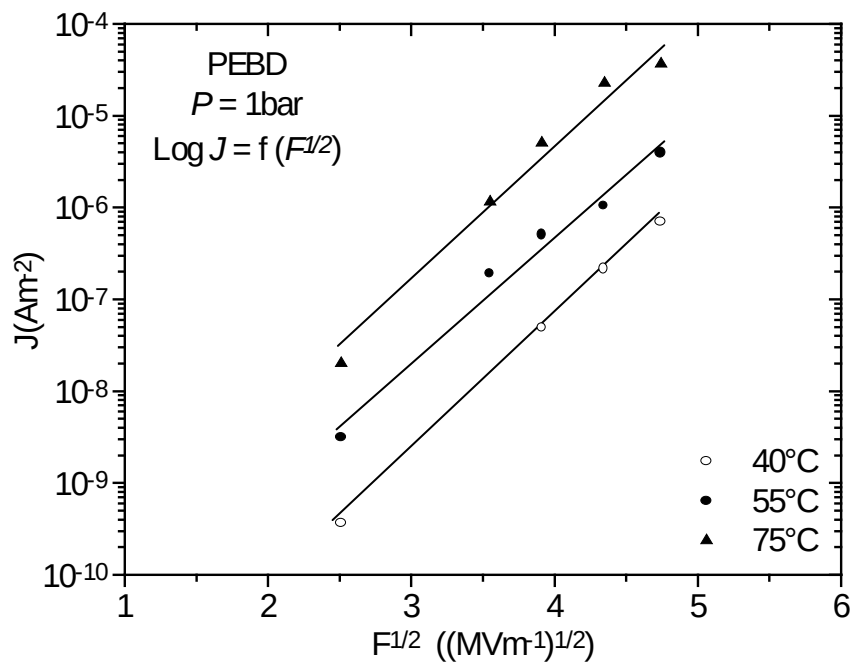


Figure IV-4 : Courants permanents : Effet du champ électrique.

Afin de mettre en évidence l'existence d'une charge d'espace, nous avons représenté sur la figure (IV-5), $\text{Log } J$ en fonction de $\text{Log } F$. Les courbes obtenues montrent une dépendance du courant en F^n [4]. Les valeurs des pentes 5.7, 5.4 et 5.2 ont été trouvées pour 40°C, 55°C et 75°C respectivement. Un comportement similaire a été observé par plusieurs auteurs [5, 6]. Ce comportement peut être lié à la présence de pièges avec une distribution

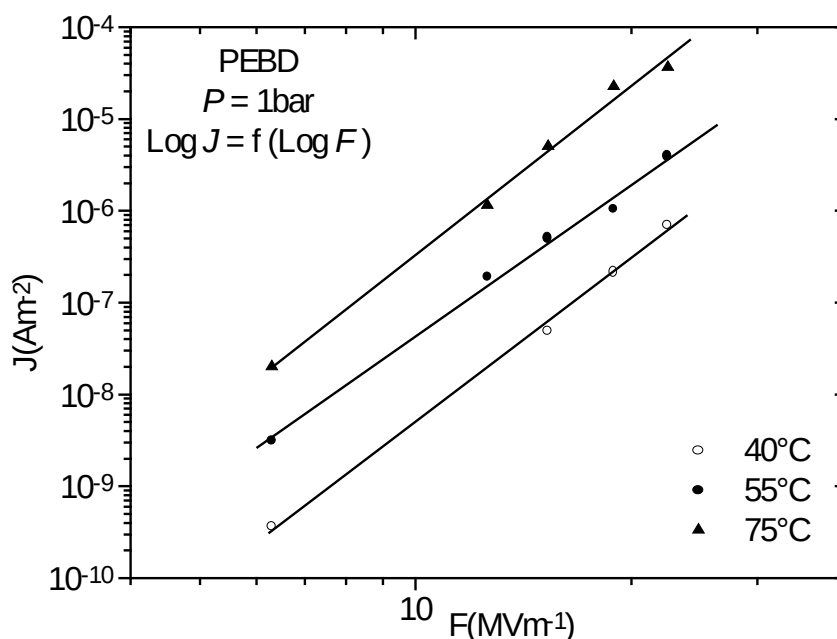


Figure IV-5 : Courants permanents : Effet du champ électrique.

exponentielle en énergie. La détermination de la constante B (Ch.I), à partir des courbes de la figure IV-5, permet de calculer la concentration moyenne de pièges qui vaut $8,4 \cdot 10^{21} \text{ e/m}^3$, et qui est comparable à celle donnée par Ieda et al. [7] ($3 \cdot 10^{21} \text{ e/m}^3$). Ces résultats montrent que la conduction est fortement influencée par la charge d'espace présente dans le matériau.

II. 2. Effet de la pression

Les mesures de conductivité sous pression, que nous avons effectuées, ont montré que, pour les champs élevés, le courant permanent augmente avec la pression. Ainsi à $T = 35^\circ\text{C}$ et avec un champ $F = 15,3 \text{ MV/m}$, on a $J(1\text{bar}) = 1,58 \cdot 10^{-7} \text{ A/m}^2$ et $J(850 \text{ bars}) = 9,36 \cdot 10^{-7} \text{ A/m}^2$. Ces résultats suggèrent, qu'à cette température, le processus de transport est dû à des porteurs électroniques. Pour des champs faibles, les courants permanents présentent un comportement en fonction de pression, différent [8].

A partir des variations du courant avec la pression, on peut proposer un modèle théorique basé sur l'existence de pièges coulombiens ou sites situés à une profondeur ϕ_0 par rapport à la bande de conduction et séparés les uns des autres d'une distance moyenne λ . Les porteurs peuvent ainsi se déplacer par saut d'un site à un autre.

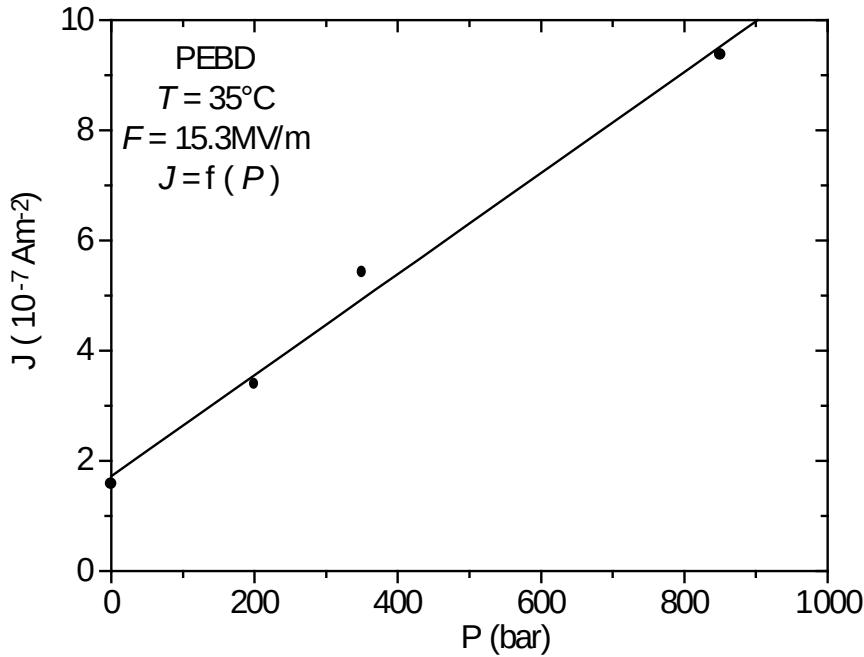


Figure IV-6 : Courants permanents à $T = 35^\circ\text{C}$ et $F = 15,3\text{ MV/m}$: Effet de la pression.

Dans le modèle de Adachi [9] qui est une combinaison entre le « hopping » et l'effet Poole-Frenkel, la densité de courant est représentée par la relation:

$$J = J_o(P) \exp \left[-\frac{1}{2kT} \left(\phi_0 - 2(1.25\alpha)^{1/2} \left(\frac{2.43\alpha}{\lambda^2} + eF \right)^{1/2} \right) \right] \quad (\text{IV-1})$$

Où
$$\alpha = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_r\epsilon_0} \quad \text{et} \quad J_o(P) = \frac{1}{2} e \sqrt{N_c N_t} \nu \lambda$$

N_c est la densité d'état, N_t la densité de pièges et ν la fréquence de saut.

Dans ces équations on suppose que la permittivité ϵ_r , la distance de saut λ et l'énergie ϕ_0 dépendent de la pression. Pour la détermination de la valeur de ces paramètres, un logiciel de calcul, basé sur la méthode de superposition entre les valeurs expérimentales de J et celles obtenus à partir de la formule IV-1, est utilisée.

Les résultats du calcul, résumés dans le tableau IV-3, ont montré que $\lambda(P)$ et $\phi_o(P)$ diminuent avec la pression de 30% et 3,4% respectivement, alors que la variation de $\varepsilon_r(P)$ est inférieure à 1% . La permittivité diélectrique évolue en fonction la pression selon l'expression [10] :

$$\frac{\partial \varepsilon_r}{\partial P} = \beta \frac{(\varepsilon_r - 1)(\varepsilon_r + 2)}{3} \quad (\text{IV-2})$$

où $\beta = - \left(\frac{1}{V} \right) \frac{\partial V}{\partial P}$ est le coefficient de compressibilité

$$\beta = 9,4.10^{-5} \text{ bar}^{-1} [7], \quad \sqrt{N_c N_t} = 10^{19} \text{ cm}^{-3} \quad \text{et} \quad \nu = 10^{12} \text{ s}^{-1}$$

$P(\text{bar})$	$\lambda(\text{\AA})$	ε_r	$\phi_o(\text{eV})$
1	100	2.27	2.06
200	90	2.26	2.04
350	80	2.26	2.00
850	70	2.25	1.96

Tableau IV-3: Variation des paramètres λ , ε_r et ϕ_o avec la pression à 35°C et 15.3MV/m

En résumé, les résultats obtenus en régime permanent, montrent qu'aux températures inférieures à 55°C, les porteurs de charge sont essentiellement d'origine électronique et font apparaître un mécanisme de conduction de type Poole-Frenkel fortement influencé par la charge d'espace. Au delà de cette température, d'autres mesures [11] ont mis en évidence une conduction ionique

III. COURANT TRANSITOIRE A CHAMP FAIBLE ($F < 10\text{MV/m}$)

Le courant de charge $J(t)$ (figure IV-7) dans les films de polyéthylène basse densité est obtenu en appliquant une tension continue à l'échantillon. Le courant de résorption $J_r(t)$ (figure IV-8) est relevé lorsque l'échantillon est court circuité. La durée du régime transitoire est de quelques minutes à quelques dizaines d'heures, suivant les conditions de température, de champ électrique et de pression appliqués.

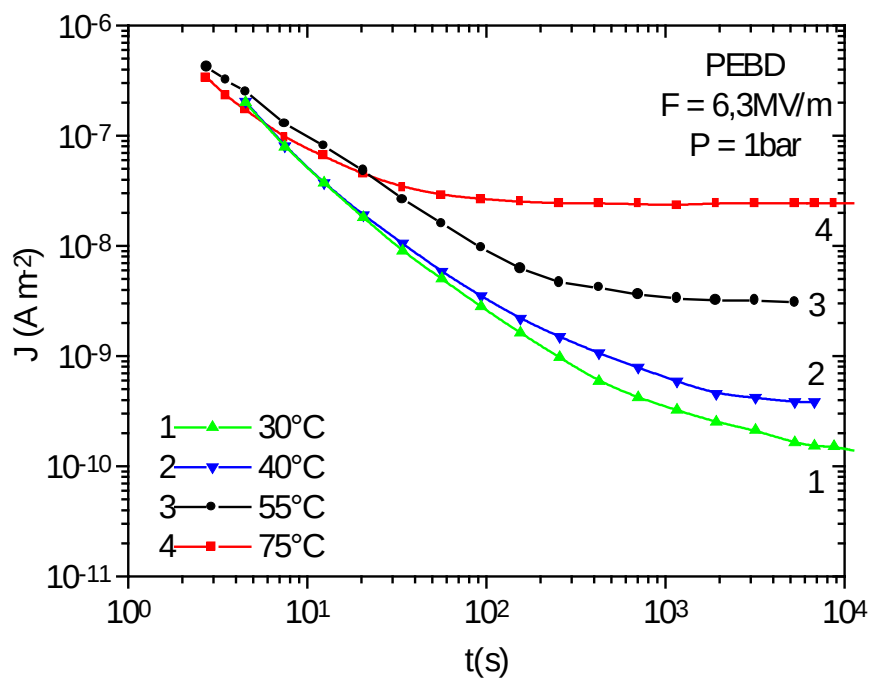


Figure IV-7 : Courants de charge à $F = 6.3\text{MV/m}$: Effet de la température.

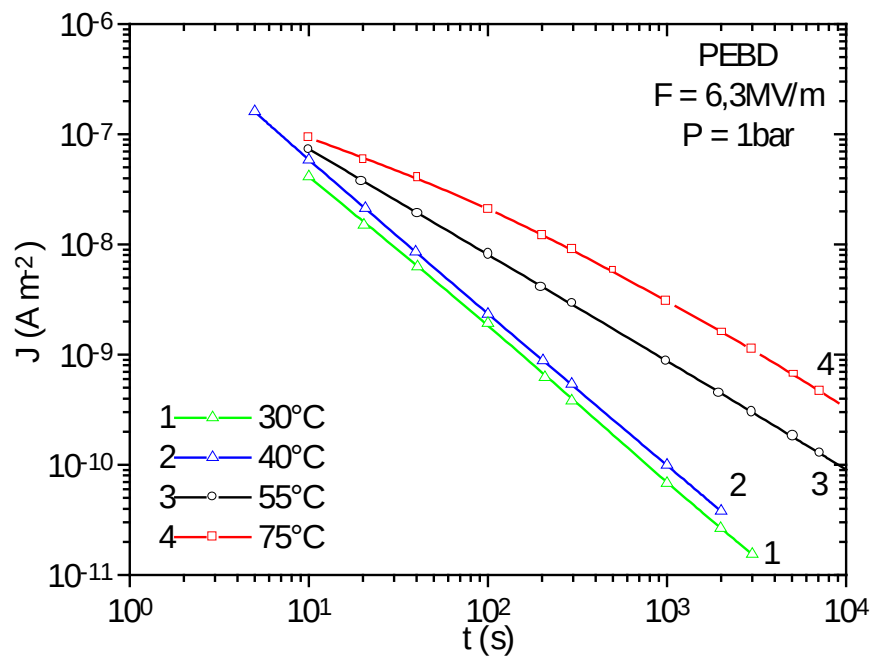


Figure IV-8 : Courants de décharge à $F = 6.3\text{MV/m}$: Effet de la température.

III. 1. Effet de la température sur le courant transitoire du PEBD

Les figures IV-7 et IV-8 illustrent l'allure des courants de charge et de décharge obtenus sur des films de polyéthylène pour une tension de 630V, qui correspond à $F = 6.3 \text{ MV/m}$, et des températures allant de 30 à 75°C.

Dans toute la gamme de température étudiée, le courant de charge $I(t)$ observe une décroissance monotone jusqu'au temps au bout duquel le régime permanent est atteint. Le courant de décharge $I_r(t)$ décroît de la même manière et finit par s'annuler.

Les courants d'absorption $J_a(t)$ et de résorption $J_r(t)$ sont superposables à basse température durant les 100 premières secondes et suivent la loi de Curie et Von Schweidler :

$$J = A t^{-n} \quad (\text{IV-3})$$

avec la valeur de n égale à 1 (figure IV-9). Le comportement du courant transitoire dénote la présence d'un phénomène de relaxation dipolaire. A 75°C (figure IV-10), il n'y plus superposition des courants $J_a(t)$ et $J_r(t)$

Le temps de relaxation τ , déduit des courbes des courants d'absorption, montre que plus la température est élevée plus sa valeur est faible. Ceci se traduit sur les courants de charge par un régime transitoire plus court. Ce temps de relaxation suit la loi d'Arrhénius :

$$\tau = \tau_o \exp\left(\frac{\Delta H}{kT}\right) \quad (\text{IV-4})$$

où τ_o est une constante, ΔH est l'enthalpie d'activation. Ce fait a été remarqué par Adamec et al [12]

Le calcul de ΔH se fait par l'enregistrement des courants à différentes températures, on détermine ensuite les valeurs de τ à partir des courants d'absorption et on trace les courbes de $\text{Log}(\tau)$ en fonction de $1/T$. Dans la figure (IV-11), la pente de la droite obtenue est égale à $\Delta H / kT$. L'ordonnée à l'origine de cette droite donne la valeur du facteur préexponentiel τ_o .

Pour $F = 6,3 \text{ MV/m}$, on trouve :

$$\Delta H = 0.51 \text{ eV} \quad \text{et} \quad \tau_o = 2.5 \cdot 10^{-5} \text{ s}$$

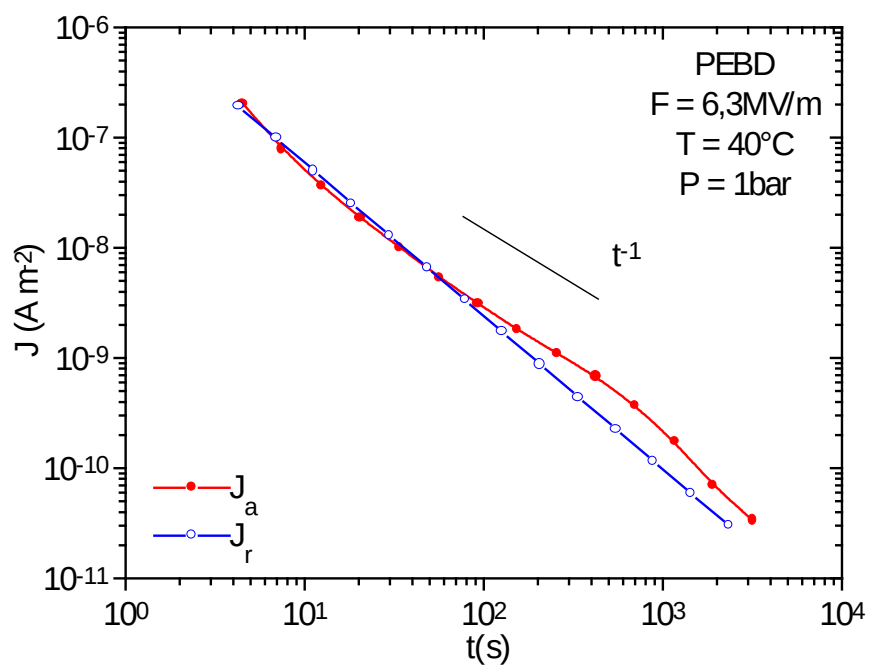


Figure IV-9 : Courants d'absorption et de résorption à $F = 6.3 \text{ MV/m}$ et $T = 40^\circ\text{C}$

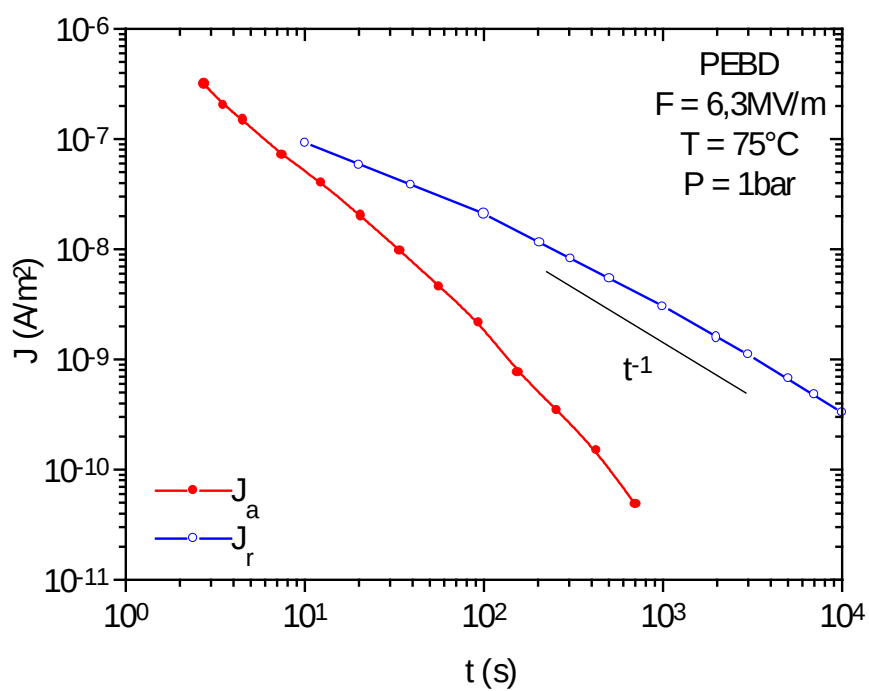


Figure IV-10 : Courants d'absorption et de résorption à $F = 6.3 \text{ MV/m}$ et $T = 75^\circ\text{C}$

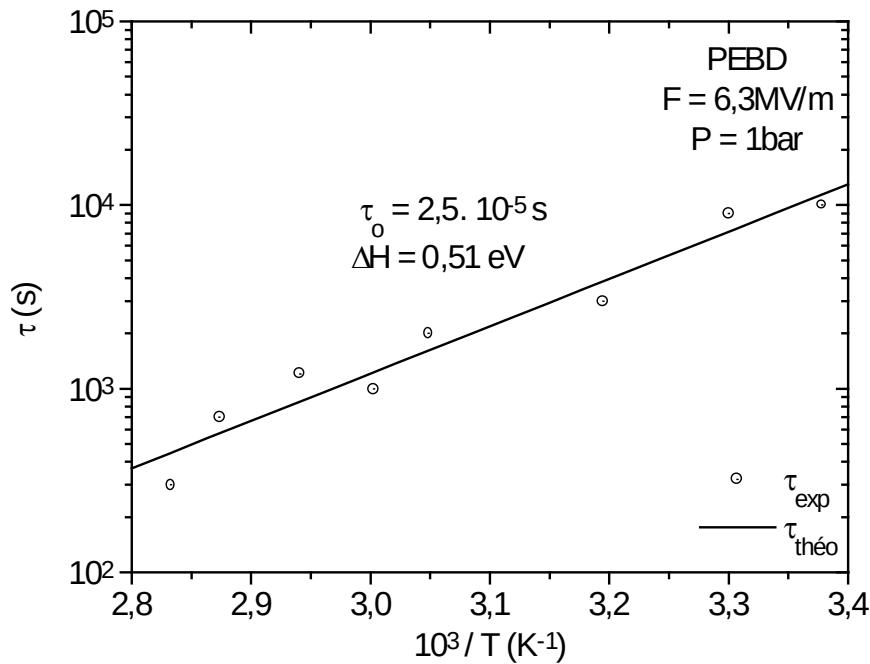


Figure IV-11 : Temps de relaxation τ (s) en fonction de $1000/T$ à $F = 6.3\text{MV/m}$

III. 2. Effet de la pression hydrostatique sur le courant transitoire

La figure IV-12 montre le comportement des courants de charge $J(t)$ du polyéthylène basse densité en fonction de la pression hydrostatique. Le champ électrique appliqué a pour valeur $F = 2,7 \text{ MV/m}$ et la température, dans la chambre de pression, est maintenue à $T = 25^\circ\text{C}$. Dans la gamme de pression étudiée, les courants d'absorption $J(t)$ et de résorption (figures 13 et 14) observent le même comportement qu'à la pression atmosphérique (figure IV-7). Le courant d'absorption (figure IV-13) augmente avec la pression.

La figure IV-14 montre que, pour les champs faibles et à la température ambiante ($T = 25^\circ\text{C}$), il y a recouvrement entre les courants d'absorption et de résorption jusqu'à $t = 10^4 \text{ s}$

$P(\text{ bar })$	1	500	1000	2500
$\tau_{\text{exp}}(\text{ s })$	$1,7.10^3$	$9,0.10^3$	$3,3.10^4$	$1,4.10^5$

Tableau IV-4 : Temps de relaxation τ en fonction de la pression à $T = 25^\circ\text{C}$.

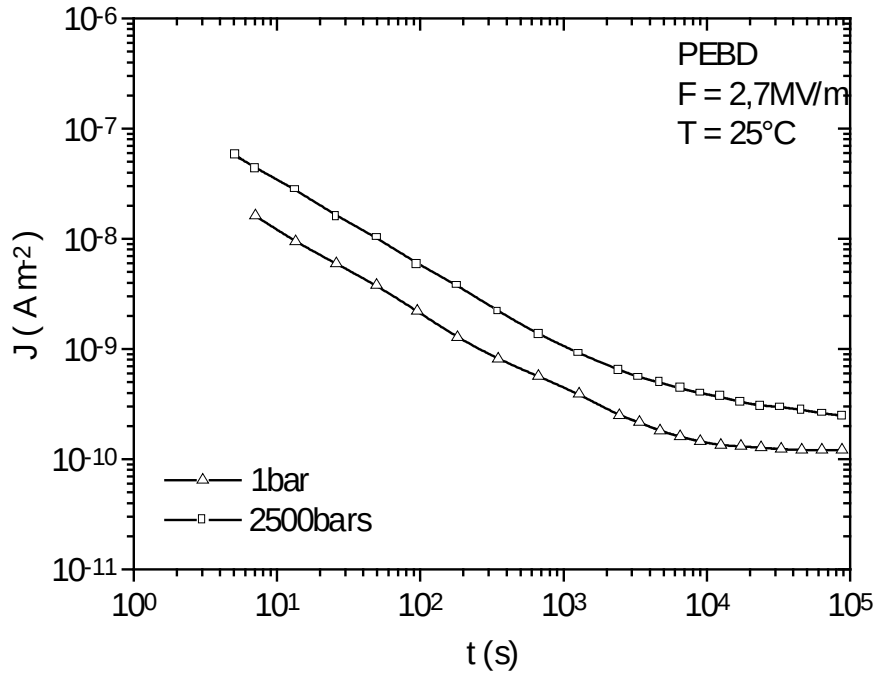


Figure IV-12 : Courants de charge à $F = 2.7\text{MV/m}$, $T = 25^\circ\text{C}$: Effet de la pression.

Le tableau IV-4, donne, pour différentes pressions, les valeurs du temps de relaxation τ , déduites des courants d'absorption (figure IV-13).

L'expression du temps de relaxation τ en fonction de la pression peut s'écrire comme suit :

$$\tau = \tau_o \exp\left(\frac{\Delta E + P\Delta V}{kT}\right) \quad (\text{IV-5})$$

où ΔE et ΔV représentent l'énergie d'activation et le volume d'activation respectivement.

Les valeurs expérimentales de τ sont représentées dans la figure IV-15. La pente de la droite moyenne correspond à $\Delta V / kT$ ce qui permet d'obtenir la valeur de $\Delta V = 40\text{cm}^3/\text{mole}$ à $T = 25^\circ\text{C}$. Cette valeur est comparable à celle trouvée par Destruel ($\Delta V = 30\text{cm}^3/\text{mole}$) [13] qui a opéré sur le polychlorure de vinyle (PVC), par la technique des courants piézostimulés. A partir de l'ordonnée à l'origine, et en prenant une valeur de $\Delta E = 0.5\text{ eV}$ du même ordre de grandeur que celle déterminée au paragraphe précédent, on peut déduire une valeur de $\tau_o = 10^{-5}\text{s}$.

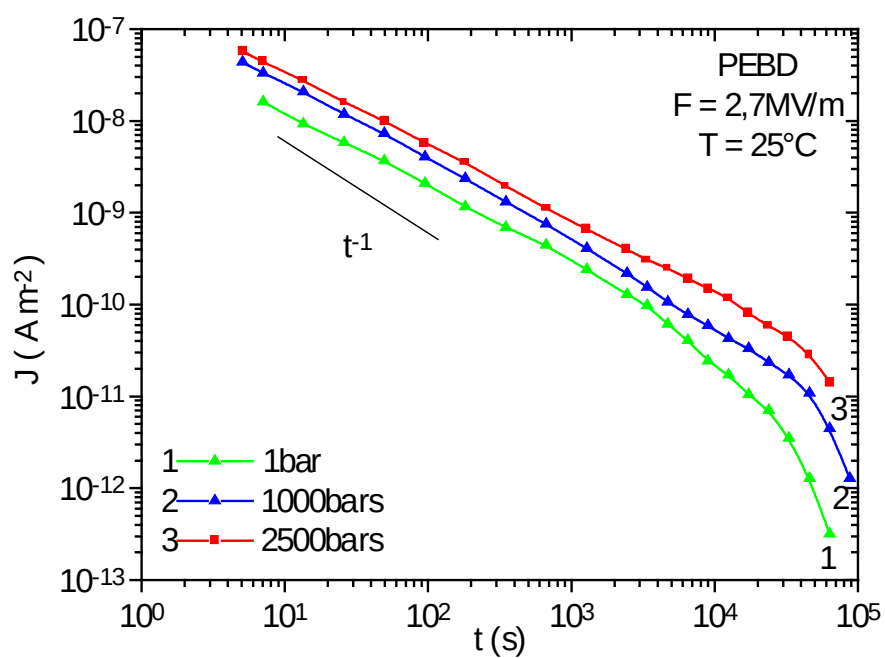


Figure IV-13 : Courants d'absorption à $F = 2.7 \text{ MV/m}$, $T = 25^\circ \text{C}$ et $P = 1$ à 2500bars

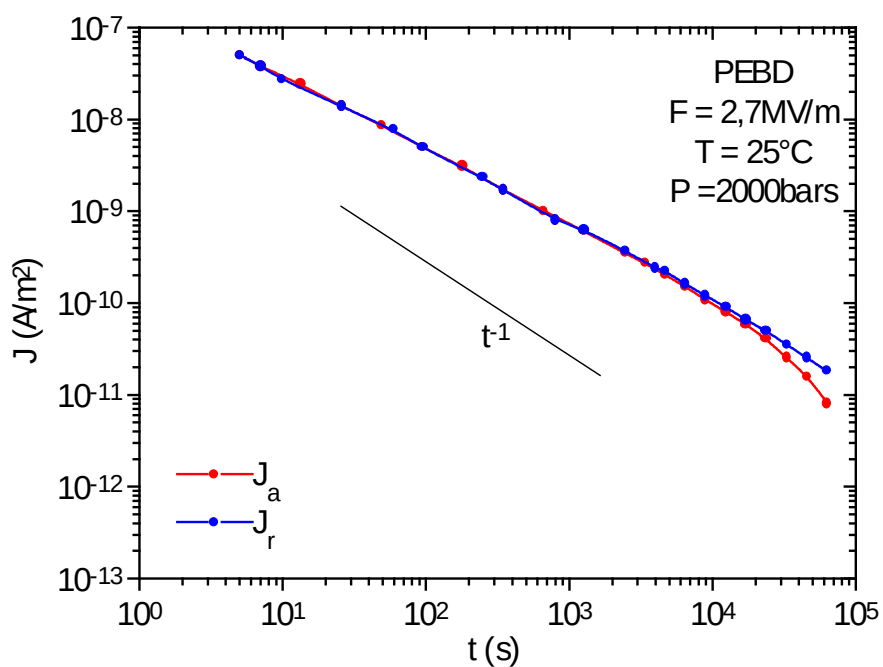


Figure IV-14 : Courants d'absorption et de résorption à $F = 2.7 \text{ MV/m}$, $T = 25^\circ \text{C}$ et $P = 2000 \text{ bars}$

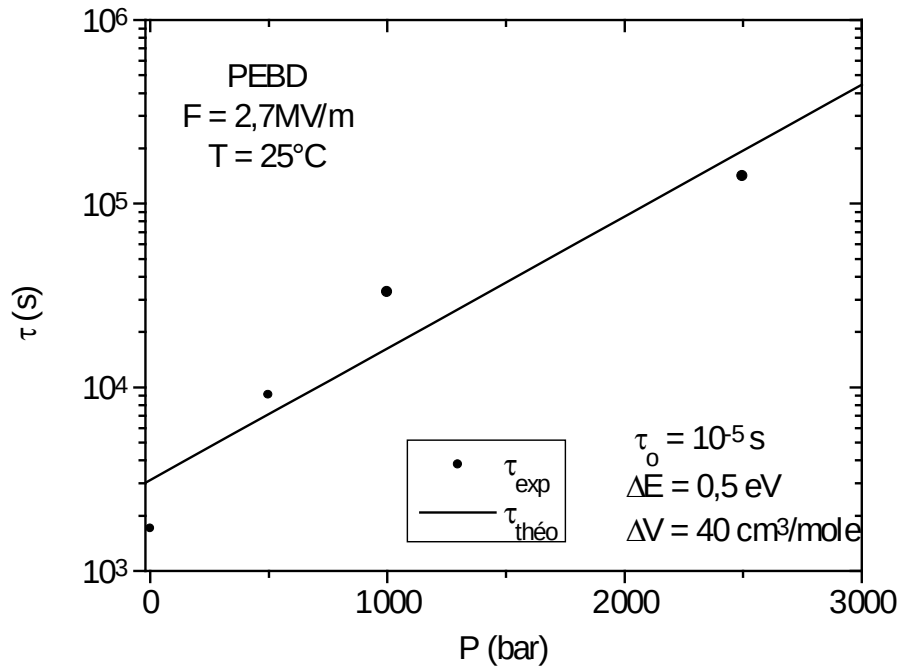


Figure IV-15 : Temps de relaxation τ en fonction de la pression à $F = 2.7 \text{ MV/m}$.

III. 3. Discussion

Les résultats précédents montrent que les courants transitoires, pour des champs électriques faibles ($F < 10 \text{ MV/m}$), et aux températures inférieures à 55°C , sont essentiellement dus à une relaxation dipolaire. Un mécanisme de relaxation dipolaire à bas champ dans le PE a été mis en évidence par un grand nombre d'auteurs [14- 21]. Si le polyéthylène avait exactement la formule chimique portée sur la figure III-1, il ne comprendrait aucun groupement polaire, et il n'y aurait que la polarisation induite. Or celle-ci s'établit instantanément et ne donne lieu à aucun courant de charge. Cependant le polyéthylène en général, et le matériau que nous avons utilisé en particulier, comporte, comme le montre le tableau IV-1, des unités polaires dues aux impuretés provenant de l'éthylène qui sert de matière première ou du catalyseur. Les groupements méthyle CH_3 les plus nombreux, de moment dipolaire $1,3 \cdot 10^{-30} \text{ C.m}$, carbonyle ($\text{C} = \text{O}$) où $\mu_d = 9,3 \cdot 10^{-30} \text{ C.m}$, et les liaisons $\text{C} = \text{C}$ ($\mu_d = 1,3 \cdot 10^{-30} \text{ C.m}$) détruisent la symétrie de la configuration de la chaîne moléculaire et produisent une relaxation dipolaire.

L'augmentation du temps de relaxation τ , en fonction de la pression hydrostatique, résulte de la réduction du volume libre qui existe dans la partie amorphe du matériau et qui est nécessaire au mouvement des groupements polaires. La gamme de température, dans laquelle nous avons opéré, se trouve nettement au-dessus de la température de transition vitreuse, ce qui explique l'existence d'un volume libre.

A $T = 75^\circ\text{C}$ les courants d'absorption et de résorption ne sont plus superposables, la relaxation dipolaire devient négligeable devant d'autres mécanismes [22]. Das Gupta [14] attribue l'apparition d'un pic, lors de mesures de courants de décharge thermostimulés, sur des échantillons de PEBD entre 60°C et 90°C , à la fusion de la phase cristalline. Ce mécanisme de préfusion explique l'apparition d'un mouvement de charges libres.

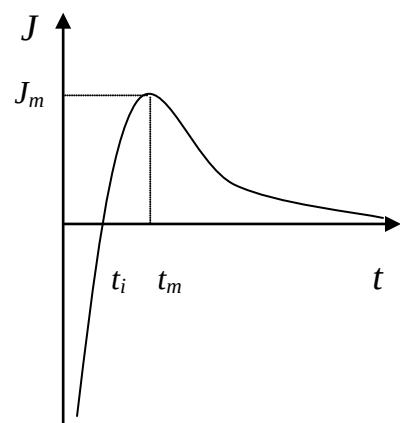
Les résultats des mesures de courants de décharge montrent une dépendance de la forme t^{-n} avec $n = 1$. Ces courants suivent la loi de Curie-Von Schweidler.

IV- COURANT TRANSITOIRE A CHAMP ELEVE ($F > 10 \text{ MV/m}$)

Pour des champs électriques appliqués supérieurs à 10 MV/m , le comportement des courants transitoires change complètement, comme l'illustrent les figures de IV-16 à IV-19. Le courant de charge (figure IV-16 et IV-18) décroît jusqu'à un régime quasi stationnaire puis croît en faisant apparaître un pic très étalé. Le temps t_p , qui détermine la position de ce pic, décroît lorsque le champ électrique, la température ou la pression appliqués augmentent.

Le courant présente, lors de la décharge, l'allure représentée sur la figure ci-contre. Il est négatif, croît en fonction du temps jusqu'à l'instant t_i où il s'annule pour changer de signe. Il devient positif, atteint un maximum $J = J_m$ au temps $t = t_m$, puis il décroît. On obtient un "courant de décharge anormal"[4].

Sur toutes les figures les courants sont représentés en valeur absolue et en échelle logarithmique. Le changement de signe du courant se traduit, sur les courbes, par un point de rebroussement.



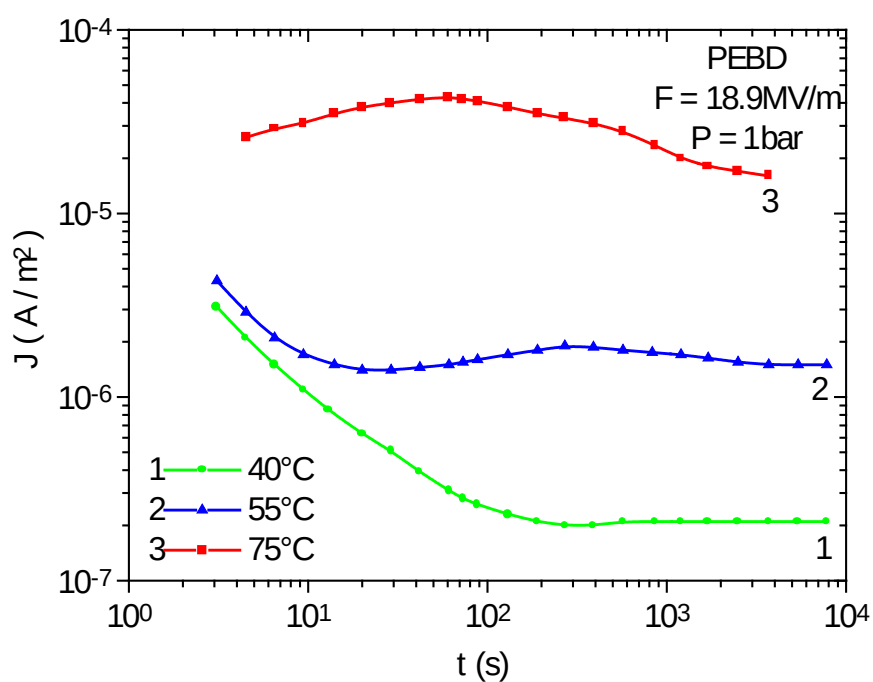


Figure IV-16 : Courants de charge à $F = 18.9 \text{ MV/m}$: Effet de la température.

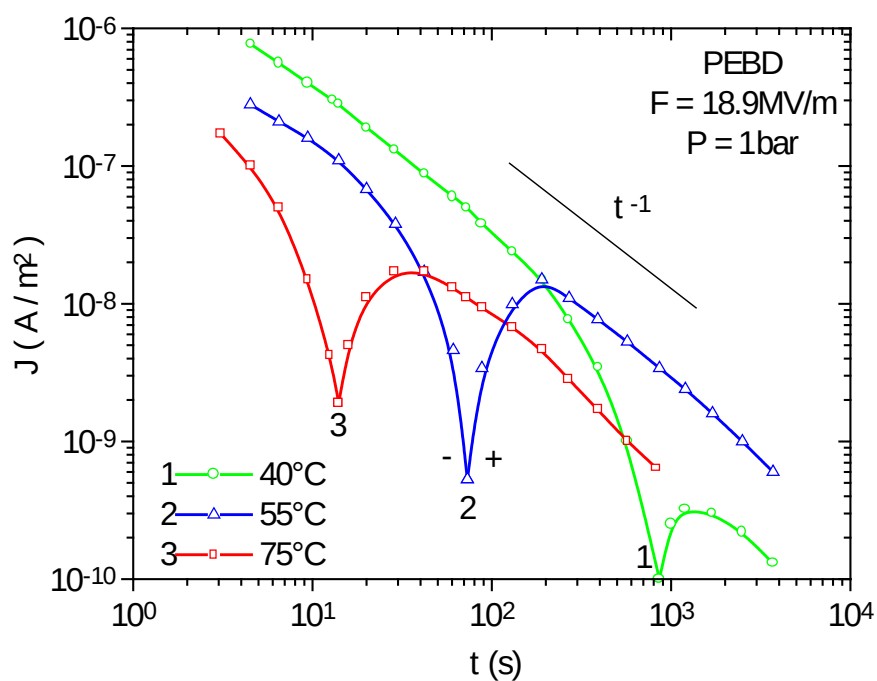


Figure IV-17 : Courants de décharge à $F = 18.9 \text{ MV/m}$: Effet de la température.

IV. 1. Effet de la température

Les figures (IV-16 à IV-19) montrent les courants transitoires pour des champs appliqués de 18.9MV/m et 22.5MV/m respectivement. On constate un écart, de plus en plus important, entre les courants de charge et de décharge, lorsque la température augmente (par exemple à $T = 75^\circ\text{C}$ et $t = 10^3\text{s}$, $J_a = 10^4 J_r$). Notons encore que la position t_p du pic se déplace vers les faibles valeurs du temps lorsque la température augmente. Les figures (IV-17) et (IV-19) illustrent les caractéristiques $J_r(t)$ à différentes températures pour $F=18.9\text{MV/m}$ et $F = 22.5\text{MV/m}$ respectivement. Le courant de décharge a un comportement anormal à toutes les températures utilisées.

Sur les figures (IV-17) et (IV-19) on peut observer l'évolution des trois paramètres t_i , t_m et J_m en fonction de la température. On constate une diminution de t_i et t_m mais une augmentation de J_m lorsque la température augmente. D'autre part, on remarque qu'après l'instant t_m , l'allure des courbes de courants de résorption J_r se rapproche d'une droite de pente (-1).

Les valeurs de t_i , t_m et J_m tirées des courbes précédentes sont résumées dans le tableau IV-5

$T(^{\circ}\text{C})$	$J(0)(\text{A/m}^2)$	t_i (s)	t_m (s)	$J_m(\text{A/m}^2)$
40	$-7,0.10^{-7}$	280	630	$6,0.10^{-9}$
55	$-1,0.10^{-6}$	35	137	$3,5.10^{-8}$
75	$-3,5.10^{-7}$	2,5	17	$1,8.10^{-7}$

Tableau IV-5 : Variation de t_i , t_m , J_m et $J(0)$ avec la température pour $F = 22.5\text{MV/m}$.

IV-2 Effet du champ électrique

Les figures (IV-20) à (IV-22) illustrent l'évolution des courants de charge et de décharge à 40°C et 75°C , pour différentes valeurs du champ appliqué. Si on observe l'allure des courants de charge (figure IV-20) , on constate une nette différence entre J_c à 6.3MV/m et

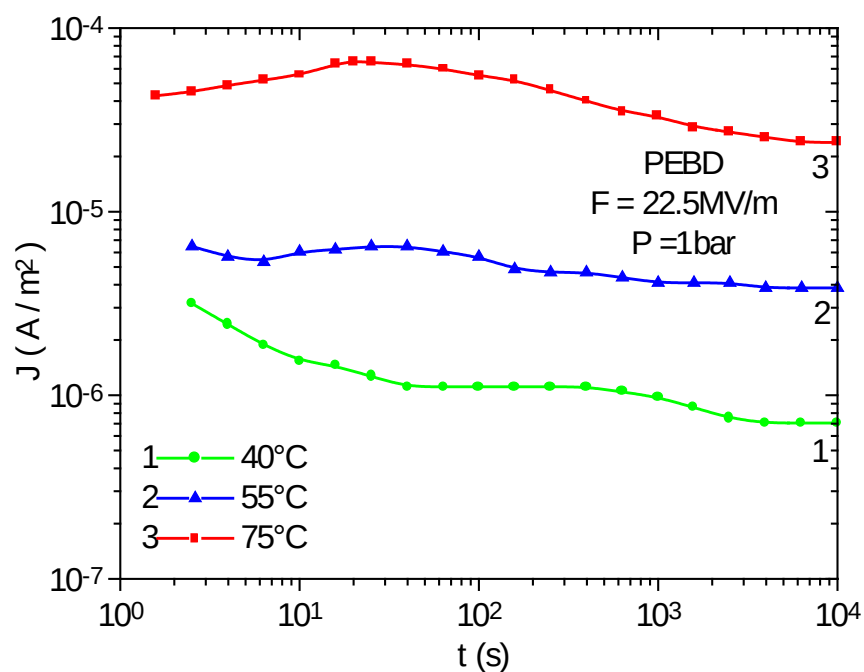


Figure IV-18 : Courants de charge à $F = 22.5$ MV/m : Effet de la température.

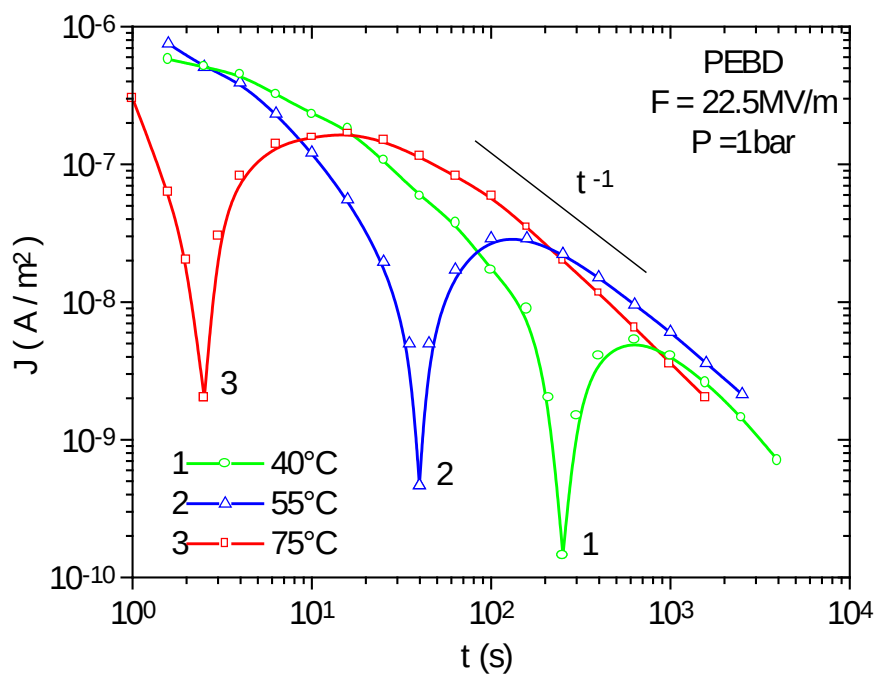


Figure IV-19 : Courants de décharge à $F = 22.5$ MV/m : Effet de la température.

J_c à 22.5MV/m. Au fur et à mesure que le champ augmente, la durée du régime transitoire diminue, laissant place à un régime quasi-stationnaire au cours duquel le courant n'évolue plus que sur une décade environ, durant plusieurs heures. Ce dernier présente (dans le domaine des champs élevés) un pic dont la localisation temporelle varie en sens inverse du champ. On remarque lors de la décharge (figure IV-22), l'anomalie citée précédemment et on constate une décroissance de t_i et t_m et une augmentation de J_m lorsque le champ électrique croît. Le tableau IV-6 résume les valeurs de ces trois paramètres pour $T = 75^\circ\text{C}$.

$F(\text{MV/m})$	t_i (s)	t_m (s)	J_m (A/m^2)
15.3	233	490	$7.6 \cdot 10^{-10}$
18.9	13.	31.5	$1.8 \cdot 10^{-8}$
22.5	2.5	17	$1.8 \cdot 10^{-7}$

Tableau IV-6: Variation de t_i , t_m et J_m avec le champ électrique à $T = 75^\circ\text{C}$.

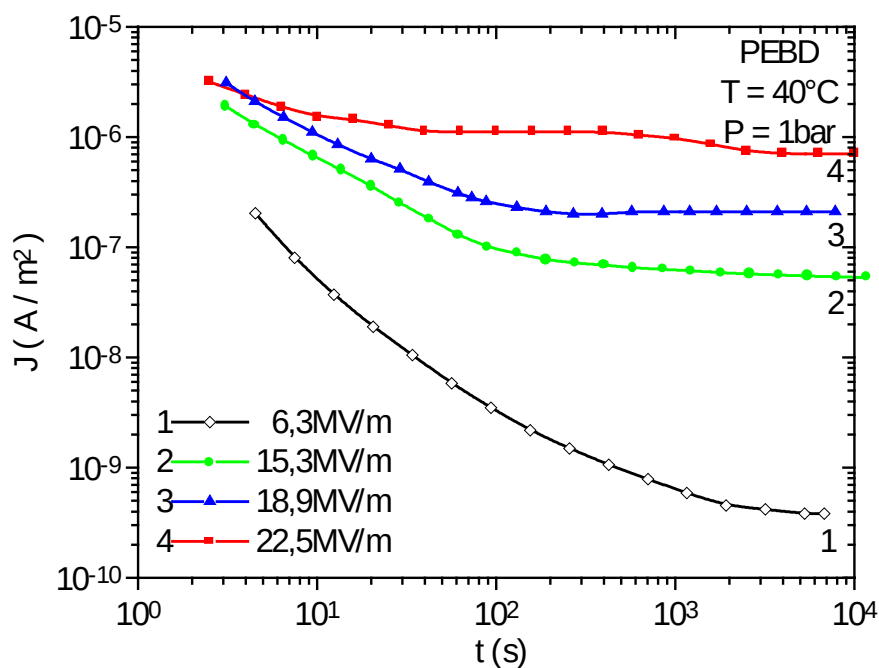


Figure IV-20 : Courants de charge à $T = 40^\circ\text{C}$: Effet du champ.

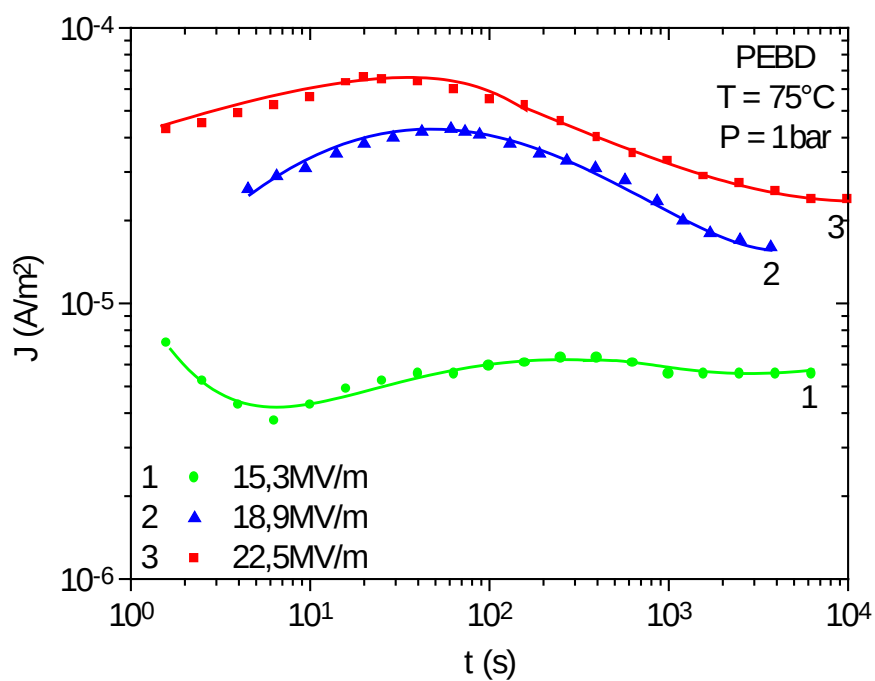


Figure IV-21 : Courants de charge à $T = 75^\circ\text{C}$: Effet du champ.

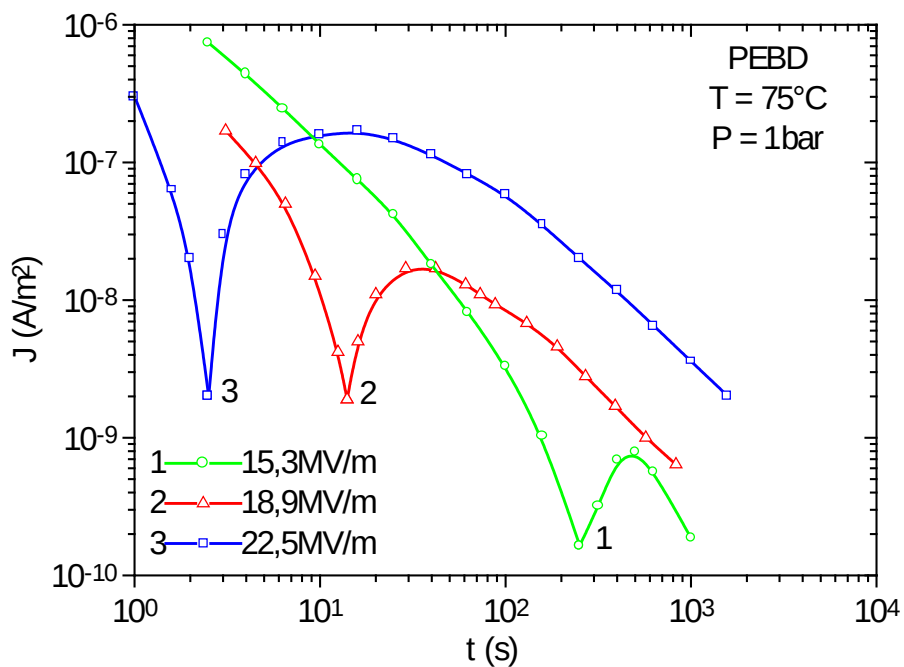


Figure IV-22 : Courants de décharge à $T = 75^\circ\text{C}$: Effet du champ.

IV. 3. Effet de la pression

Les résultats des mesures de courants, sous des pressions hydrostatiques allant de 1 à 850bars, à la température $T = 35^{\circ}\text{C}$ et sous un champ électrique de 15.3MV/m, sont reportés sur les figures (IV-23) et (IV-24). Pour une pression donnée le courant varie très peu, par exemple à 850bars, en une journée, le courant n'a pas atteint le dixième de sa valeur initiale. La pression a pour effet d'accroître le courant de charge dix fois lorsqu'on passe de 1 à 850bars. Là encore on constate l'existence d'un pic, certes à peine perceptible en échelle logarithmique et qui évolue avec la pression vers les temps courts.

Le courant de décharge présente l'anomalie à toutes les pressions appliquées. La pression s'est avérée être aussi une contrainte qui agit sur les paramètres du courant anormal. En effet t_i et t_m diminuent et J_m augmente. Ces valeurs sont reportées dans le tableau IV-7.

P (bar)	t_i (10^3s)	t_m (10^3s)	J_m (Am^{-2})
1	30	60	$6,0 \cdot 10^{-11}$
200	16	30	$1,3 \cdot 10^{-10}$
350	5,5	13	10^{-9}
850	2	4	$2,0 \cdot 10^{-9}$

Tableau IV-7 : Variation de t_i et t_m et J_m avec la pression.

La pression hydrostatique peut agir sur le matériau en rapprochant les positions des pièges. Si les porteurs sont de nature électronique, le transit des charges d'un piège à un autre se trouve favorisé par la diminution de la distance intersite, alors que le mouvement des charges ioniques est gêné par l'encombrement spatial que peut engendrer cette diminution.

En résumé, l'élévation de la pression hydrostatique tend à augmenter les temps t_i et t_m et à diminuer la valeur du courant J_m dans le cas des ions. Lorsqu'il s'agit d'électrons t_i , t_m diminuent et J_m augmente.

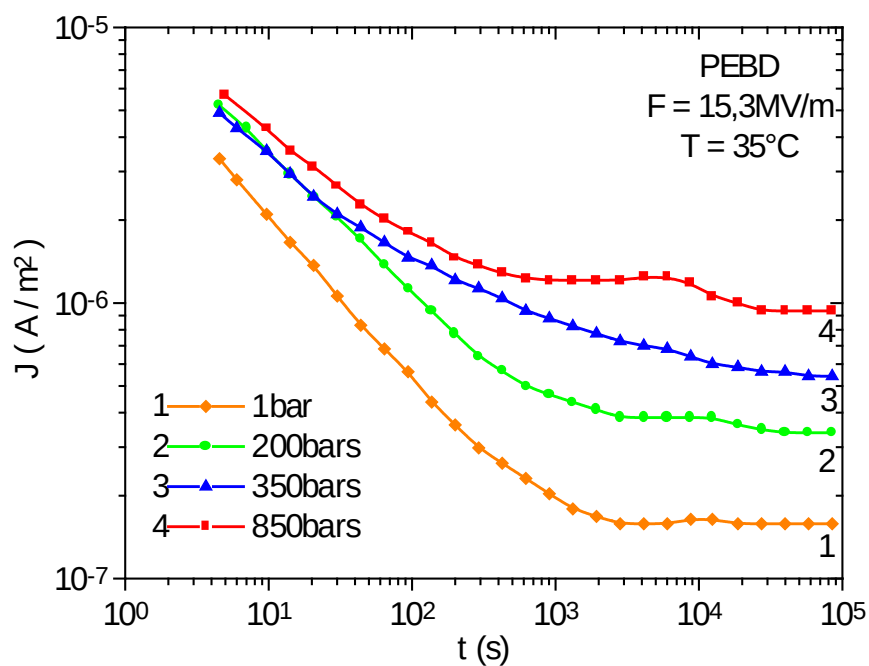


Figure IV-23 : Courants de charge à $F = 15.3 \text{ MV/m}$ et $T = 35^\circ\text{C}$: Effet de la pression.

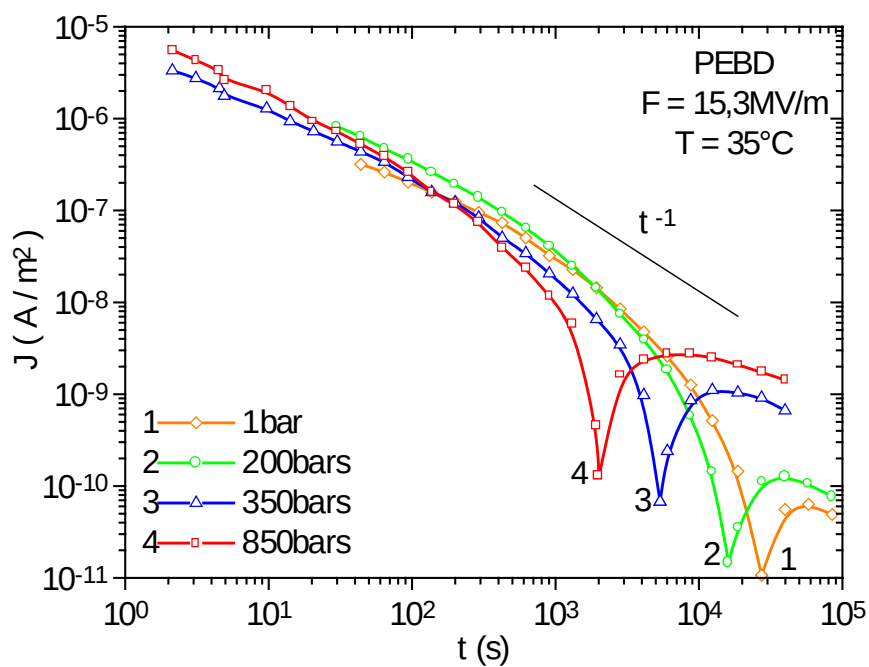


Figure IV-24: Courants de décharge à $F = 15.3 \text{ MV/m}$ et $T = 35^\circ\text{C}$: Effet de la pression.

IV. 4. Discussion

Le pic de courant de charge (quoique plus étalé) est semblable à celui qui est donné par le modèle de Many et Rakavy (Ch.I § III-3) relatif à un courant transitoire limité par la charge d'espace: Dans le cas d'un seul niveau de pièges le pic est obtenu au temps :

$$t_p = 0.786 \ d / \mu F$$

et le courant permanent J_∞ à t_∞ est proportionnel à F^2 . A partir des relations précédentes et des valeurs de t_p tirées des courbes de courant à 55°C et 75°C, les valeurs de $\text{Log}(\mu)$ sont calculées et reportées, en fonction de $\text{Log}(F)$, sur la figure (IV-25).

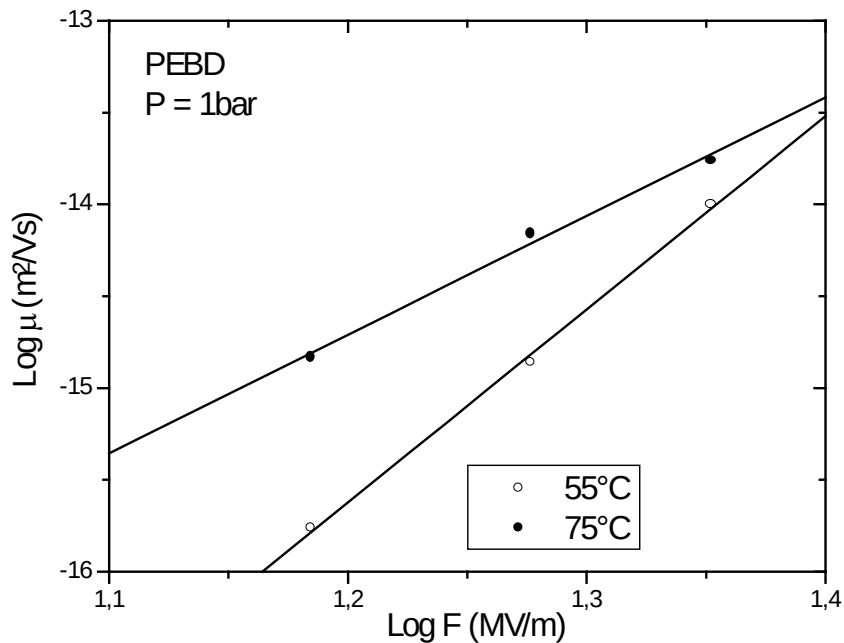


Figure IV-25 : Variation de la mobilité μ avec le champ F à partir des mesures de t_p et de l'hypothèse de SCLC.

Les droites obtenues, donnent $\mu = F^{(10.5)}$, d'où $J_\infty \propto F^{(12.5)}$. En comparant cette valeur à la caractéristique $J(F)$ (figure IV-5) obtenue expérimentalement ($J \propto F^{5.4}$), on constate un très grand écart. En fait t_p est loin de varier en $1/F$. Et même si l'on tenait compte de la variation de la mobilité avec le champ, l'hypothèse de Many et Rakavy ne conviendrait toujours pas.

L'hypothèse d'une charge qui se déplacerait dans un isolant avec un seul niveau de pièges, d'une électrode à l'autre n'est pas très réaliste. En fait les caractéristiques $J(F)$ ont montré qu'on avait une distribution exponentielle de pièges en énergie [4].

A haut champ, la présence de pic dans le courant de charge a été également observée par bon nombre d'auteurs [6, 23-2]. Selon Patsch [23] ce pic serait directement lié à l'effet de la température. Pour rendre compte des résultats expérimentaux sur le PE, il développe un modèle dans lequel il tient compte de l'existence de niveaux pièges superficiels et profonds. Les expériences de Pellisou ont montré que le temps t_p diminue avec la température comme nous l'avons observé à partir de nos mesures. D'après Iwamoto et al [26], ce temps (t_p) correspond au temps de transit de la charge d'espace d'une électrode à l'autre. On conçoit aisément que ce transit est d'autant plus rapide que les contraintes appliquées (F , T , P) sont importantes. Par exemple la température aurait pour effet de libérer les charges piégées dans les chaînes polymériques et la pression de rapprocher les sites et d'abaisser les barrières de potentiel entre les sites par lesquels les porteurs transitent.

Quant aux courants de décharge anormaux, ils pourraient être attribués comme l'a suggéré Mizutani [27,28], à l'injection d'homocharges avec électrodes bloquantes. Il a été mis en évidence par Suzuoki et al [5] que dans le PE une charge d'espace positive (hétérocharge) se forme près de la cathode après l'application d'un champ électrique et les électrons sont injectés sous l'effet du champ à la cathode. Après court-circuit, à cause des hétérocharges(+), les électrons continuent à être injectés produisant un courant de décharge anormal qui circule dans le même sens que le courant de charge et qui finit par s'éteindre après avoir atteint sa valeur maximale J_m à l'instant t_m .

Actuellement on ne peut qu'émettre des hypothèses sur la cause de l'existence de ces courants anormaux. Néanmoins une chose est sûre, c'est qu'elle est due à la présence de charges d'espace au sein du matériau de sorte que le champ interne n'est plus uniforme. Dans notre laboratoire, nous avons déjà mis en évidence, à partir des mesures de courant permanent en fonction du champ électrique, de la température et de la pression, la présence d'une charge d'espace dans le volume du matériau et au voisinage des électrodes [8]

C'est à partir de ces résultats que nous avons émis l'hypothèse d'une distribution de charge près des électrodes en plus d'une distribution spatiale uniforme de charges provenant

probablement de porteurs piégés et qui nous a permis de simuler l'anomalie des courants de décharge, ce travail sera présenté au chapitre VI.

Bibliographie

1- M. Saidi

Thèse de magister, USTHB, Alger (1985)

2- D.K. Davis

IEEE Proc., A 128, 153 (1981)

3- K. Pietrowski

J.Electrostat.,13, 301 (1982)

4- N. Saidi-Amroun,, M. Saidi, M. Bendaoud, T.G. Hoang

Ann. Chim. Vol. 16-9, p.549, (1994)

5- Y. Suzuoki, H. Muto, T. Mizutani et M Ieda

Jap.J.Appl.Phys.,Vol.24, No.5, p.604-09 (1985)

6- S. Pelissou

Thèse de P.H.D., Université de Montréal, Canada (1986)

7- M. Ieda, T. Mizutani, Y. Suzuoki et M. Hanai

Jap.J.Appl.Phys.,Vol.21, No.11, p.1639-41 (1984)

8- M. Saidi

Thèse de Doctorat ès Science, USTHB, Alger (1996)

9- H. Adachi, Y. Shibata et S. Ono

J.Phys..D:Appl.Phys.,Vol.4, p.988-94 (1971)

10- M. Farzaneh,

Thèse de 3^{ème} cycle, Université Paul Sabatier, Toulouse (1980)

11- M.Saidi, N.Amroun, M.Bendaoud, R.Essolbi, A Antoniou et Hoang-The-Giam

High Pressure Research , Vol.9, p.355-358 (1992)

12- V. Adamec et J.H. Calderwood

J.Phys..D:Appl.Phys.,Vol.16, p.203-211 (1983)

13- P. Destruel

Thèse de doctorat ès-Sciences UPS Toulouse France(1980)

- 14- D.K. Das Gupta et R.S. Brockley
J.Phys..D:Appl.Phys.,Vol.11, p.955-962, (1978)
- 15- P. Fischer et P. Röhl
J.Polym.Sci., Vol.14, p.531-542 (1976)
- 16- D.K. Das Gupta et P.C.N. Scarpa
IEEE Elect.Insul.Mag., Vol.15, No.2, p.23-32, (1999)
- 17- P.C.N. Scarpa et D.K. Das Gupta
ICSD'98. IEEE 6th Int.Conf.Cond.Break.Sol.Diel., (1998)
- 18- MC. Lanca, M.T. Viciosa, C.J. Diasl, J.N. Marat Mendes, M.A. Bento et D.K. Das Gupta
ISE10 10th International Symposium on Electrets (1999)
- 19- PCN Scarpa, E. L. Legenza et D.K. Das Gupta
ISE10 10th International Symposium on Electrets (1999)
- 20- G.C. Montanari et D.K. Das Gupta
IEEE Transactions on Dielectric and Electrical Insulation, Vol.7, No.4, p.319-24 (2000)
- 21- M. Murano, L. Moreno, P.C.N. Scarpa et D.K. Das Gupta
Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (1999)
- 22-. N. Saidi-Amroun,, M. Saidi, M. Bendaoud, R. Essolbi, T. Elalam, T.G. Hoang
High Pressure Research, Vol. 7, p. 153, (1991)
- 23- R. Patsch,
J. Phys. D: Apl.Phys.23(1990)1497-1505
- 24- J. Lowell
J. Phys..D : Appl. Phys.,Vol.23, p.205-21(1990)
- 25- I. Kitani, N. Tsuji et K. Arii
Jap.J.Appl.Phys.,Vol.23, No.7, p.855-60 (1984)
- 26- M. Iwamoto,
J. Appl. Phys. 79 (10) p.7936-43 (1996)
- 27- T. Mizutani, M.I eda et I.B. Jordan
Jap.J.Appl.Phys.,Vol.18, No.1, p.65-70 (1979)
- 28- T . Mizutani, K. Kaneka et M. Ieda
Jap.J.Appl.Phys.,Vol.20, No.8, p.1443-48 (1981)

Chapitre V :

LE POLYIMIDE KAPTON (PI)

Chapitre V

LE POLYIMIDE KAPTON (P.I)

I. LE MATERIAU

Le KAPTON, dont le nom chimique est poly(4,4-diphénylene pyromellitimide), est issu de la famille des polyimides. Sa formule chimique est représentée sur la figure V-1

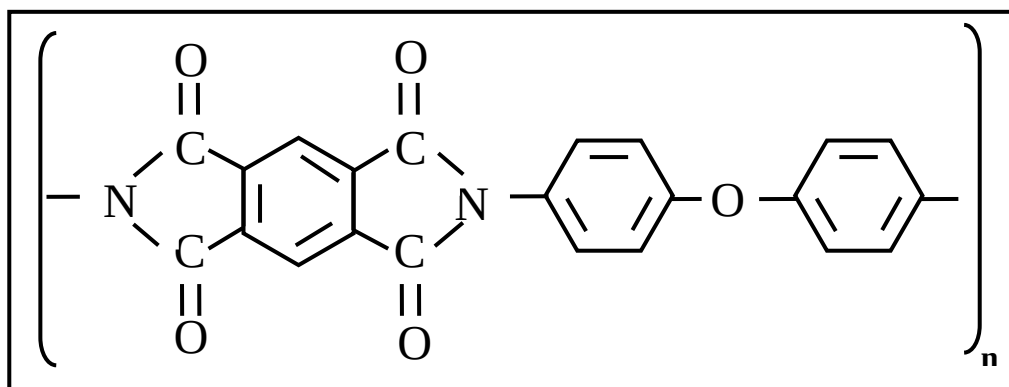


Figure V-1: Formule chimique du polyimide Kapton

Les polyimides les plus couramment utilisés sont obtenus par activation d'une diamine sur un dianhydride [1, 2].

Les échantillons de Kapton HN que nous avons étudiés, nous ont été fournis par la société 'Dupont de Nemours' [1]. Ils se présentent sous forme de films de 25µm d'épaisseur, ils ont été métallisés avec de l'aluminium

Leurs principales caractéristiques sont résumées dans le tableau V-1.

Caractéristiques physiques	Valeurs	Conditions d'essai
Résistance à la rupture (MPa)	231 139	23°C 200°C
Module d'élasticité en traction (GPa)	2.5 2	23°C 200°C
Masse volumique (g/cm ³)	1.42	23°C
Indice de réfraction	1.66	23°C
Coefficient de Poisson	0.34	23°C
Coefficient de dilatation thermique (ppm/°C)	20	-14°C à 38°C
Conductivité thermique (W/m.°K)	0.12	23°C
Chaleur spécifique (J/g.°K)	1.09	
Point de fusion	Ne fond pas	
Température de transition vitreuse (T_g)	transition du second ordre entre 360°C et 410°C	
Rigidité diélectrique (V/μm)	303	60 KHz
Constante diélectrique	3.4	1 KHz
Facteur de perte ($tg \delta$)	$1.8 \cdot 10^{-3}$	1 KHz
Résistivité transversale (Ω.cm)	$1.5 \cdot 10^{17}$	

Tableau V-1: Principales caractéristiques du Kapton.

La résine polyimide ne manifeste pas de transition vitreuse franche du moins jusqu'à 500°C et ne se carbonise qu'à partir de 800°C. Cependant des études sur ce matériau [1] ont montré la présence d'une transition du second ordre entre 360°C et 410°C, que l'on adopte comme transition vitreuse.

Les polyimides présentent une exceptionnelle stabilité thermique et une bonne résistance au feu. L'aptitude du Kapton à conserver ses excellentes caractéristiques électriques et mécaniques dans une plage étendue de température, fait de lui un bon élément de la famille de polymères thermostables.

Cette qualité des polyimides repose sur la présence dans leur édifice moléculaire de noyaux aromatiques et hétérocycles imides.

En raison de leurs nombreuses qualités, les polyimides trouvent de larges domaines d'application [3-6]. Ainsi, le Kapton est utilisé dans l'industrie électronique [7] comme substrat pour les circuits imprimés souples et multicouches [8]. En électrotechnique, sa bonne tenue thermique et sa résistance exceptionnelle à la plupart des produits chimiques lui permettent d'être employé dans l'isolation des bobinages d'induction [9, 10] et dans la réalisation des moteurs de classe H (180 °C).

Par ailleurs, l'industrie aéronautique l'adopte pour des raisons évidentes de gain de poids et surtout pour sa résistance thermique très appréciée dans le domaine de l'aviation. Compte tenu de son excellente résistance aux radiations, il entre dans la fabrication des parois des navettes spatiales [11,12].

Le Kapton est également employé dans les réacteurs nucléaires et les accélérateurs linéaires de particules [13, 14]. Dans les applications militaires et industrielles, il demeure tenace et flexible après des expositions de 10^9 rads aux rayons gamma.

II. REGIME PERMANENT

De nombreux travaux sur le polyimide en régime permanent [15, 16] soulignent la prédominance d'un mécanisme de conduction d'origine ionique. Une étude bibliographique est donnée dans la thèse de magister de D. Benzerouk [17], où plusieurs mécanismes de conduction ont été mis en évidence.

Nous avons effectué des mesures de courants pour des températures comprises entre 100°C et 180°C et avec des champs électriques allant de 24 MV/m à 64 MV/m. Les courants de charge ont un comportement différent selon la température de consigne et le champ appliqué, et ne se stabilisent, dans certains cas, qu'après plusieurs heures. Nous avons considéré que le régime permanent est atteint lorsque la valeur du courant reste pratiquement constante sur une heure.

II. 1. Effet de la température

Les courbes $\text{Log } J = f(1/T)$, représentées sur la figure V-2, font apparaître un changement de pente à une température $T = 130^\circ\text{C}$. Les énergies d'activation déduites des pentes des droites obtenues, en supposant une loi de type Arrhenius, sont :

$E_a = 1.4 \text{ à } 1.7\text{eV}$	lorsque	$T < 130^\circ\text{C}$
$E_a = 2.3 \text{ à } 2.9\text{eV}$	lorsque	$T > 130^\circ\text{C}$

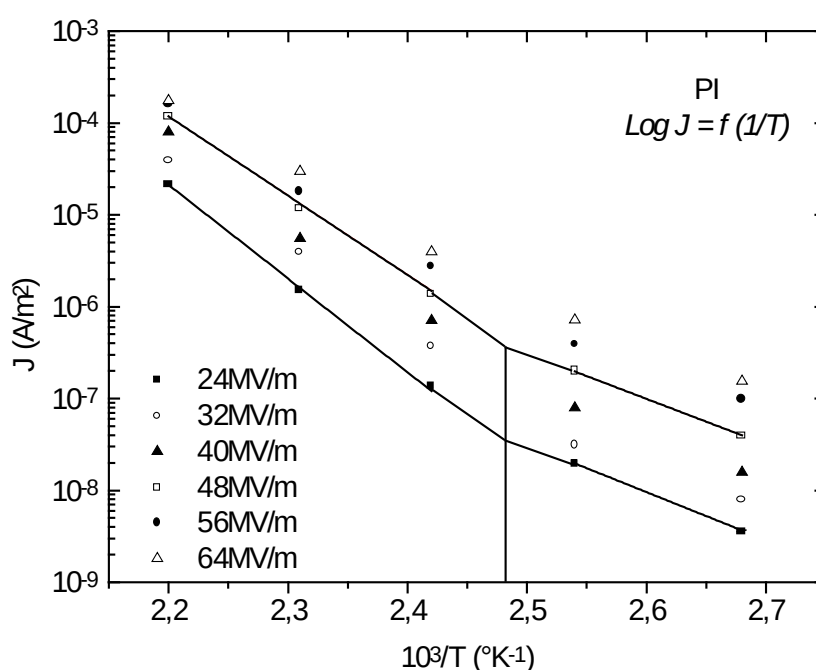


Figure V-2 : Courants en fonction de $1000 / T$

Ces énergies d'activation sont de l'ordre de celles trouvées, dans la littérature, sur le polyimide:

Benalla [18]	$E_a = 0,46\text{eV}$	pour	$20^\circ\text{C} < T < 100^\circ\text{C}$
	$E_a = 2,43\text{eV}$	pour	$100^\circ\text{C} < T < 350^\circ\text{C}$
Chohan [19]	$E_a = 1,1 \text{ eV à } 100\text{V}$	pour	$27^\circ\text{C} < T < 100^\circ\text{C}$

II. 2. Effet du champ électrique

La figure V-3 représente les courbes $\text{Log } J = f(F^{1/2})$. Dans le cas d'un mécanisme de type Schottky ou Poole-Frenkel, la densité de courant est donnée par l'expression (Ch.I) :

$$J = J_0 \exp\left(-\frac{\phi_0 - \beta F^{1/2}}{kT}\right) \quad (\text{V-1})$$

Les valeurs de $\alpha = \beta / \beta_S$ obtenues à partir des pentes des droites représentées sur la figure V-3, sont portées sur le tableau V-2

$T(^{\circ}\text{C})$	100	120	140	160	180
α	2	2	1,8	1,7	1,5

Tableau V-2

On note que, tant que la température reste inférieure à 130°C , α prend une valeur égale à 2 qui correspond à un modèle de type Poole-Frenkel. Ceci a été aussi remarqué par Chohan [19] qui a opéré avec des températures comprises entre 27°C et 100°C et des champs tels que $4 \text{ MV/m} < F < 120 \text{ MV/m}$.

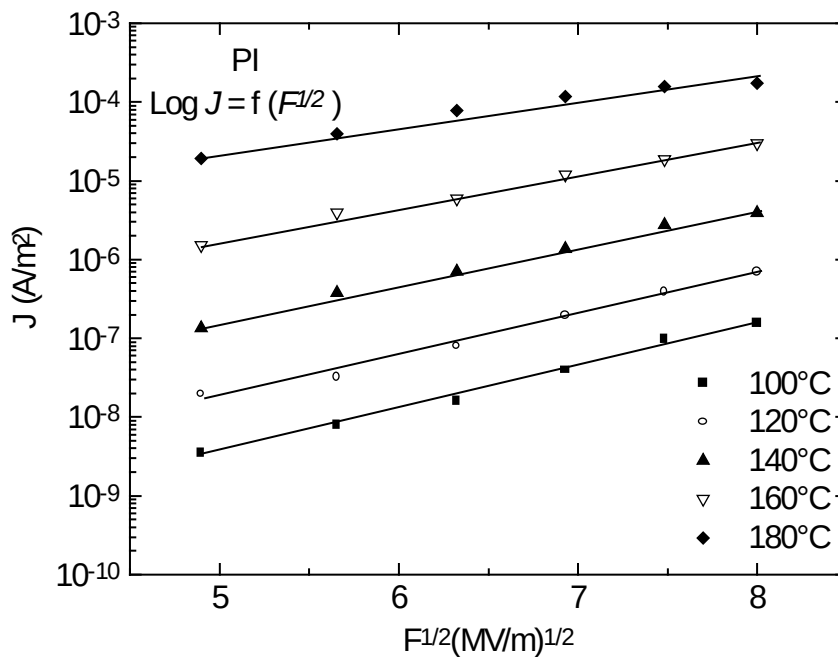


Figure V-3 : Courants en fonction de la racine carrée du champ

La valeur de α s'écarte de 2 dès que la température dépasse 120°C. En fait, si l'on tient compte de la présence de charges d'espace près des électrodes, alors le champ à la cathode n'est plus égal au champ appliqué V/d . et on pourra écrire [20] :

$$F_c = \gamma \frac{V}{d} \quad (V-2)$$

En effet l'existence d'homocharges, abaisse le champ à la cathode et le coefficient γ prend des valeurs comprises entre 0 et 1. Par contre l'accumulation d'hétérocharges, entraîne un accroissement du champ au voisinage de l'électrode et on a $1 < \gamma < 2$, comme $\alpha^2 = \gamma$ on obtient $1 < \alpha < 1.4$

Notons que si l'on recalcule la valeur de α pour $T > 120^\circ\text{C}$ à haut champ, on obtient alors un meilleur accord avec le modèle d'accumulation d'hétérocharges.

De plus, les travaux de Kosaki [21-23] sur le kapton ont montré qu'aucune charge d'espace n'avait été détectée tant que T reste inférieure à 100°C, par contre à haute température et pour des champs élevés, des hétérocharges tendent à se former près des électrodes

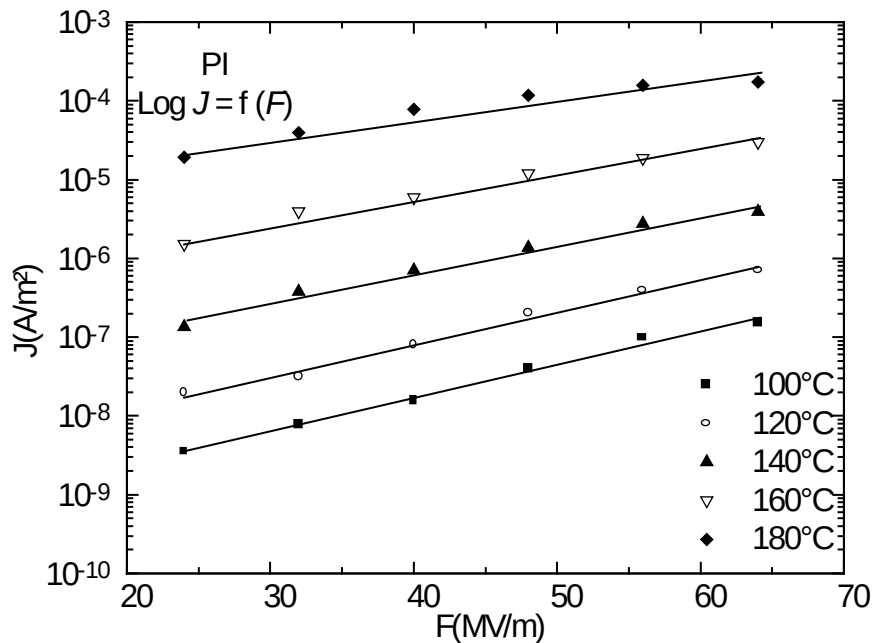


Figure V-4 : Courants en fonction du champ

Dans le cas d'une conduction de type ionique. La densité de courant s'écrit (Ch.I) :

$$J = J_o \exp\left(-\frac{2\phi_o - e F \lambda}{2 k T}\right) \quad (V-3)$$

Les caractéristiques $\text{Log } J = f(F)$ représentées dans la figure V-4, permettent d'obtenir les distances de saut λ . On trouve des valeurs qui se situent autour de 60Å tant que T reste inférieure à 140°C puis on obtient 54Å et 45Å pour 160°C et 180°C respectivement. La variation du paramètre λ avec la température montre un changement de comportement du kapton au voisinage de 140°C

Les travaux de Sawa et al [24] sur le Kapton montrent aussi une décroissance de λ avec la température. Les valeurs du paramètre λ obtenues à partir de nos mesures sont comparables à celles données par :

Hanscomb et al [25]	$\lambda = 50 \text{ à } 60\text{\AA}$	pour $150 < T < 250^\circ\text{C}$
---------------------	--	------------------------------------

Sharma et al [26]	$\lambda = 50 \text{ à } 60\text{\AA}$	pour $100 < T < 200^\circ\text{C}$
-------------------	--	------------------------------------

Motyl et al [16] expliquent la variation de λ avec la température dans le Kapton HN, par un modèle considérant une distribution de hauteurs de barrières de potentiel.

En résumé, l'effet Poole Frenkel est le mécanisme dominant pour les températures inférieures à 140°C. A partir de cette température, la libération du mouvement des chaînes facilite la migration des ions ce qui conduit à la formation d'hétérocharges près des électrodes et entraîne un accroissement du champ à l'électrode et le passage d'électrons par effet Schottky.

Quant à l'origine précise de cette conduction ionique, il est difficile de l'attribuer à tel ou tel type d'ions. Néanmoins, un certain nombre d'ions sont susceptibles de participer à la conduction par exemple le chlorure, le sodium [24, 26] ou le potassium, les protons H^+ [27,28], etc.

III. REGIME TRANSITOIRE

III. 1. Résultats expérimentaux

Les figures V-5 à V-12 montrent l'évolution des courants de charge et de décharge au cours du temps. Chaque réseau de courbes, tracé pour différentes valeurs du champ électrique, correspond à une température donnée. L'étude du régime permanent a mis en évidence une température, qui se situe entre 120°C et 140°C, à partir de laquelle le comportement électrique du matériau change complètement.

Là encore on peut faire la même remarque. A 100°C, la figure V-5 met en évidence une décroissance monotone du courant de charge en fonction du temps. La durée du régime transitoire diminue à mesure que l'intensité du champ électrique augmente. C'est ainsi qu'avec un champ de 64 MV/m, le régime permanent est pratiquement atteint au bout d'une centaine de secondes alors que, lorsque le champ est égal à 24 MV/m, le courant de charge décroît toujours après deux heures.

A 120°C les courants de charge commencent à présenter une autre allure. Après une décroissance rapide le courant semble se stabiliser puis décroît de nouveau avant d'arriver à son régime permanent

Aux hautes températures ($T = 160^\circ\text{C}$ et 180°C), les figures V-9 et V-11. montrent un comportement différent du courant de charge. En effet il décroît jusqu'à un minimum, puis il remonte avant d'atteindre le régime permanent. Ce comportement a été déjà observé dans les matériaux dont la conduction est d'origine ionique [29].

Quant aux courants de décharge, portés sur les figures V-6, V-8, V-10 et V-12, ils ne présentent pas de particularités. Ils décroissent lentement au cours des premières secondes puis plus rapidement jusqu'à s'annuler aux temps longs.

Toutes ces figures mettent en évidence la non superposition des courants d'absorption et de résorption ce qui permet de conclure que la polarisation dipolaire n'est pas le phénomène prépondérant durant le régime transitoire.

Les courants d'absorption à 100°C et 180°C sont représentés sur les figures V-14 et V-15 pour différentes valeurs du champ électrique et montrent un comportement différent du matériau, pour ces deux températures.

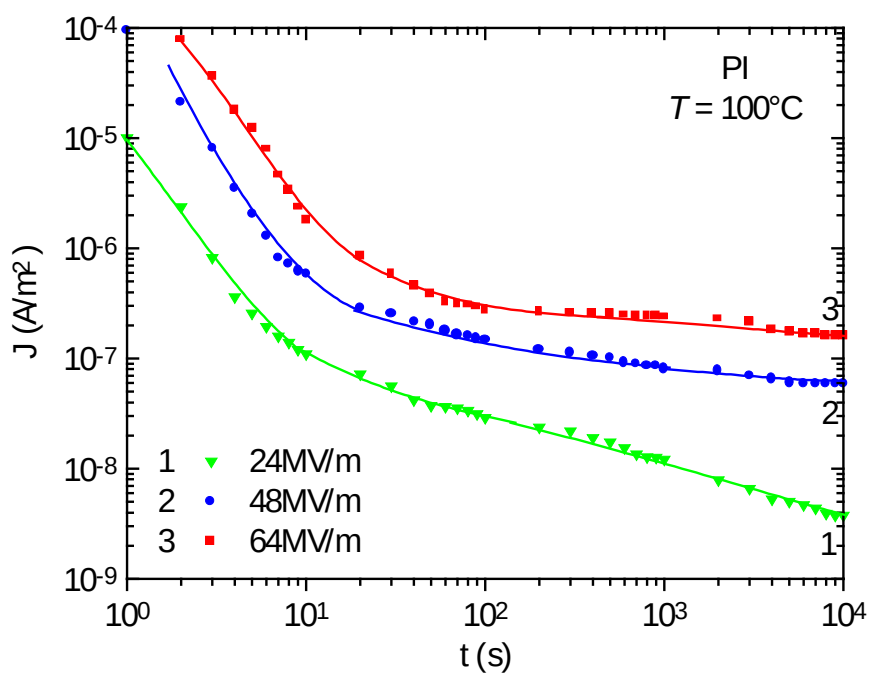


Figure V-5 : Courants de charge à $T = 100^\circ\text{C}$: Effet du champ.

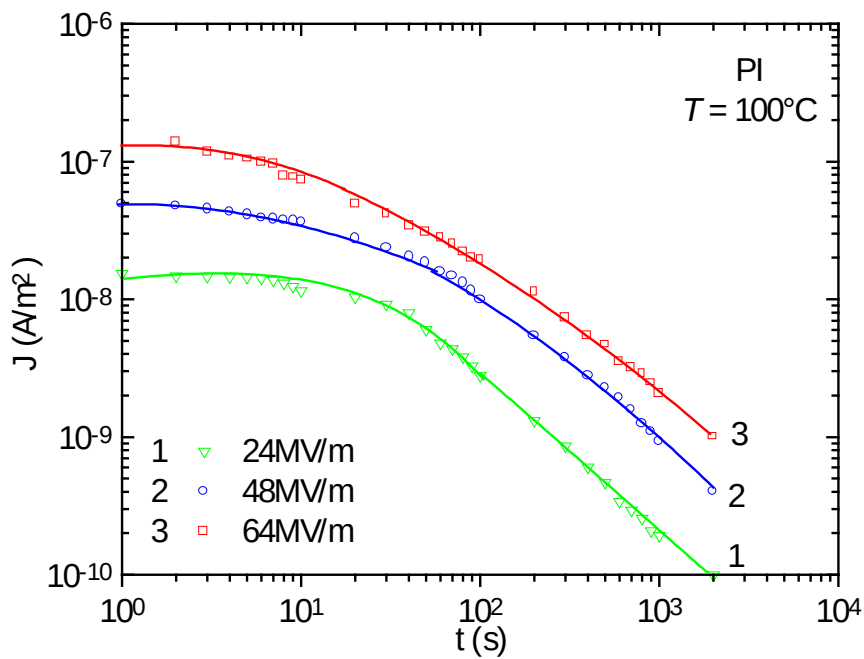


Figure V-6 : Courants de décharge à $T = 100^\circ\text{C}$: Effet du champ.

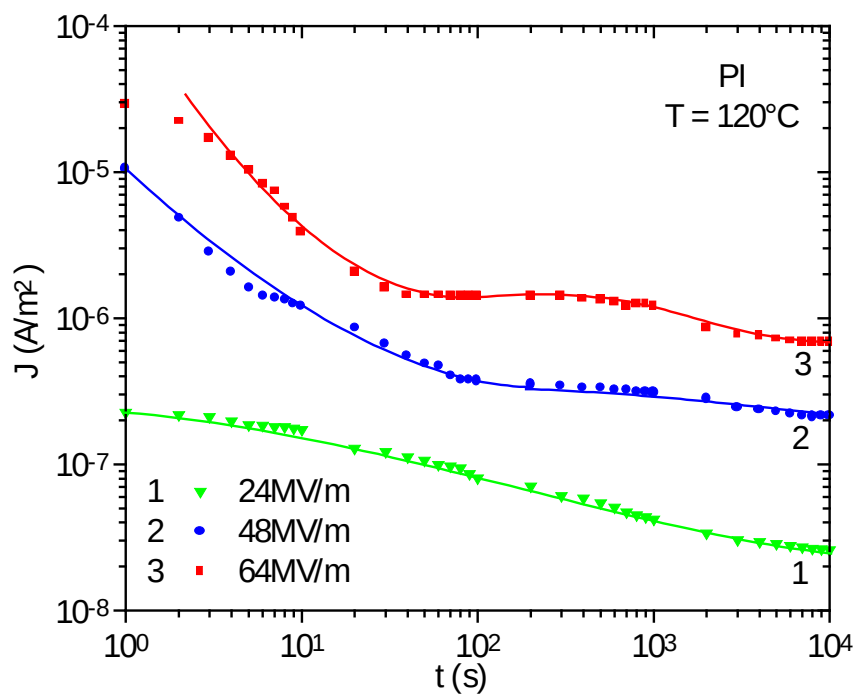


Figure V-7 : Courants de charge à $T = 120^\circ\text{C}$: Effet du champ.

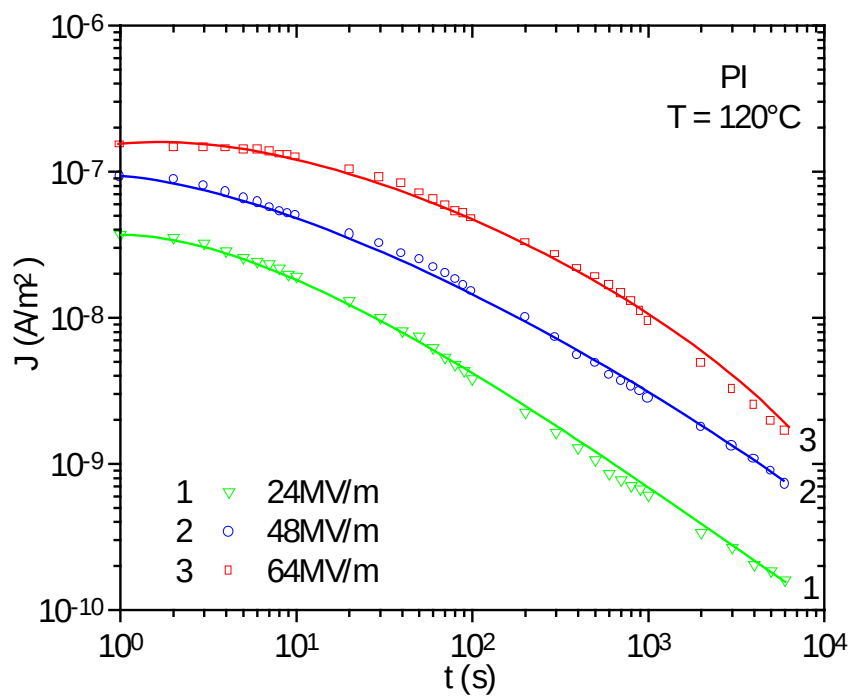


Figure V-8 : Courants de décharge à $T = 120^\circ\text{C}$: Effet du champ.

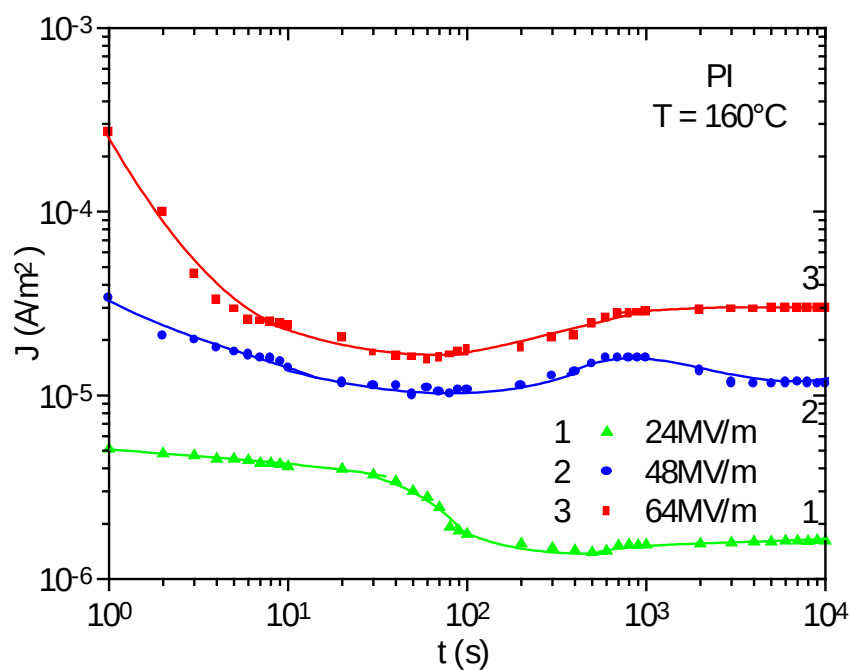


Figure V-9 : Courants de charge à $T = 160^\circ\text{C}$: Effet du champ.

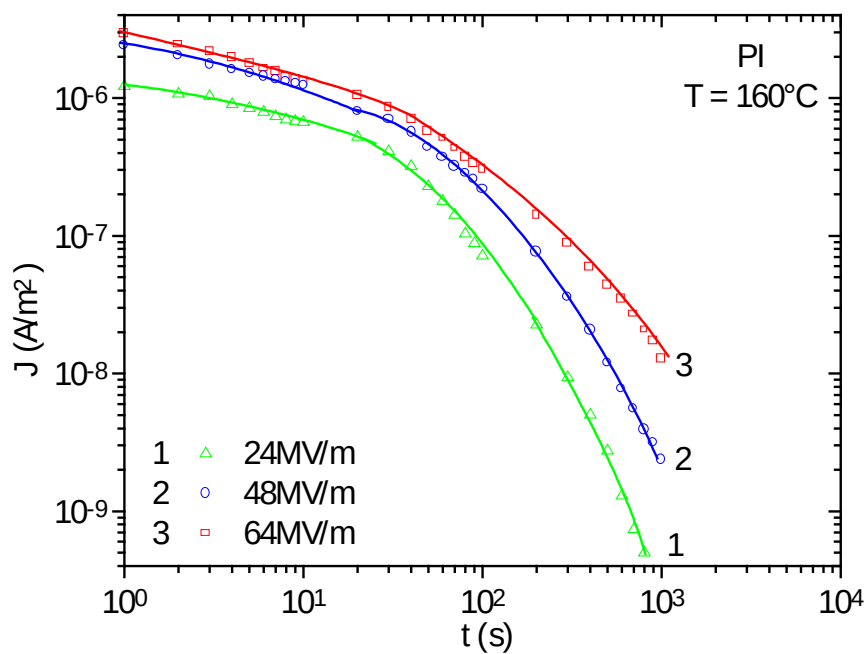


Figure V-10 : Courants de décharge à $T = 160^\circ\text{C}$: Effet du champ.

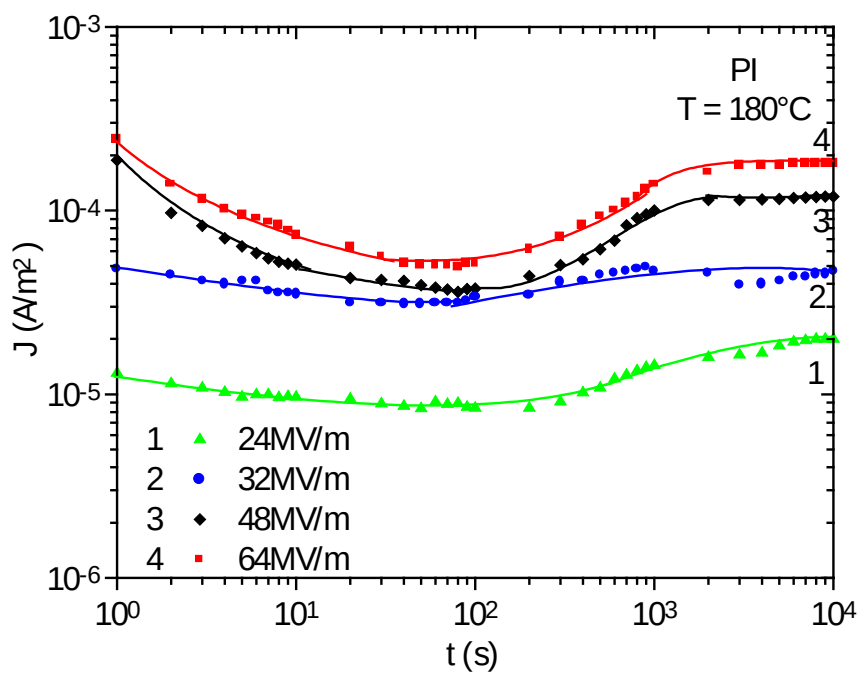


Figure V-11 : Courants de charge à $T = 180^\circ\text{C}$: Effet du champ.

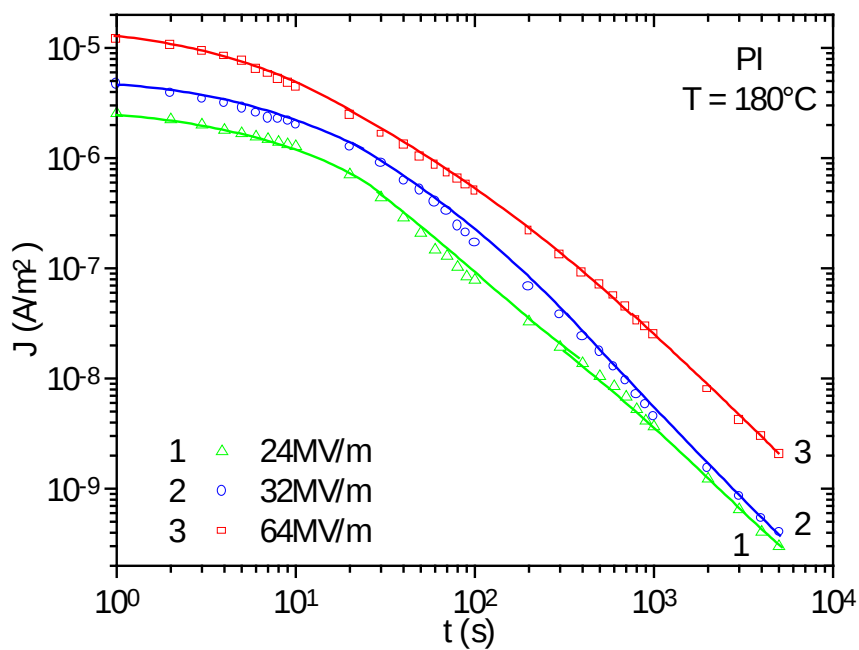


Figure V-12 : Courants de décharge à $T = 180^\circ\text{C}$: Effet du champ.

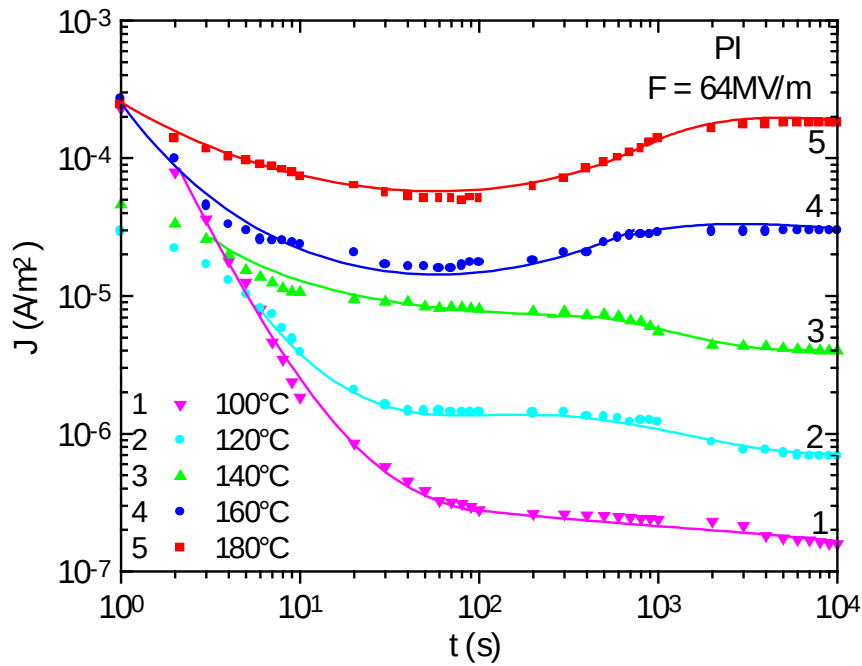


Figure V-13 : Courants de charge à $F = 64 \text{ MV/m}$: Effet de la température.

A $T > 140^\circ\text{C}$ le courant d'absorption peut présenter des valeurs négatives lorsque le courant de charge est inférieur au courant permanent

$$J_a = J_c - J_p .$$

La figure V-13 met en évidence l'influence de la température sur les courants de charge correspondant à un champ électrique intense $F = 64 \text{ MV/m}$.

Le courant de charge augmente considérablement avec la température, il croît d'environ 1000 fois lorsque la température passe de 100°C à 180°C .

A $T = 100^\circ\text{C}$, le courant décroît de façon monotone puis tend à se stabiliser après un temps de l'ordre de 10^4 secondes. Au fur et à mesure que la température augmente, le comportement du courant change. En effet, le courant a tendance à augmenter après un certain temps puis finit par se stabiliser aux temps longs. A 160°C et 180°C on retrouve des courbes qui présentent un minimum autour de 60 secondes.

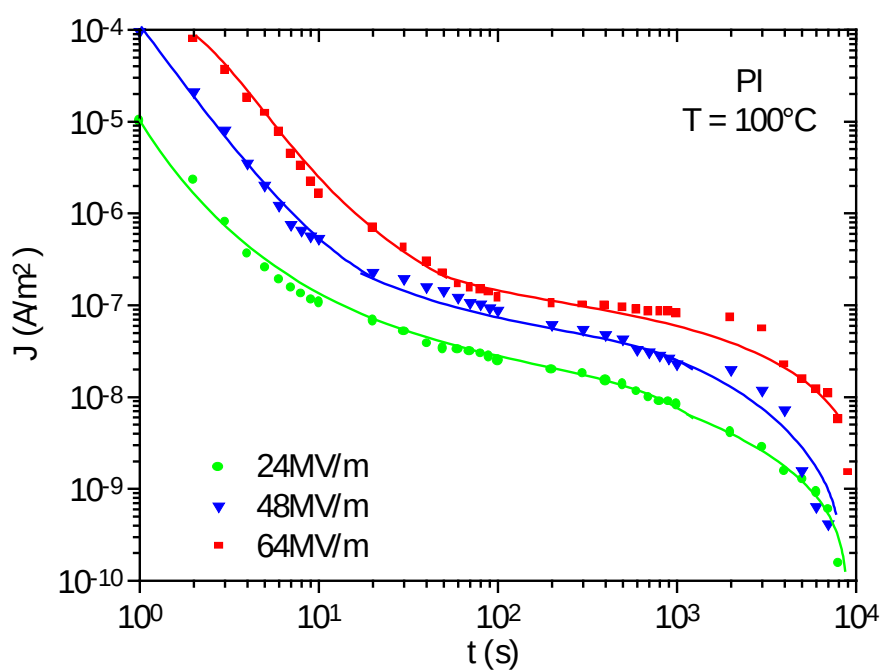


Figure V-14 : Courants d'absorption à $T = 100^\circ\text{C}$: Effet du champ.

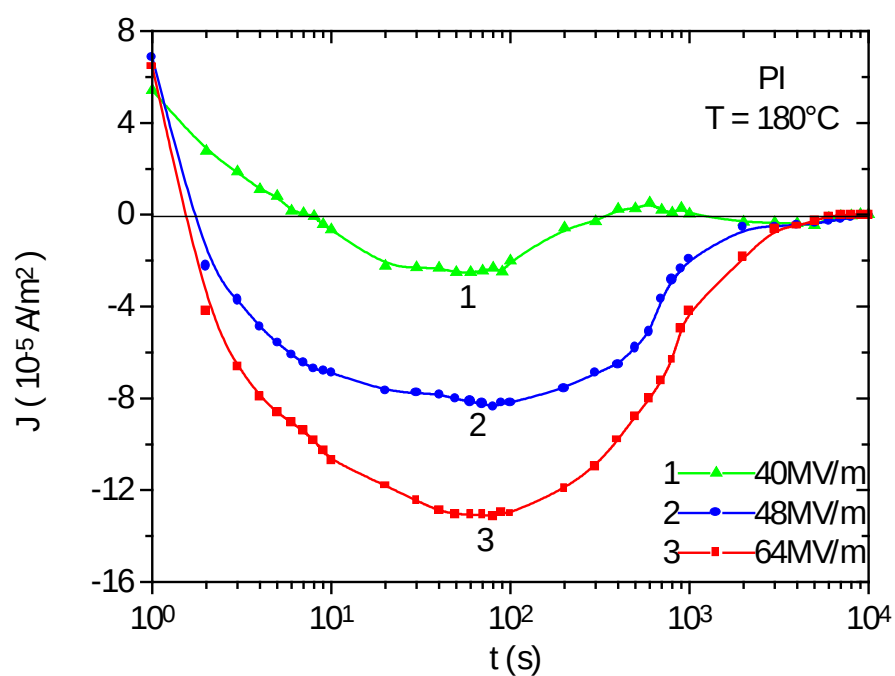


Figure V-15 : Courants « d'absorption » à $T = 180^\circ\text{C}$: Effet du champ.

III. 2. Courants isochrones en fonction du champ

Les courants isochrones, à 10s, 100s, 500s et 1000s, sont représentés en fonction du champ électrique, en échelle logarithmique pour les températures $T = 100^{\circ}\text{C}$ et $T = 180^{\circ}\text{C}$, sur les figure V-16 et V-17 respectivement.

La dépendance de ces courants de décharge peut s'exprimer par la relation:

$$J(t) = k . F^p \quad (\text{V-4})$$

qui dénote la présence de charges d'espace. L'exposant p est pratiquement égal à 2

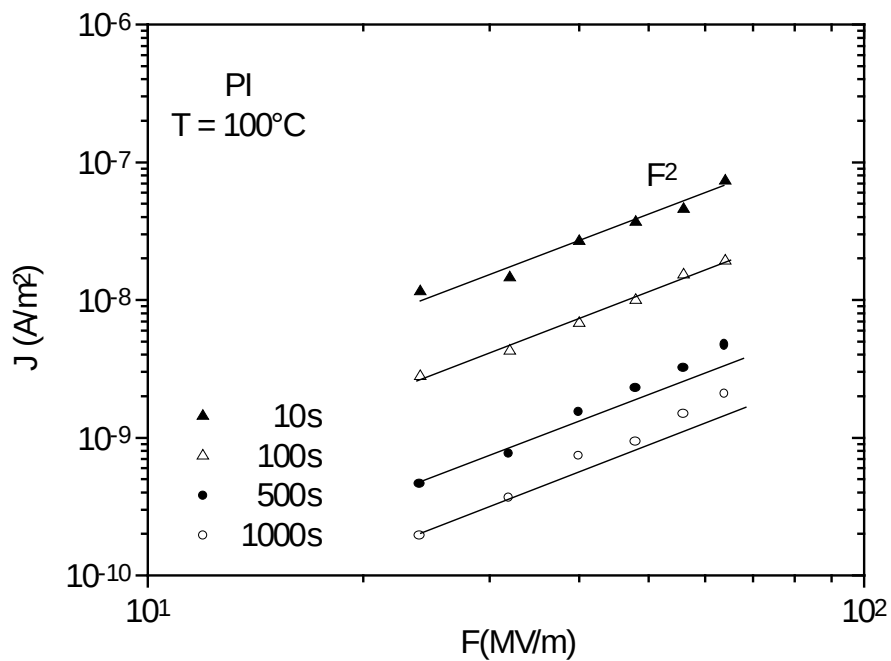


Figure V-16 : Courants isochrones de décharge en fonction du champ à 100°C .

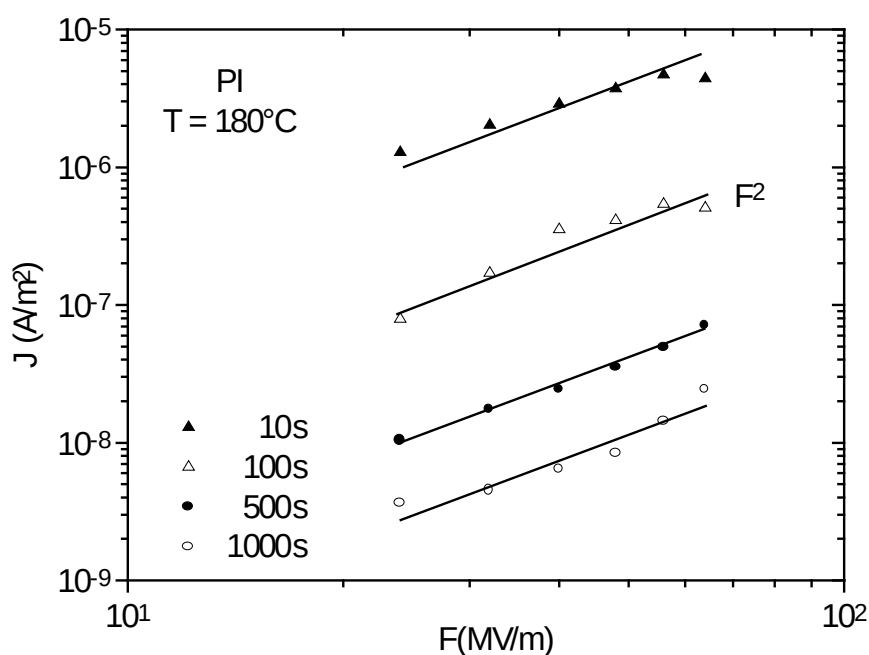


Figure V-17 : Courants isochrones de décharge en fonction du champ à 180°C.

III. 3. Courants isochrones en fonction de la température

Dans le cas où on ne peut calculer les temps de relaxation par la méthode de Wintle [30] qui est basée sur la détermination du point de cassure dans la courbe $\text{Log } J = f(\text{Log } t)$ et de la valeur de n , une autre méthode proposée par Vanderschueren [31] est employée. Cette dernière consiste à tracer, à un instant donné, les courants en fonction de la température. Elle a été également utilisée par Das Gupta [32, 33] sur le polyéthylène basse densité et le polyvinylidene fluoride (PVDF polyfluorure de vinylidene)

Nous avons donc représenté sur les figures V-18 et V-19 les courants isochrones à 500s et 1000s en fonction de la température et pour différentes valeurs du champ électrique. Les courbes $J(T)$ montrent la présence d'un maximum au delà de 100s à une température comprise entre 100°C et 140°C, et cela pour toutes les valeurs de champ. Ce résultat confirme le changement de comportement du polyimide au dessus de 120°C qui a été mis en évidence en régime permanent.

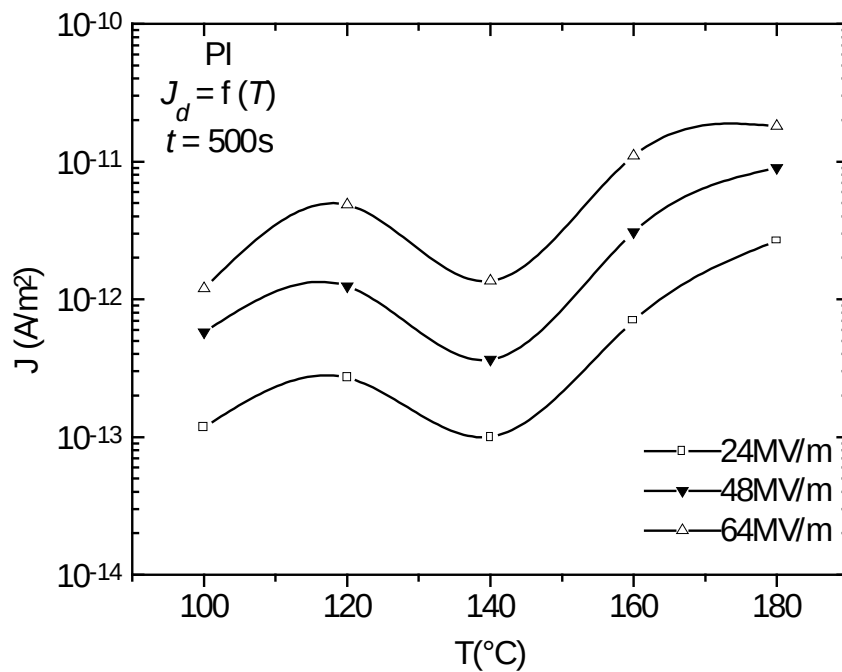


Figure V-18 : Courants isochrones de décharge en fonction de T à $t = 500s$

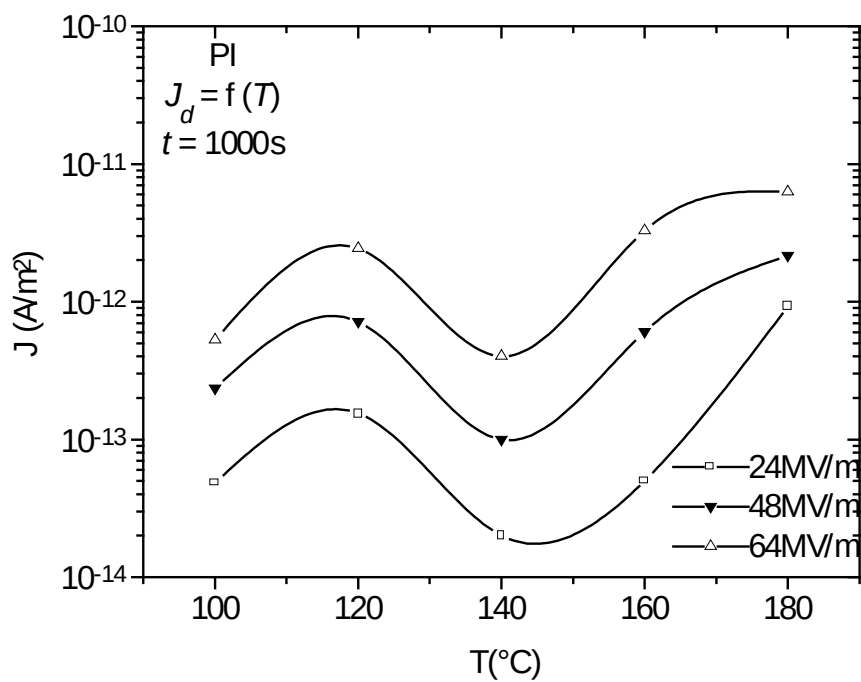


Figure V-19 : Courants isochrones de décharge en fonction de T à $t = 1000s$.

IV. DISCUSSION

Les résultats expérimentaux ont montré que le courant de charge augmente avec la température et le champ électrique. Pour les températures inférieures à 140°C, il suit la loi de Curie Von Schweidler et la forme des courbes n'est pas modifiée par l'accroissement du champ.

Au delà de 140°C, le courant de charge présente un minimum après une minute approximativement. La localisation de ce minimum ne dépend pas de la valeur du champ.

Quant aux courants de décharge, ils ne manifestent aucune particularité.

IV. 1. Courants de charge : Formule empirique

Les résultats, concernant les courants de charge obtenus à haute température, peuvent être expliqués en considérant un courant $J(t)$ qui comporte deux composantes : La première J_1 décroît en fonction du temps et finit par s'annuler, la seconde J_2 croît puis tend vers une valeur constante. En effet, à haute température l'apparition d'hétérocharges, au niveau des électrodes, donne naissance à un courant ionique décroissant. La concentration de la charge d'espace au voisinage de l'électrode modifie la transparence de la barrière de potentiel en intensifiant le champ électrique à cet endroit et entraîne l'apparition d'un courant électronique croissant. Nous pouvons alors, pour décrire l'allure du courant à haute température, proposer la formule empirique suivante

$$J(t) = J_{\infty} + At^{-n} - B.exp\left(-\frac{t}{\theta}\right) \quad (V-5)$$

dans laquelle J_{∞} , A , B , θ et n sont des paramètres de calcul qui dépendent du champ et de la température. Le terme J_{∞} représente approximativement le courant permanent. Cette expression met en évidence les deux composantes :

$$J_1 = At^{-n} \quad \text{et} \quad J_2 = J_{\infty} - B.exp\left(-\frac{t}{\theta}\right) \quad (V-6)$$

la première traduit la polarisation ionique qui décroît en fonction du temps tel que l'a montré Mac Donald [34] et la seconde constitue le courant qui augmente avec le temps.

Le modèle de calcul proposée par Kaneko et al [35] qui suppose une injection de type Schottky combinée à une polarisation dipolaire permet d'obtenir la remontée du courant après un certain temps et l'apparition du minimum. De son côté, Iwamoto [36] observe la même allure de courant lorsqu'il considère une relaxation dipolaire en présence de charges mobiles.

La figure V-20 montre qu'il y a un accord satisfaisant entre le courant expérimental à $T = 180^\circ\text{C}$ et $F = 64 \text{ MV/m}$, et le courant calculé à partir de la formule (V-5) avec :

$$J_\infty = 1,8 \cdot 10^{-4} \text{ A/m}^2, \quad A = 2 \cdot 10^{-4} \text{ As/m}^2, \quad B = 1,4 \cdot 10^{-4} \text{ A/m}^2, \quad \theta = 1,1 \cdot 10^3 \text{ s} \quad \text{et} \quad n = 1.$$

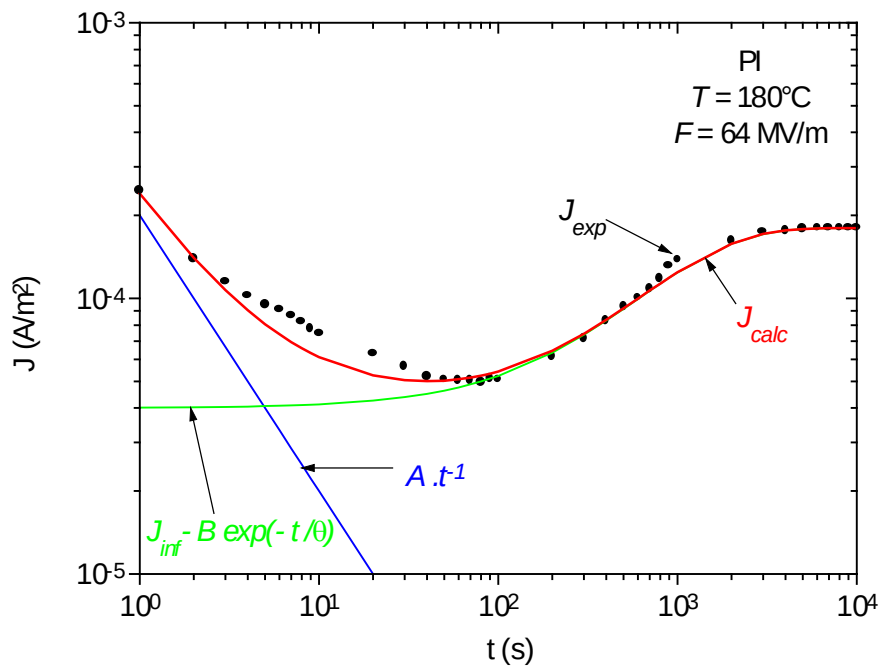


Figure V-20 : Courbe $J_\infty = 1,8 \cdot 10^{-4} \text{ A/m}^2$, $A = 2 \cdot 10^{-4} \text{ As/m}^2$, $B = 1,4 \cdot 10^{-4} \text{ A/m}^2$, $\theta = 1,1 \cdot 10^3 \text{ s}$ et $n = 1$).et points expérimentaux ($T = 180^\circ\text{C}$ et $F = 64 \text{ MV/m}$)

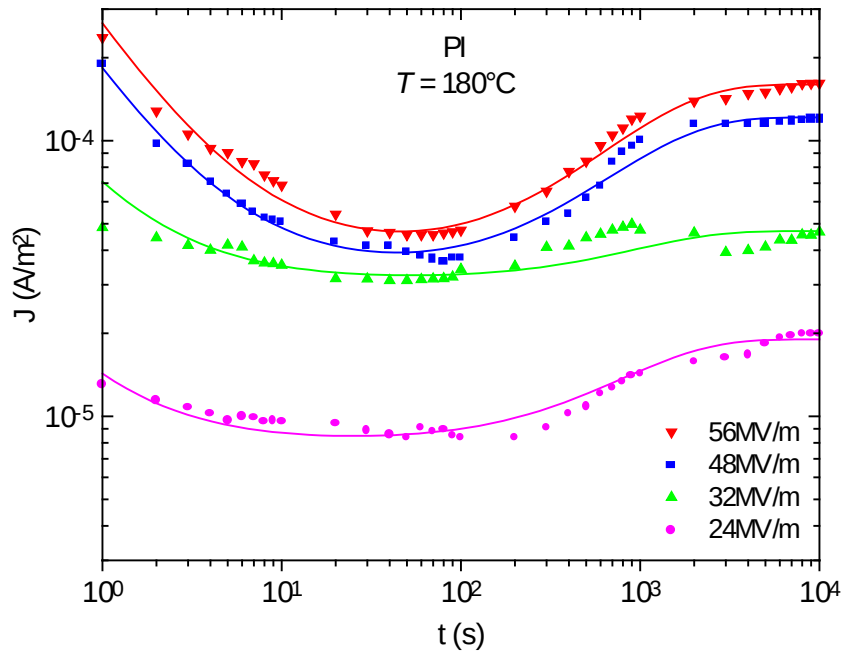


Figure V-21 : Courants calculés (—) et courants expérimentaux (o) pour différents champs

La figure V-21 illustre la superposition entre les courants mesurés pour différentes valeurs de champ à $T = 180^\circ\text{C}$, et les courants calculés à partir de la formule V-5, avec les paramètres suivants (tableau V-3) :

F (MV/m)	J_∞ (A/m ²)	A (As/m ²)	B (A/m ²)	θ (s)
24	2.10^{-5}	$6,3.10^{-6}$	1.10^{-5}	$1,1.10^{-3}$
32	5.10^{-5}	4.10^{-5}	2.10^{-5}	$1,1.10^{-3}$
48	$1,2.10^{-4}$	$1,5.10^{-4}$	9.10^{-5}	$1,1.10^{-3}$
56	$1,6.10^{-4}$	$2,3.10^{-4}$	$1,2. 10^{-4}$	$1,1.10^{-3}$

Tableau V-3 : Paramètres de calcul pour chaque champ.

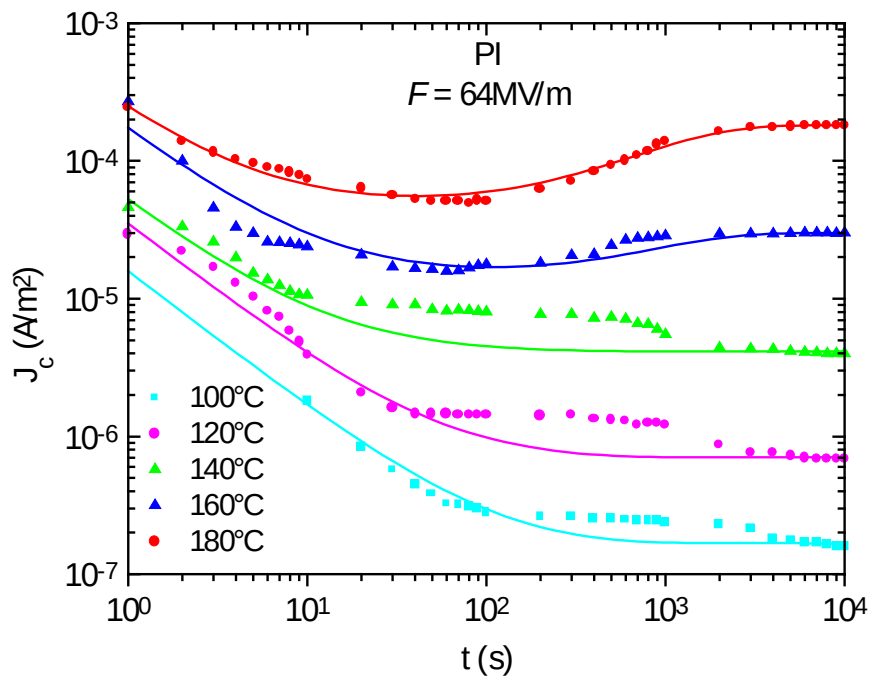


Figure V-22 : Courants calculés (-) et courants expérimentaux (o) à différentes températures

La figure V-22, où sont tracées simultanément les courbes de courants calculés avec $F = 64 \text{ MV/m}$ et les points expérimentaux, pour des températures comprises entre 120°C et 180°C , montre qu'il est possible de reproduire le changement d'allure des courbes lorsque la température augmente, en gardant la même formule empirique. Les valeurs, des paramètres de calcul utilisés pour chaque température, sont portées dans le tableau V-4

$T (^\circ\text{C})$	$J_\infty (\text{A/m}^2)$	$A (\text{As/m}^2)$	$B (\text{A/m}^2)$	$\theta (\text{s})$
100	$1,6 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-8}$	$1,1 \cdot 10^3$
120	$7 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-7}$	$1,1 \cdot 10^3$
140	$4 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-7}$	$1,1 \cdot 10^3$
160	$3 \cdot 10^{-5}$	$1,6 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$1,1 \cdot 10^3$
180	$1,8 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$1,4 \cdot 10^{-4}$	$1,1 \cdot 10^3$

Tableau V-4 : Paramètres de calcul pour chaque température

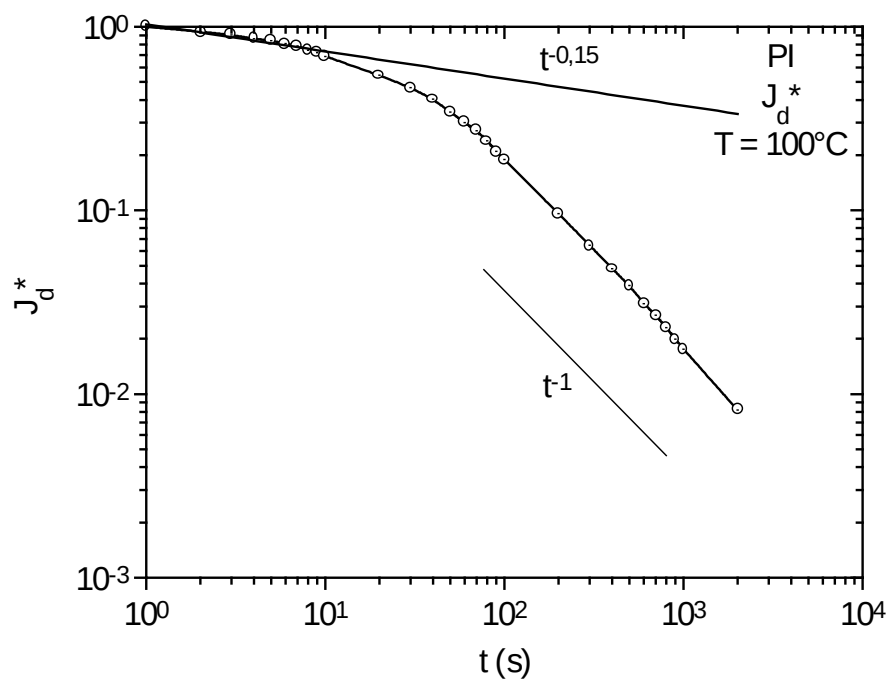


Figure V-23 : Courant de décharge moyen normalisé à $J(1\text{s})$ à $T = 100^\circ\text{C}$.

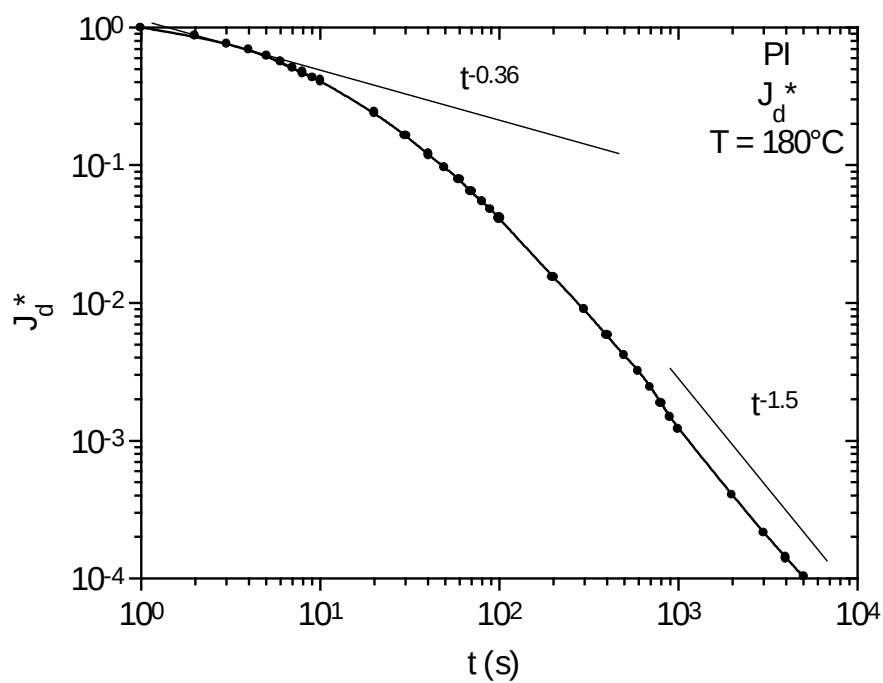


Figure V-24 : Courant de décharge moyen normalisé à $J(1\text{s})$ à $T = 180^\circ\text{C}$.

IV. 2. Courants de décharge

Les courants de décharge sont rapportés à leur valeur initiale, on obtient à une température donnée, pratiquement une même courbe pour les différentes valeurs du champ. Les figures V-23 et V-24 représentent pour $T = 100^\circ\text{C}$ et $T = 180^\circ\text{C}$ respectivement, les courbes qui ont pour asymptotes des droites de pente n :

à	$T = 100^\circ\text{C}$	$n = 0,15$	pour	$1 < t < 10\text{s}$
		$n = 1$	pour	$10^2 < t < 10^3\text{s}$
à	$T = 180^\circ\text{C}$	$n = 0,36$	pour	$1 < t < 10\text{s}$
		$n = 1,50$	pour	$10^3 < t < 10^4\text{s}$

Toutes les courbes peuvent être rapportées à une seule qui représente J / J_o en fonction de t / t_o comme le montre la figure V-25. J_o et t_o sont les coordonnées du point de la courbe $J^*_d = f(t)$ dont la pente est égale à -1 . Ainsi :

à	$T = 100^\circ\text{C}$	$t_o = 200\text{s}$	$J^*_d = 0,2$
	$T = 180^\circ\text{C}$	$t_o = 40\text{s}$	$J^*_d = 0,012$

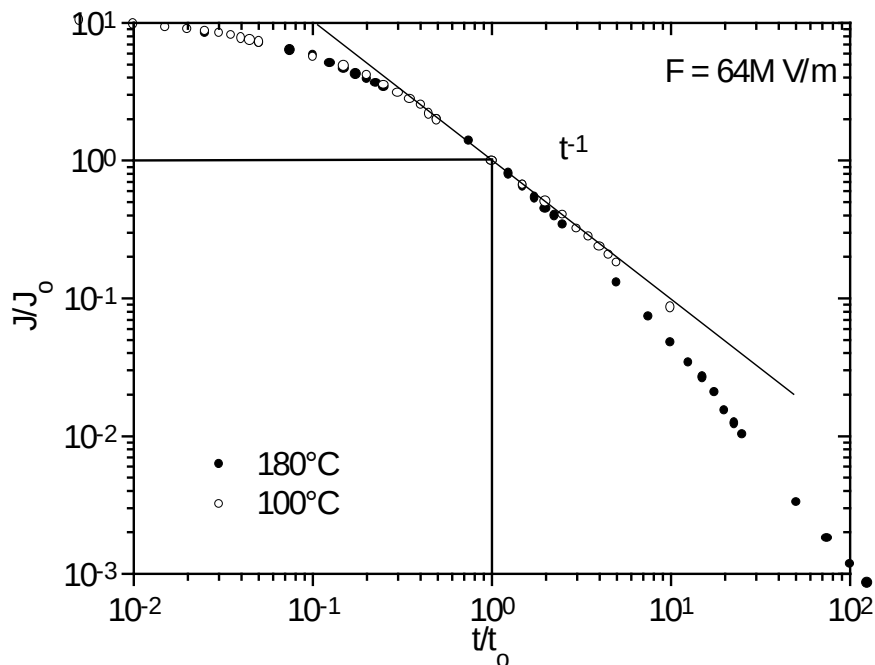


Figure V-25: Courants normalisés J / J_o en fonction de t / t_o pour $T = 100^\circ\text{C}$ et $T = 180^\circ\text{C}$

IV. 3. Conclusion

Les mesures de courants transitoires de charge en fonction du champ électrique et de la température, ont montré un changement d'allure lorsque la température augmente et la présence d'un minimum à la température 180°C. Ce comportement a été expliqué en considérant deux courants: l'un d'origine ionique et le second dû à un mouvement d'électrons.. La formule empirique proposée permet d'une part de montrer l'existence d'un minimum à partir de deux courants et d'autre part de reproduire de façon satisfaisante, le courant obtenu expérimentalement. Les résultats obtenus sous pression hydrostatique sur le polyéthylène réticulé [37] et le polysiloxane [38], ont mis en évidence la présence d'un minimum dans le courant. Dans les deux cas, le champ n'affecte pas la position du minimum. D'autre part, tous les courants de décharge, obtenus pour différentes valeurs du champ et de la température, ont été mis sous une forme adimensionnelle qui leur permet d'être représentés par une courbe unique.

BIBLIOGRAPHIE

- 1- Kapton film Polyimide ,Dupont de Nemours
International S.A. Dupont Electronics Geneva,Switzerland
<http://www.dupont.com>
- 2- J. Wiley
J.Polym.Sci.Macro.Rev. Vol.11, p.161-208, (1976)
- 3- Shien-Yang Wu et D. Denton
IEEE Trans.Elect.Ins, 27, 2, (1992)
- 4- L. Anouche et C. Alquie
J. Appl. Phys., Vol.86, No.2, p.1156-66, (1999)
- 5- F.T. Emery
Conf. on Electr. Insul. and Diel. Phen., Vol.1, p.220-30, (1998)
- 6- TR. Bergstresser, NE. Bergkessel, S.K. Chiang
IPC 4th Annual National Conference on Flexible Circuits, Vol.2, p.63-71, (1998)
- 7- B.D. Harper, J.M. Rao, V.H. Kenner et C.H. Popelar
Journal of Electronic Materials, Vol.26, No.7, p.798-804, (1997)
- 8- M. Akita
IPC 4th Annual National Conference on Flexible Circuits, Vol.2, p.117-23, (1998)
- 9- JP. Bellomo,A. Mbaye et T. Lebey
International Symposium on Electrical Insulation, Vol.1, p.177-80, (1998)
- 10- A.J. Broadbent, J. Crozier, K.D. Smith, AJ. Street et J.M. Wiatrzyk
Advances in Cryogenic Engineering, Vol.1, p.213-18, (1997)
- 11- C.A. Outten, D. Kester, C. Venkatraman, D. Bray et C. Halter
1999 TMS Annual Meeting, p.271-82, (1999)
- 12- H.N. Benford, W. Yufen, D.J. Tedford et M.J. Given
Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, p.239-42, (1995)
- 13- J.M. Constantini, JP. Salvétat, F. Brisard, MP. Cals, JP. Marque et F. Issac
Nuclear Instruments & methods in Physics Research, Vol.116, No.1, p.496-501, (1996)
- 14- J.P. Salvétat, J.M. Constantini, F. Brisard et L. Zuppiroli
Phys.Rev. B, Vol.55, No.10, p.6238-48, (1997)
- 15- Y. Muramoto, M. Nagao, et M. Kosaki
Inter. Conf. on Prop. and Appl. of Diel. Mater., vol.2, p.802-5, (1997)
- 16- E. Motyl et R. Kacprzyk
9th International Symposium on Electrets, p.608-13, (1996)
- 17- D. Benzerouk
Thèse de Magister, USTHB Alger 1996
- 18- H. Benalla
Thèse de 3^{ème} cycle, UPS, Toulouse, France,(1984)
- 19- M.H. Chohan, H. Mahmood et F. Shah
Modern Physics Letter B, Vol.8, No25, p.1591-5, (1994)
- 20- M. Saidi
Thèse de Magister, U.S.T.H.B., Alger (1985)
Thèse de Docteur d'état, U.S.T.H.B., Alger (1996)
- 21- Y. Muramoto, M. Nagao, S. Mitsumoto, M. Fukuma et M. Kosaki
Conf. on Electr. Insul. and Diel. Phen., vol.1, p.110-13, (1999)
- 22- Y .Muramoto, M. Nagao, F. Mizuno et M. Kosaki
Int.Symp.Electr.Insul.Mater., (1998)

- 23- Y. Muramoto, M. Nagao, et M. Kosaki
Conf. on Electr. Insul. and Diel. Phen., vol.1, p.158-61, (1997)
- 24- G. Sawa, S. Nakamura, K. Lida et M. Ieda
Jap. J. Appl. Phys, 19, 453, (1980)
- 25- J.R. Hanscomb et J.H. Calderwood
J. Phys. D., Vol.13, p.1093, (1973)
- 26- B. L. Sharma et P. K. C. Pillai
Polymer 23, 17, (1982)
- 27- E. Sacher
IEEE Trans.Electr.insul., Vol.14, p.85-93, (1979)
- 28- J.P. Crine, D.L. Pironawd et A. Yelon
Conf.on Electr.insul and Diel. Phen, 226, (1977)
- 29- M. Kosaki, K. Sugiyama et M. Ieda
J. Appl.Phys., Vol.42 ,No.9, (1971)
- 30- H.G. Wintle
J.Non-Crist.Solids, 15, p.471-86, (1974)
- 31- J. Vanderschueren et A. Linkens
J.Phys.,Vol.49, No.7, p.4195, (1978)
- 32- D.K. Das Gupta et R.S. Brockley
J.Phys.D : Appl.Phys., Vol.11, p.955-62, (1978)
- 33- D.K. Das-Gupta
Inter. Conf. on Prop. and Appl. on Diel. Mater. (ICPADM 2000), Chine (2000)
- 34- J.R.Mac Donald
J. Chem. Phys., 54, p. 2026-50 (1971)
- 35-K. Kaneko, Y. Suzuoki, T. Mizutani et M. Ieda.
Jap. J. Appl. Phys., Vol.29, No.8, p.1506-1510 (1990)
- 36- M. Iwamoto
J.Appl.Phys. **79** (10) p.7936-43 (1996)
- 37- D. Malec
Mémoire d'Ingeniorat CNAM, UPS Toulouse, p.39, (1992)
- 38- Y. Segui
Thèse de Doctorat, UPS Toulouse, France, (1974)

Chapitre VI :

MODELISATION DES COURANTS DE DECHARGE ANORMAUX

Chapitre VI

MODELISATION DES COURANTS DE DECHARGE ANORMAUX

Les résultats expérimentaux, que nous avons obtenus dans le cas du polyéthylène basse densité, ont mis en évidence, à haut champ, des courants de décharge anormaux. Ces derniers sont négatifs, changent de signe à l'instant t_i , puis passent par un maximum J_m à t_m avant de s'annuler. Cette anomalie a été observée dans le cadre de notre magister sur le PEBD [1], puis par Kaneko [2] et Malec [3], sur le polyéthylène et le PRC respectivement.

Pour simuler cette anomalie, nous proposons deux modèles basés sur l'existence de deux types de distributions de charges d'espace de signes contraires :

En premier lieu nous traitons le cas de distributions triangulaires dont la résolution est entièrement numérique.

Puis nous considérons le cas d'un isolant avec, à l'instant initial, une distribution rectangulaire de charges positives en présence de charges négatives réparties dans le matériau. Une partie du problème est résolue analytiquement et le reste numériquement. La modélisation des courants transitoires est faite à partir de la résolution des équations de Poisson, de conservation de la charge et de l'expression du courant local.

I. CAS D'UNE REPARTITION TRIANGULAIRE DE CHARGES

Les hétérocharges et homocharges s'accumulent près des électrodes après l'application d'une tension continue. Après court-circuit, cette charge d'espace crée un champ interne qui gère l'évolution du courant de décharge au cours du temps. On considère deux distributions triangulaires de charges électriques les premières, positives, se trouvent près de l'anode et les secondes, négatives, sont à la cathode.

I. 1. Equations et méthode de calcul

Les équations de continuité pour les électrons et les trous sont :

$$\frac{q\partial n(x,t)}{\partial t} = \frac{\partial J_n(x,t)}{\partial x} \quad (\text{VI-1})$$

$$\frac{q\partial p(x,t)}{\partial t} = \frac{\partial J_p(x,t)}{\partial x} \quad (\text{VI-2})$$

où $J_n(x,t)$ est le courant d'électrons et $J_p(x,t)$ celui qui est généré par le déplacement des trous :

$$J_n(x,t) = qn(x,t)\mu_n E(x,t) + qD_n \frac{\partial n(x,t)}{\partial x} \quad (\text{VI-3})$$

$$J_p(x,t) = qp(x,t)\mu_p E(x,t) + qD_p \frac{\partial p(x,t)}{\partial x} \quad (\text{VI-4})$$

Le courant total est donné par :

$$J_t(t) = J_n(x,t) + J_p(x,t) + \varepsilon \frac{\partial E(x,t)}{\partial t} \quad (\text{VI-5})$$

L'équation de Poisson et la condition de court-circuit s'écrivent :

$$\frac{\partial E(x,t)}{\partial x} = \frac{q}{\varepsilon} (p(x,t) - n(x,t)) \quad (\text{VI-6})$$

$$\int_0^d E(x,t) dx = 0 \quad (\text{VI-7})$$

Le courant externe total est alors :

$$J_t(t) = \frac{1}{d} \int_0^d (J_n(x,t) + J_p(x,t)) dx \quad (\text{VI-8})$$

Ces équations sont résolues numériquement sur ordinateur, par la méthode des différences finies, en considérant des charges dont les répartitions initiales sont linéaires, avec des profondeurs de pénétration égales à d . Les dérivées partielles de F , n et p par rapport au temps sont données par les expressions suivantes :

$$n(x, t + \Delta t) = n(x, t) + \frac{\partial n(x, t)}{\partial t} \Delta t \quad (\text{VI-9})$$

$$p(x, t + \Delta t) = p(x, t) + \frac{\partial p(x, t)}{\partial t} \Delta t \quad (\text{VI-10})$$

$$F(x, t + \Delta t) = F(x, t) + \frac{\partial F(x, t)}{\partial t} \Delta t \quad (\text{VI-11})$$

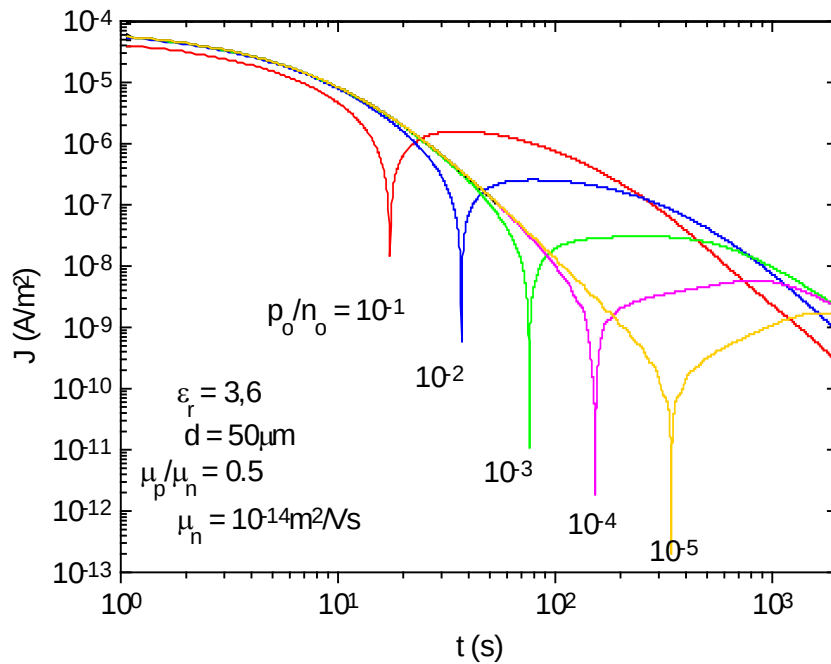
I. 2. Résultats de la simulation

Les courbes de densité de courant de décharge $J(t)$ obtenues après calcul pour des valeurs du rapport $p_o/n_o=10^{-5}, 10^{-4}, 10^{-3}, 10^{-2}$ et 10^{-1} , et des mobilités $\mu_n = 2$. $\mu_p = 10^{-14} \text{m}^2/\text{Vs}$, sont représentées sur la figure VI-1. On constate une décroissance des temps t_i et t_m et une augmentation de J_m avec le rapport p_o/n_o . Pour $p_o/n_o = 0$, le courant reste négatif et décroît de façon monotone, il n'y a donc pas d'anomalie dans ce cas.

La figure VI-2 illustre la répartition des charges d'espace positives et négatives. La quantité de charges négatives (aire sous la courbe $\rho(x)$) tend à diminuer tandis que la quantité positive augmente, et cela jusqu'à ce que la charge totale s'annule au bout d'un temps assez long.

Sur la figure VI-3, où l'évolution du profil du champ est représentée à trois instants différents, on constate que ce dernier tend à s'uniformiser et à s'annuler au bout d'un certain temps lorsque toutes les charges se sont écoulées.

Ce modèle théorique a permis de reproduire le renversement du courant. Cette anomalie n'est pas obtenue avec un seul type de charges. Dans le cas de deux types de charges, le calcul a montré que, lorsque le rapport p_o/n_o diminue, les temps t_i et t_m augmentent et le courant J_m diminue.



FigureVI-1 : Courants calculés pour quelques valeurs de p_o/n_o et $\mu_n = 2$ $\mu_p = 10^{-14} \text{m}^2/\text{Vs}$

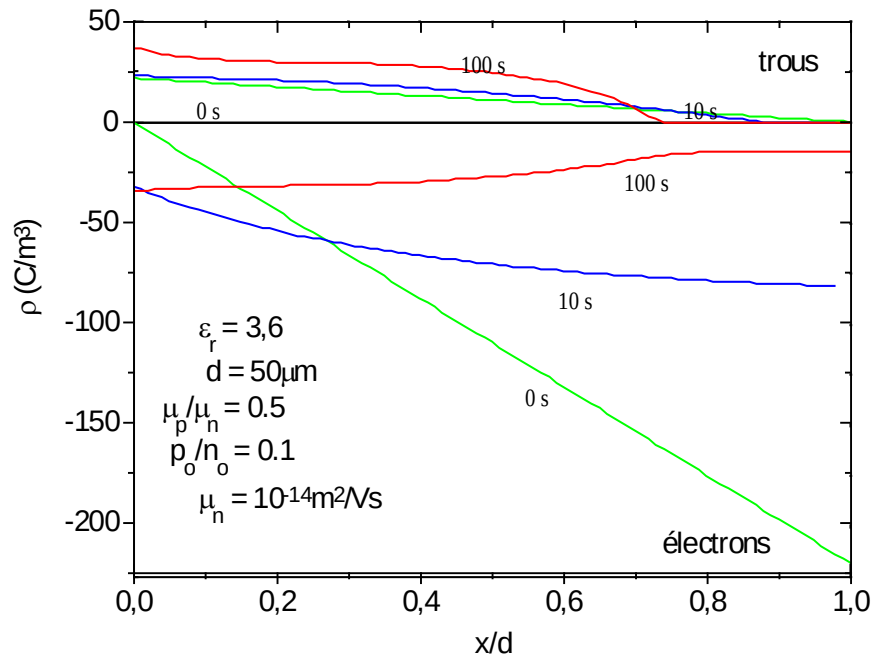


Figure VI-2 : Répartition de la charge d'espace dans l'isolant au cours du temps.

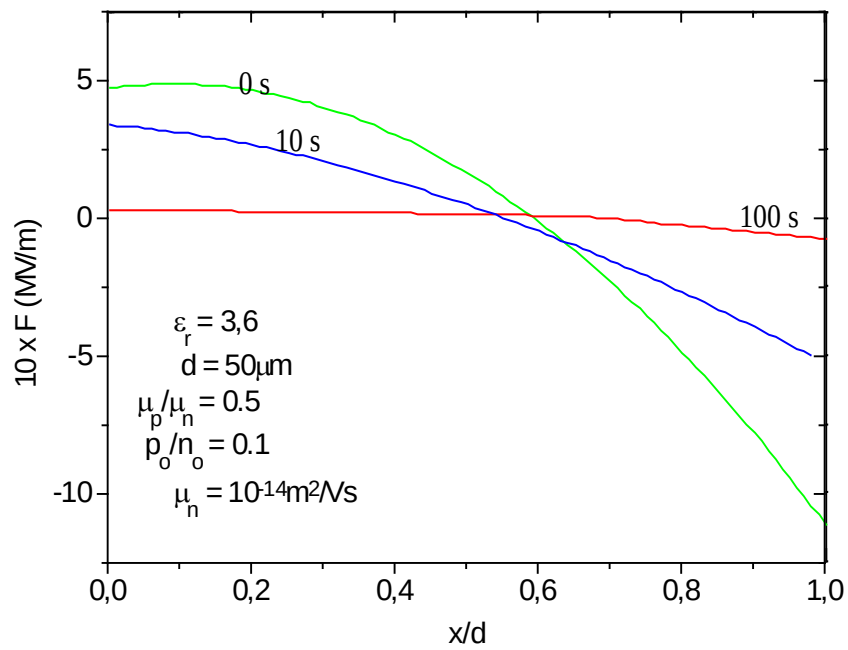


Figure VI-3 : Profil du champ électrique dans l'isolant au cours du temps.

La simulation appliquée à des échantillons de polyamide-imide (PAI) de 50µm d'épaisseur et de constante diélectrique $\varepsilon_r = 3.6$, a donné des résultats [4] comparables à l'expérience, pour des champs intenses (30 à 45 MV/m).

II. CAS D'UNE REPARTITION RECTANGULAIRE DE CHARGES

On considère, à l'instant initial, une distribution rectangulaire de charges positives en présence de charges fixes négatives réparties dans le matériau. Au cours de la décharge le feuillet se déplace à travers l'isolant.

La première partie de ce travail permet d'obtenir par calcul la variation du courant de décharge $J(t)$, du champ électrique interne $F(t)$ ainsi que la position et l'évolution du feuillet de charges en fonction du temps. Nous présentons uniquement les courbes de courant $J(t)$ car c'est la seule grandeur qui peut être comparée à l'expérience. Dans la seconde partie nous nous intéressons à l'évolution des grandeurs t_i , t_m et J_m (déduites des courbes précédentes) en fonction des paramètres physiques introduits dans le calcul.

II. 1. Résolution analytique du problème :

II. 1. a. Mise en équations, hypothèses simplificatrices

On part des équations de Poisson :

$$\frac{\partial F(x,t)}{\partial x} = \frac{\rho(x,t) - N}{\varepsilon} \quad (\text{VI-12})$$

et de conservation de la charge :

$$\frac{\partial J}{\partial x} = - \frac{\partial \rho(x,t)}{\partial t} \quad (\text{VI-13})$$

L'expression du courant dans le cas où la diffusion est négligée, s'écrit :

$$J = n e \mu F = \rho \mu F \quad (\text{VI-14})$$

Au cours de la dépolarisation, la différence de potentiel aux bornes de l'échantillon est nulle :

$$\int_0^d F(x,t) dx = 0 \quad (\text{VI-15})$$

A partir des équations VI-12, VI-13 et VI-14, on a :

$$\rho \mu \frac{\partial F}{\partial x} + \mu F \frac{\partial \rho}{\partial x} + \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0 \quad (\text{VI-16})$$

Avec $\frac{\partial \rho}{\partial x} = 0$:

$$\rho \mu \frac{\partial F}{\partial x} + \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0 \quad (\text{VI-17})$$

Il vient :

C'est la condition $\frac{\partial \rho}{\partial x} = 0$, qui nous a amenés à considérer l'évolution d'un feuillet de charge rectangulaire.

II. 1. b. Evolution de la charge d'espace

La solution de l'équation (VI-17) est :

$$\rho(t) = \frac{N}{1 - \left(1 - \frac{N}{\rho_0}\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)} \quad (\text{VI-18})$$

où

$$\tau = \frac{\varepsilon}{N\mu} \quad (\text{VI-19})$$

II. 1. c. Calcul du courant extérieur

Soit $r(t)$ la position du front de charge à l'instant t . A l'aide de (VI-13) et (VI-15) on trouve facilement l'expression du champ, après le calcul de la constante $F(0)$ à l'origine et en tenant compte de la condition de continuité au point r :

$$F_1(r) = F_2(r)$$

$$\varepsilon F(x,t) = \begin{cases} \rho(t) \left(x - r + \frac{r^2}{2d} \right) + N \left(\frac{d}{2} - x \right) & 0 < x < r(t) \\ \rho(t) \left(\frac{r^2}{2d} \right) + N \left(\frac{d}{2} - x \right) & r(t) < x < d \end{cases} \quad (\text{VI-20})$$

Le courant dans le circuit extérieur est donné par :

$$J(t) = J(x, t) + \varepsilon \frac{\partial F(x, t)}{\partial t} \quad (\text{VI-21})$$

En utilisant l'équation (VI-17) dans les deux régions, on obtient :

$$J(t) = \begin{cases} \frac{\mu \rho N}{\varepsilon} \rho(t) \left(\frac{d}{2} - r + \frac{r^2}{2d} \right) + \rho \left(\frac{r}{d} - 1 \right) \frac{\partial r}{\partial t} & 0 < x < r(t) \\ \frac{\mu \rho (\rho - N)}{\varepsilon} \left(-\frac{r^2}{2d} \right) + \frac{r}{d} \rho \frac{\partial r}{\partial t} & r(t) < x < d \end{cases} \quad (\text{VI-22})$$

Les deux courants étant égaux, on en déduit l'équation régissant l'évolution de $r(t)$:

$$\frac{\mu \rho N}{\varepsilon} \rho(t) \left(\frac{d}{2} - r + \frac{r^2}{2d} \right) - \rho \frac{\partial r}{\partial t} - \frac{r^2}{2d} \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0 \quad (\text{VI-23})$$

et avec (VI-18) il vient finalement :

$$2 \tau \frac{\partial R}{\partial t} = P \cdot R^2 - 2R + 1 \quad (\text{VI-24})$$

où $R(t) = \frac{r(t)}{d}$ et $P(t) = \frac{\rho(t)}{N}$

Dans ce cas le courant s'écrit :

$$J = \frac{Nd}{2\mu} P \cdot R(P \cdot R - 1)(R - 1) \quad (\text{VI-25})$$

II. 1. d. Etude du signe du courant

L'expression (VI-25) montre que le signe du courant est contraire à celui du terme $(P \cdot R - 1)$ car $(R - 1)$ est négatif et le produit $(P \cdot R)$ positif quelle que soit la valeur du temps t . Dans le cas où $(P \cdot R - 1)$ est positif, la densité de courant est négative, et lorsque $(P \cdot R - 1)$ s'annule celle-ci devient nulle car les quantités de charges positives et négatives deviennent égales, c'est à cet instant ($t = t_i$) que le courant change de signe et devient positif.

II. 2. Résolution numérique du système

L'équation (VI-24) peut être résolue numériquement à l'aide d'un ordinateur, elle fournit l'expression de $R(t)$ pour différentes valeurs des paramètres physiques présents dans ce modèle. C'est une équation différentielle non homogène, du premier ordre. La méthode numérique utilisée est celle de Runge-Kutta dans laquelle $\frac{\partial R(t)}{\partial t}$ est remplacé par l'expression :

$$\frac{\partial R(t)}{\partial t} = [R(t + \Delta t) - R(t)]/\Delta t \quad (\text{VI-26})$$

Les valeurs de $R(0)$ et $P(0)$ étant connues, on peut déduire des équations (VI-24) et (VI-26) $R(\Delta t)$ à l'instant ultérieur. De la même façon on détermine $P(t)$ puis $J(t)$ peut être calculée en utilisant (VI-25).

Les conditions de calcul étant fixées, l'ordre de grandeur des constantes physiques est choisi en tenant compte des résultats obtenus sur le polyéthylène dans la littérature [5-10]

$$\mu = 10^{-14} \text{ à } 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{Vs}, \quad \rho_0 = 10^{18} \text{ à } 10^{21} \text{ m}^{-3} \quad \text{et } N = 10^{17} \text{ à } 10^{20} \text{ m}^{-3}.$$

Pour étudier les caractéristiques des courants de dépolarisation, nous allons faire varier un par un les différents paramètres du système, les autres restant constants.

II. 3. Evolution de la charge $P(t)$ et $R(t)$

La figure VI-4 montre l'évolution, au cours du temps, de $P(t)$ et $R(t)$ pour $\mu = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{Vs}$, avec $N = 10^{16} \text{ e.m}^{-3}$, $\rho(0) = 10^{19} \text{ e.m}^{-3}$ et $R_0 = 0.1$. Pour les mêmes conditions, la figure VI-5 illustre le déplacement du front de charge rectangulaire vers l'électrode opposée au cours de la décharge. Le produit (PR) représente l'aire du rectangle qui est supérieure à 1 avant 30 secondes et inférieure après cet instant.

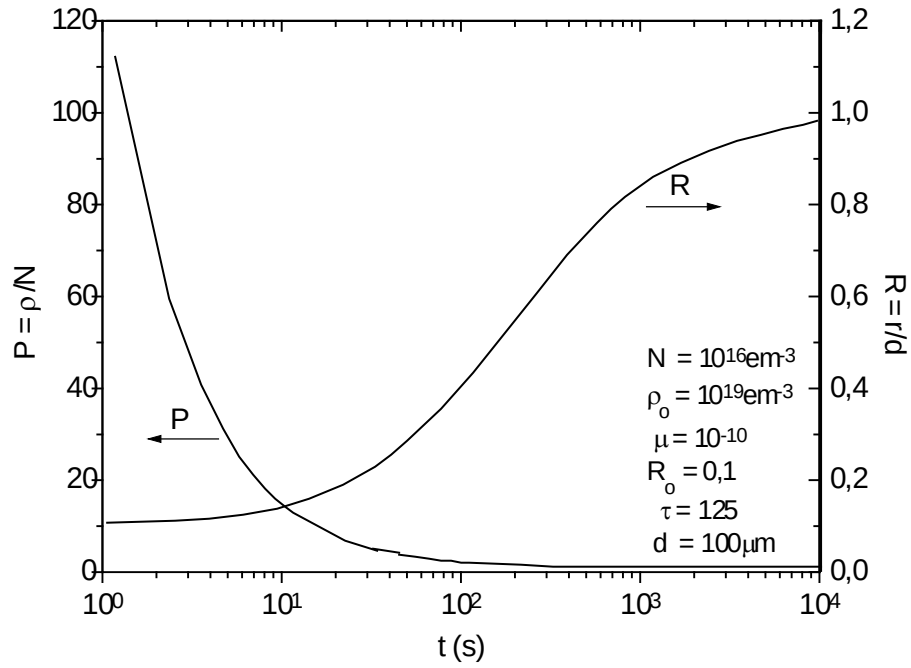


Figure VI-4 : Evolution de la concentration de charge $P(t)$ et de sa position $R(t)$

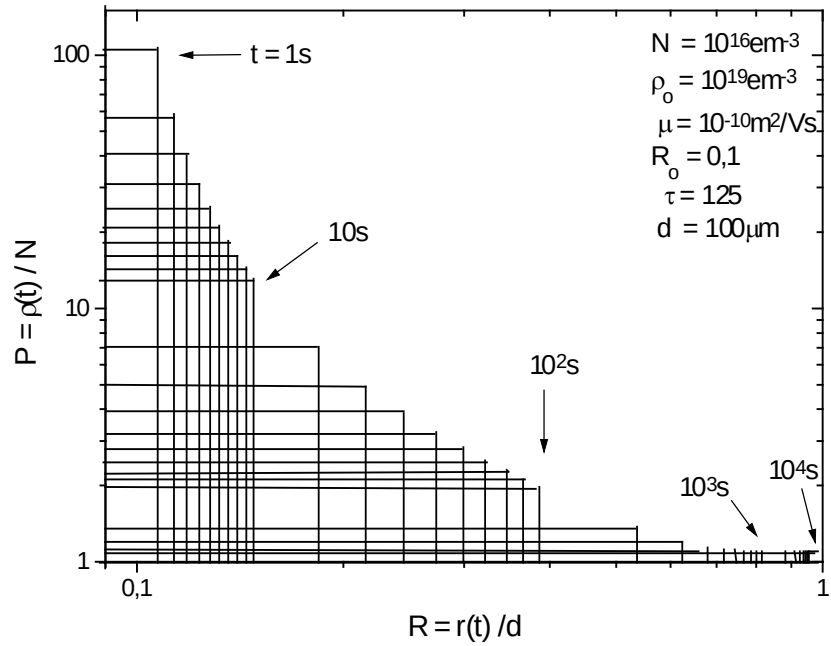


Figure VI-5 : Evolution du front de charge $P(R)$ au cours du temps.

II. 4. Profil du champ

L'équation (VI-20) montre que le champ est représenté par deux segments de droite, il suffit alors de calculer les valeurs de celui-ci au niveau de la première électrode (F_o), à la position du front de charge (F_r) et sur la seconde électrode (F_d). L'évolution de ces trois grandeurs au cours du temps, pour $N = 10^{16} \text{ e m}^{-3}$, $\rho(o) = 10^{19} \text{ e m}^{-3}$, $\mu = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{Vs}$ et $R_o = 0.1$, est illustrée par la figure VI-6. A $t = t_i = 30 \text{ s}$, F_d atteint sa valeur minimale : $F_d = F_o = -F_r$. Ce résultat peut être retrouvé analytiquement (VI-20) en prenant $PR = 1$.

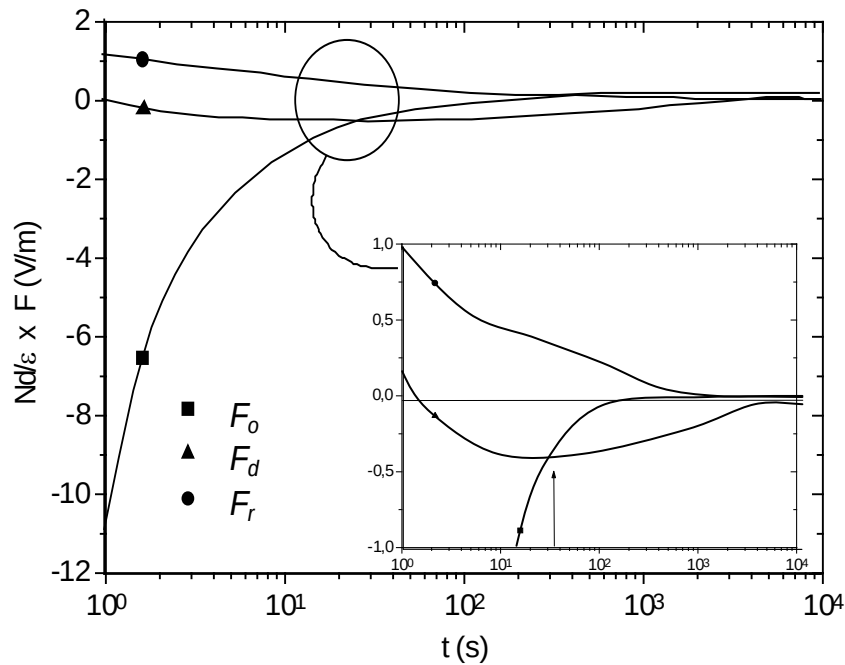


Figure VI-6 : Evolution des champs $F_o(t)$, $F_r(t)$ et $F_d(t)$ l'instant où $F_d = F_o = -F_r$

II. 5. Evolution du courant $I(t)$

La figure VI-7 montre un exemple de courants de décharge calculés pour différentes valeurs de N , avec $\rho = 10^{19} \text{ e m}^{-3}$, $\mu = 10^{-10} \text{ m}^2/\text{Vs}$ et $R_o = 0.1$. La figure VI-8 illustre l'évolution en fonction du champ de ces courants pour $N = 10^{16} \text{ e m}^{-3}$, $\rho(o) = 10^{19} \text{ e m}^{-3}$ et différentes valeurs de μ . Ces deux figures mettent en évidence l'anomalie des courants de décharge observée expérimentalement, et montrent que plus N est faible plus le temps d'inversion est long.

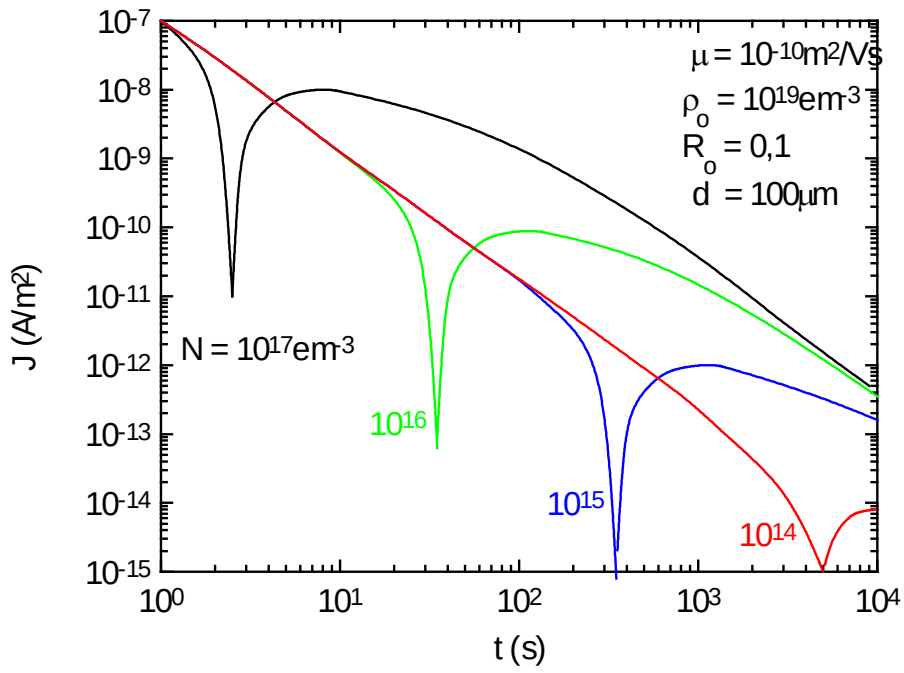


Figure VI-7: Courants de décharge calculés pour des valeurs de N de 10^{14} à 10^{17} cm^{-3}

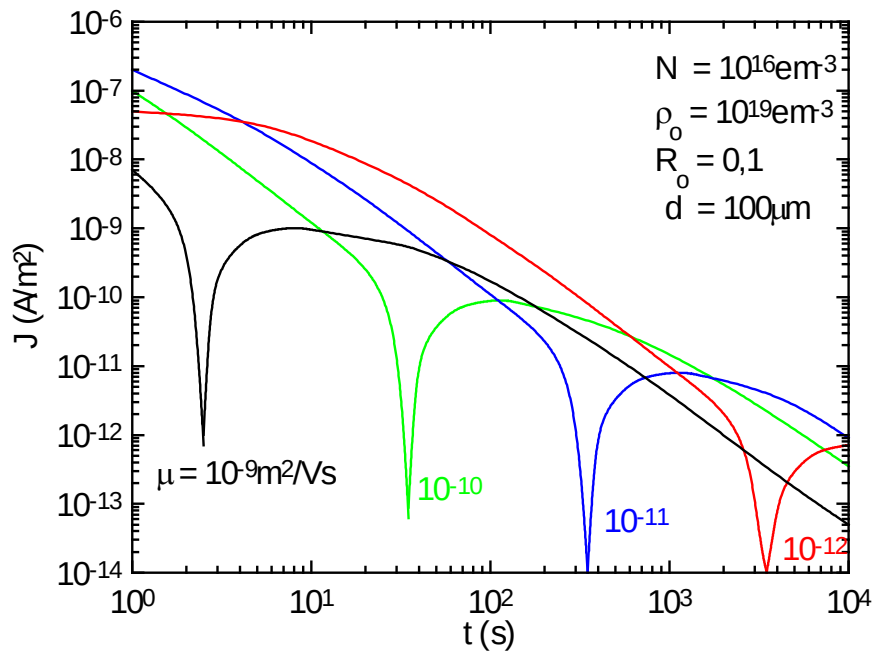


Figure VI-8: Courants de décharge calculés pour des valeurs de μ de 10^{-12} à $10^{-9} \text{ m}^2/\text{Vs}$

II. 6. Evolution de t_i, t_m et J_m avec les paramètres de calcul

Les calculs ont montré que $J(o)$ et t_i évoluent dans le même sens que $R(o)$, alors que J_m et t_m varient peu, la variation de ρ_o affecte essentiellement la valeur de $J(o)$ correspondant au courant de décharge initial.

D'après les courbes représentées en figure VI-8, les temps t_i et t_m diminuent quand la mobilité μ des charges augmente, les courants $J(o)$ et J_m augmentent.

La représentation des valeurs de t_i , t_m et J_m (dédites des densités de courant théoriques) en fonction de N en figures VI-9 et VI-10, montre que t_i et t_m sont inversement proportionnels à N , alors que J_m est proportionnel au carré de N .

Si l'on représente t_i , t_m et J_m en fonction de μ en figures VI-11 et VI-12, on trouve que J_m est proportionnel à μ , alors que t_i et t_m lui sont inversement proportionnels.

Finalement, le calcul des courants de décharge, montre que les paramètres N , ρ_o et μ sont étroitement liés à ceux qui caractérisent le courant (t_i , t_m et J_m). Les lois de variation de t_i , t_m et J_m avec N et μ , illustrées par les figures VI-9 à VI-12, se résument à :

$$t_i \propto \frac{1}{\mu N} \quad (\text{VI-27})$$

$$t_m \propto \frac{1}{\mu N} \quad (\text{VI-28})$$

$$J_m \propto \mu N^2 \quad (\text{VI-29})$$

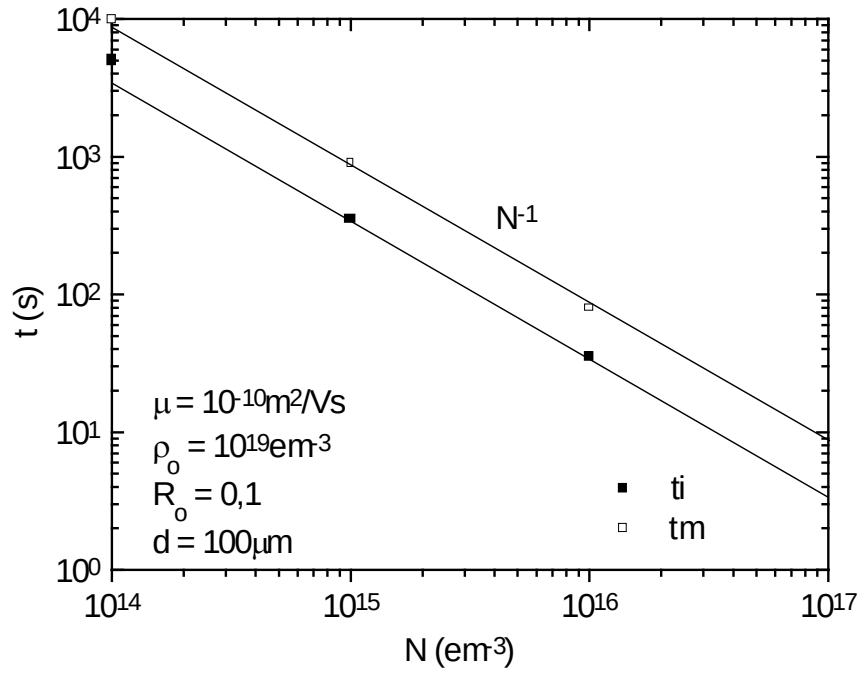


Figure. VI-9 : Variation de t_i et t_m avec la concentration N

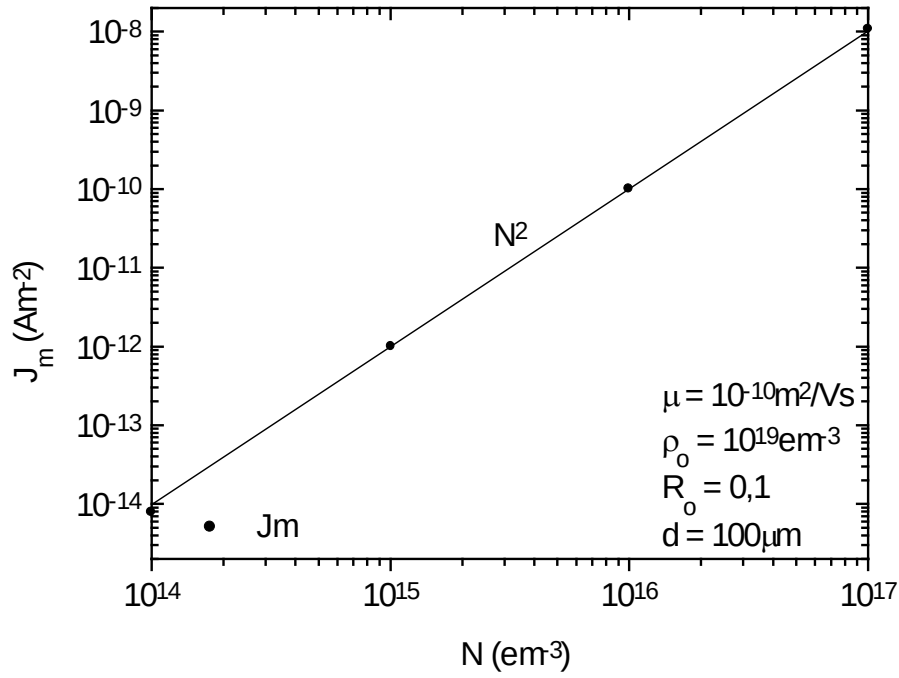


Figure VI-10 : Variation de J_m avec la concentration N

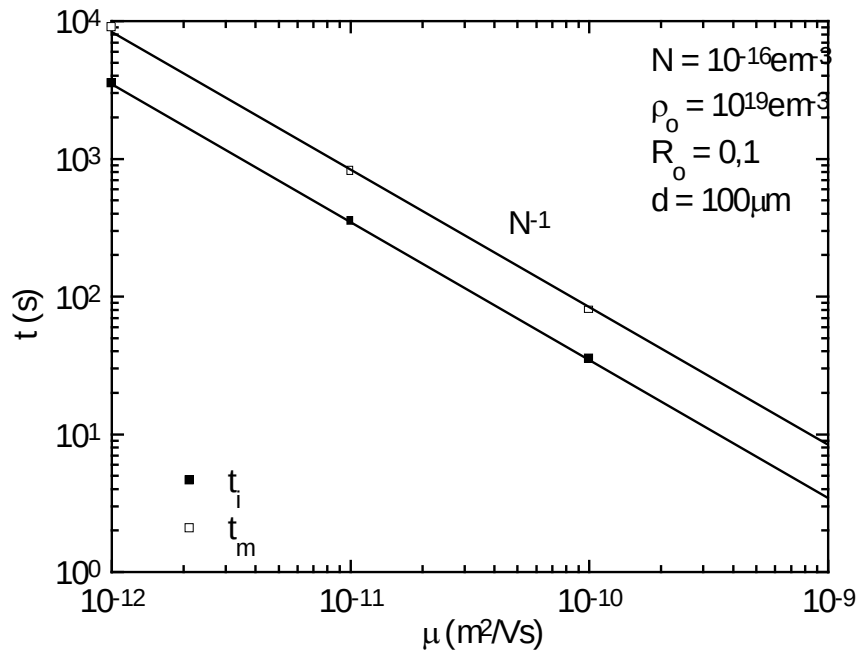


Figure VI-11 : Variation de t_j et t_m avec la mobilité μ

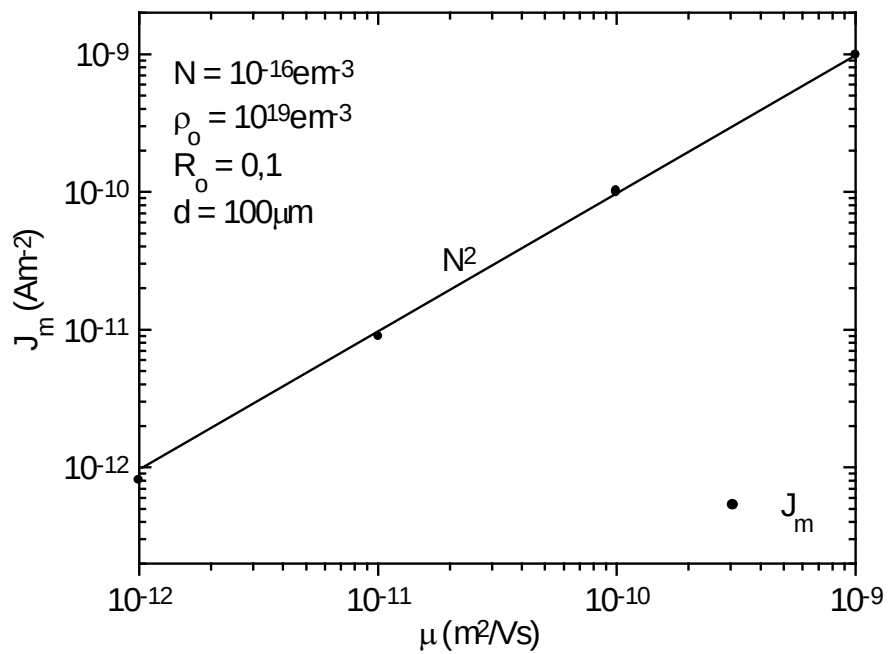


Figure VI-12 : Variation de J_m avec la mobilité μ

III. COMPARAISON ENTRE L'EXPERIENCE ET LA MODELISATION

Les résultats expérimentaux ont montré une variation des trois paramètres de t_i , t_m et J_m avec le champ électrique. On conçoit aisément que la concentration N de charge d'espace, uniforme dans le volume du matériau, augmente avec le champ appliqué pendant la charge. Car pour une concentration de pièges suffisamment élevée, au fur et à mesure que le champ devient plus intense, le nombre de porteurs dans le volume et celui des porteurs piégés augmentent, ce qui conduit à une valeur de N plus élevée.

Les résultats expérimentaux en régime permanent du PEBD avec l'hypothèse d'une distribution exponentielle de pièges en énergie [Ch.IV § II.1], ont donné une valeur de concentration moyenne de pièges de $8,4 \cdot 10^{21} \text{e/m}^3$ qui est supérieure à la concentration N de charges piégées, ce qui signifie que les pièges ne sont pas tous remplis, la valeur de N peut donc augmenter aisément avec le champ

III-1 Influence de la pression hydrostatique

Les résultats des mesures avec la pression ont été résumés dans la figure VI-13. La pression intervient dans les paramètres t_i , t_m et J_m par l'intermédiaire de la distance de saut λ .

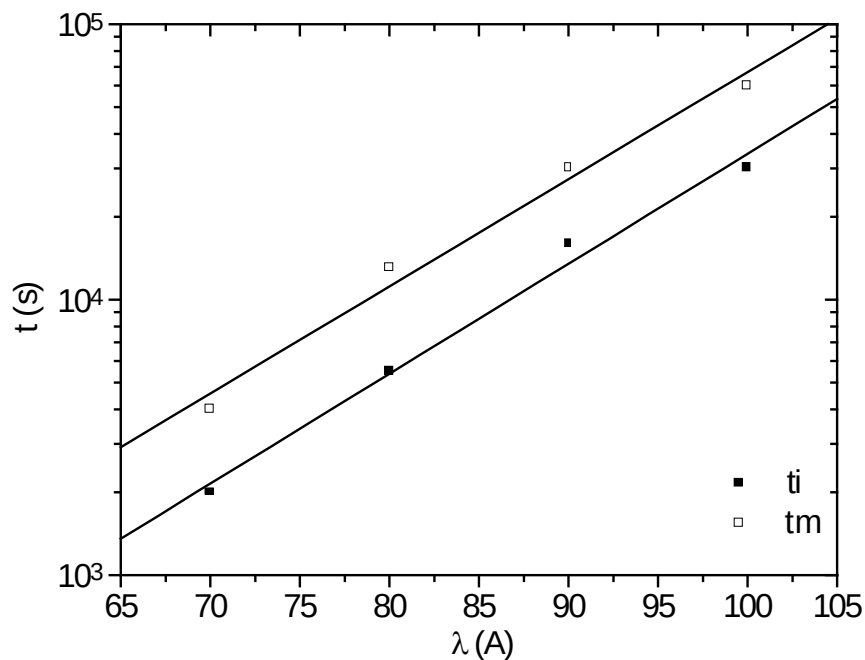


Figure VI-13 : variation de t_i et t_m en fonction de λ à différentes pressions

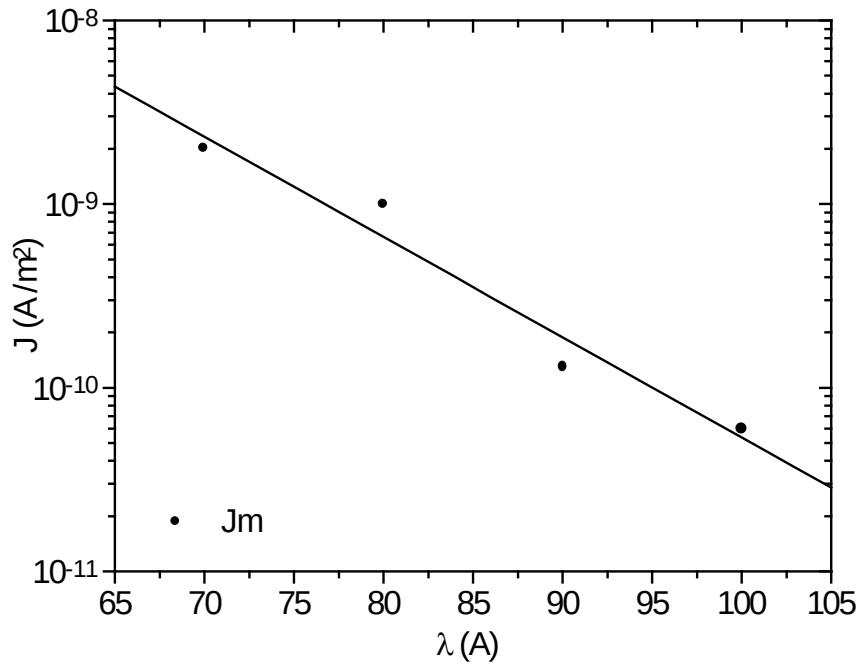


Figure VI-14 : variation de J_m en fonction de λ à différentes pressions

Les lois de variation déduites des courbes des figures VI-13 et VI-14 sont :

$$t_i = 3.45 \cdot \exp\left(1.59 \frac{e F \lambda}{k T}\right) \quad (\text{VI-30})$$

$$t_m = 8.61 \cdot \exp\left(1.59 \frac{e F \lambda}{k T}\right) \quad (\text{VI-31})$$

$$J_m = 3.45 \cdot \exp\left(-1.59 \frac{e F \lambda}{k T}\right) \quad (\text{VI-32})$$

Lorsque la pression augmente, la distance de saut diminue, le transit des charges d'une électrode à l'autre est donc plus rapide, ce qui est montré sur la figure VI-13 où sont portées les courbes $t_i(\lambda)$, $t_m(\lambda)$. Il en résulte une augmentation du courant, ceci est en accord avec la variation $J_m(\lambda)$ (figure VI-14).

III-2 Influence de la température :

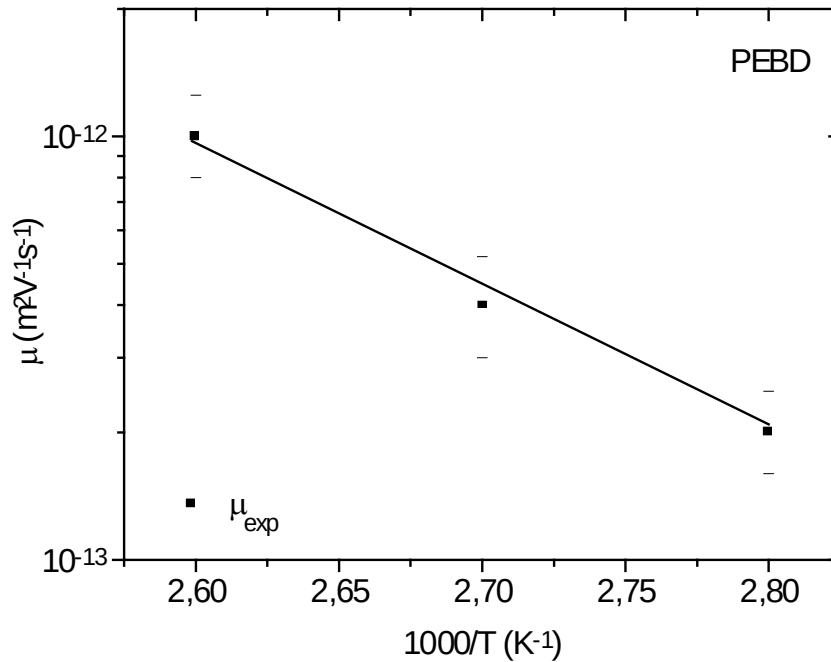


Figure VI-15 : Variation de la mobilité μ en fonction de la température [11].

La variation de la mobilité des porteurs avec la température relevée sur quelques échantillons de PEBD, portée sur la figure VI-15, peut être représentée par une expression de la forme :

$$\mu = \mu_0 \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \quad (\text{VI-33})$$

où E_a est l'énergie d'activation thermique. La même expression est donnée par Tanaka [7].

On note une faible valeur de la mobilité ($\mu = 10^{-12} \text{ m}^2/\text{Vs}$ à $T = 380 \text{ °K}$)

A partir des relations (VI-27) à (VI-29), on peut déduire les lois de variation de t_i , t_m et J_m avec la température.

$$t_i \propto \frac{1}{\mu_0 N} \exp\left(+\frac{E_a}{kT}\right) \quad (\text{VI-34})$$

$$t_m \propto \frac{1}{\mu_0 N} \exp\left(+\frac{E_a}{kT}\right) \quad (\text{VI-35})$$

$$J_m \propto \mu_0 N^2 \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \quad (\text{VI-36})$$

En utilisant l'expression de la mobilité μ dans l'équation du courant, on peut calculer les valeurs de t_i , t_m et J_m à la température T .

Dans le tableau.VI-1 les valeurs expérimentales, obtenues sur du PEBD soumis à un champ de 22,5 MV/m, sont comparées aux valeurs théoriques calculées pour : $\rho_o = 6.10^{19} \text{ m}^{-3}$,

$N = 6.10^{18} \text{ m}^{-3}$, $\mu_o = 1,2.10^3 \text{ m}^2/\text{Vs}$, $E_a = 1,03 \text{ eV}$ et $R_o = 0.24$.

$T (^\circ\text{C})$	$J(o)(\text{A/m}^2)$	$t_i (\text{s})$	$t_m(\text{s})$	$J_m(\text{A/m}^2)$
Valeurs expérimentales $F = 22,5 \text{ MV/m}$				
40	$-7,0.10^{-7}$	280	630	$6,0.10^{-9}$
55	$-1,0.10^{-6}$	35	137	$3,5.10^{-8}$
75	$-3,5.10^{-7}$	2,5	17	$1,8.10^{-7}$
Valeurs théoriques $\rho_o = 6.10^{19} \text{ m}^{-3}$, $N = 6.10^{18} \text{ m}^{-3}$, $\mu_o = 1,2.10^3 \text{ m}^2/\text{Vs}$, $E_a = 1,03 \text{ eV}$ et $R_o = 0.24$				
40	$-2,0. 10^{-7}$	250	680	$6,0. 10^{-9}$
55	$-1,0. 10^{-6}$	44	121	$3,1. 10^{-8}$
75	$-5,5. 10^{-6}$	5	15	$2,5. 10^{-7}$

Tableau VI-1:

La dépendance du temps d'inversion t_i en fonction de la température a été observée par plusieurs auteurs [12-15].

La représentation en figures VI-16 et VI-17, de ces paramètres en fonction de $1/T$ montre une bonne concordance entre les résultats donnés par l'expérience et le modèle.

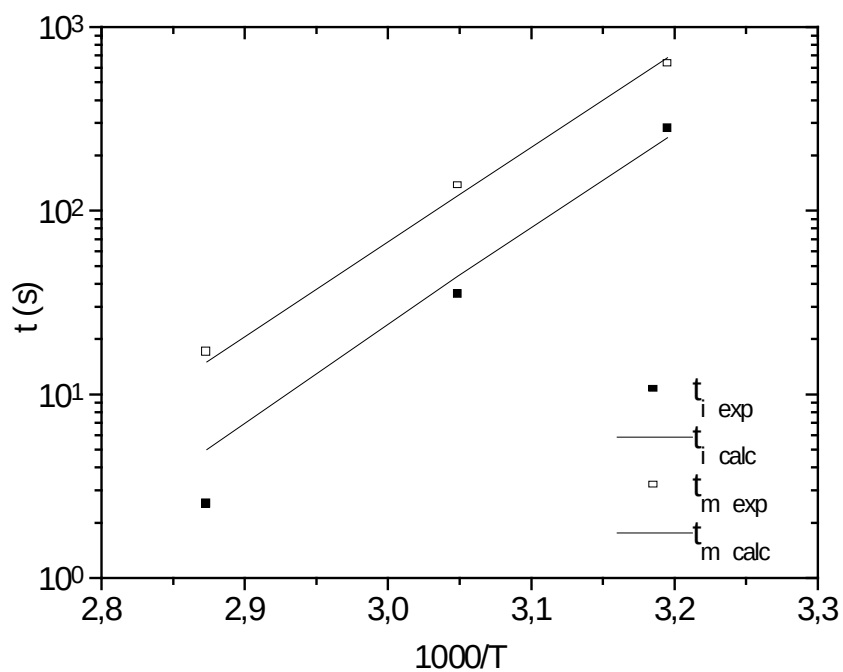


Figure. VI-16 : Variation de $t_i \text{ théo.}$, $t_i \text{ exp.}$, $t_m \text{ théo.}$ et $t_m \text{ exp.}$ en fonction de $1000/T$

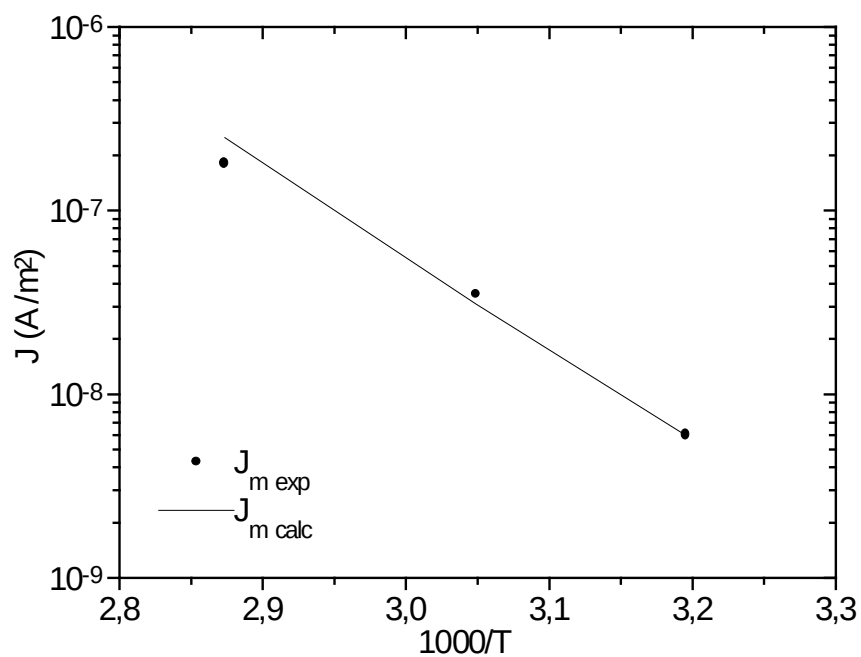


Figure VI-17 : Variation de J_m *théo.* et J_m *exp.* en fonction de $1000/T$

IV- CONCLUSION

A partir de tous les résultats de mesure en fonction de T , F et P , en régime permanent et transitoire en charge et en décharge, nous avons pu élaborer deux modèles théoriques simulant le comportement du courant de décharge à haut champ. Ces modèles supposent l'existence de deux types de charges d'espace l'une positive et l'autre négative. Le calcul a été fait pour deux formes de distributions : La première triangulaire avec des mobilités μ_p et μ_n comparables et la deuxième rectangulaire avec des mobilités très différentes de telle sorte que, dans les calculs l'une d'elle a été considérée nulle.

Le premier modèle a été résolu numériquement par la méthode des différences finies, il a permis de reproduire l'anomalie et d'obtenir l'évolution des distributions de charge, du champ et du courant extérieur au cours du temps pour différents rapports de charges initiales (positives/négatives) et de mobilités.

Le deuxième modèle a été traité en procédant à une résolution analytique suivie d'un calcul numérique de l'équation différentielle donnant la valeur du courant à chaque instant, par la méthode de Runge-Kutta. Pour des domaines de variation des paramètres μ , N , ρ_0 et $R(o)$ judicieusement choisis dans la littérature scientifique, nous avons pu reproduire l'allure des courants de décharge et il a été possible, en faisant varier chacun des quatre paramètres séparément, de déterminer les variations de t_i , t_m et J_m avec ces paramètres et surtout de voir l'évolution de la charge lors de la mise en court circuit de l'échantillon et le changement de profil du champ interne.

A partir de ces deux distributions nous avons comparé les valeurs expérimentales de t_i , t_m et J_m à celles obtenus par calcul. En effet nous avons pu lier les paramètres de calcul (μ , N , ρ_0 et $R(o)$) aux paramètres expérimentaux (T , F et P). Le meilleur accord a été réalisé en tenant compte de la variation de la mobilité avec la température. Nous avons également expliqué la variation de N avec le champ et celle de la mobilité avec la distance de saut.

Pour le choix du modèle théorique, le premier reproduit l'anomalie observée expérimentalement mais les hypothèses ne sont pas tout à fait en accord avec les résultats obtenus en régime permanent. Quant au deuxième modèle c'est celui qui concorde le mieux avec les résultats obtenus à partir du régime permanent (distribution exponentielle de pièges en énergie, accumulation de charges près des électrodes)

BIBLIOGRAPHIE

- 1 – N. Amroun Saidi
Thèse de Magister USTHB Alger 26 juin (1991)
- 2 - K. Kaneko, Y. Suzuoki, T. Mizutani et M. Ieda,
Jap. J. 1996, International symposium on Electrical Insulation (Montréal)
- 3 - D. Malec, R. Essolbi, T.G. Hoang et Bui ai,
IEEE Trans. On Diel. And Elec. Ins. Vol. 3 N° 1 (1996)
- 4 – N.Amroun-Saidi, M.Saidi et M.Bendaoud
4^{ème} Conférence Nationale sur la Haute Tension, janvier 2002 (acceptée)
- 5 - T. Mizutani, T.Oomura et M.Ieda.
Jap.J.Appl.Phys. Vol.23, No.8, p.1195(1982)
- 6 - D. K. Davies,
J. Phys. D : Appl. Phys., p.7262-8, (1972)
- 7 - T.Tanaka et J.H.calderwood,
J.Phys.D: Appl.Phys.,vol.7, pp.1295-1302, (1974)
- 8 - T. Mizutani, K. Mitani et M. Ieda,
Jap. J. Appl. Phys., Vol. 22, N°. 5, p. 855-62, (1983)
- 9 - I. Kitani, Y. Tsuji et K. Arii,
Jap. J. Appl. Phys., Vol.23, No.7, p. 855-860, (1984)
- 10 - A. Rahal,
Thèse de troisième cycle, UPS, Toulouse, France , (1978)
- 11 - H. J. Wintle,
J.Appl.Phys.,42,4724,(1971)
- 12 - K.Kitani et K.Arii.
Jap.J.Appl.Phys. Vol.22, No.5, p.887(1983)
- 13 - A. Cros Le Gloan et H St. Onge.
RGE, tome 89, No.2, p 122(1980)
- 14 - S. Pellisou,
Thèse de PHD, université de Montréal, Canada (1986)
- 15 - T. Mizutani, K. Kaneko, et M. Ieda.
Jap.J.Appl.Phys. Vol.20, No.8, p.1443, (1981)

- 1 - G. Sawa, D.C. Lee, M. Ieda,
Jap. J. Appl. Phys., 14, p. 643, (1975)
- 2 - T. Mizutani, M. Ieda, B. Jordan,
Jap. J. Appl. Phys., 18, p. 65, (1979)
- 5 - D.K. Das-Gupta, K.Doughty, T.S.Duffy et D.E.Cooper.
J.Electrostat., Vol.14, p.165-174(1983)
- 6 - N.Saito et K. Ikesaki.
Jap.J.Appl.Phys. Vol.28, No.3, p.418-422, (1989)
- 7 - K. Kaneko, Y. Suzuoki, T. Mizutani et M. Ieda,
Jap. J. Appl. Phys., Vol. 28, N°. 10, p. 1882, (1989)
- 8 - T. Mizutani
IEEE (1994)
- 9 - A. Cherifi, M.S. Khalil, C. Meunier, J.P. Reboul et A. Toureille
IEEE. 1994
- 10 - Y.Suzuoki et al
IEEE V. 26, N° 6 , (1991)
- 11 - R.J.Fleming, M. Henriksen et J. T. Holboll
IEEE 1996, International symposium on Electrical Insulation (Montréal)
- 12 - Y.Tanaka, Y.Li, T.Takada et M.Ikeda
J.Phys. D :Appl. Phys. , 29, (1995)

CONCLUSION GENERALE

L'étude, de la conduction électrique dans les polymères, que nous avons menée, a nécessité des dispositifs expérimentaux qui comportent des sources de haute tension, des générateurs de pression hydrostatique élevée et des instruments sensibles à des courants d'intensité extrêmement faible.

Les mesures effectuées, sur trois polymères qui présentent des propriétés physico thermiques différentes, ont mis en évidence différents mécanismes de transport de charges. Pour un même matériau ces mécanismes peuvent changer selon que l'on opère à basse ou à haute température, à champ faible ou intense et selon que les courants électriques sont relevés aux temps courts ou après une longue durée. De plus, pour des mêmes valeurs de ces paramètres, plusieurs processus de conduction peuvent intervenir simultanément.

Cette étude a montré que les trois polymères présentent une température critique à partir de laquelle leurs propriétés électriques changent complètement.

Dans le cas du polyéthylène téréphtalate cette température se situe au voisinage de la transition vitreuse. On sait que cette transition du second ordre modifie profondément les propriétés mécaniques du polymère. Au dessous de T_g il se trouve à l'état vitreux, il est dur et cassant au dessus il est mou et déformable. Les propriétés électriques changent elles aussi. Avec le P.E.T, les courants transitoires sont dus, à l'état vitreux, à bas champ et aux temps courts, à la relaxation dipolaire. Par contre, au delà de T_g , ces courants sont générés par la relaxation de la charge d'espace. Au voisinage de la transition vitreuse, les courants de charge sont dus à un processus dipolaire associé à un dépiégeage de charges électriques.

Le Polyéthylène basse densité manifeste, entre 50°C et 60°C, une température critique qui correspond à un mécanisme de préfusion et à partir de laquelle le taux de cristallinité diminue jusqu'à s'annuler avant la fusion. A $T < 55^\circ\text{C}$, les courants transitoires résultent, aux champs faibles, de la relaxation des dipôles dus aux impuretés (groupements C=O, CH₃, liaisons C=C). Cela est confirmé par l'effet de la pression hydrostatique qui se traduit par une réduction du volume libre et une augmentation du temps de relaxation. Au delà de 60°C, la fusion de la phase cristalline entraîne de nombreuses modifications.

Dans le cas du Polyimide cette température se trouve entre 120°C et 140°C.. Le changement de comportement du kapton, au voisinage de cette température, a été mis en évidence, en régime permanent par une variation de pente de la droite $\text{Log}(J) = f(1/T)$ et, en régime transitoire, par le tracé, en fonction de la température, des courants isochrones, qui présentent un pic à cette température quel que soit le champ appliqué. Pour les températures inférieures à 140°C, les courants permanents sont régis par l'effet Poole-Frenkel, au delà de 140°C intervient une conduction d'origine ionique. En régime transitoire, pour $T < 120^\circ\text{C}$, les courants de charge décroissent de façon monotone ; à $T > 140^\circ\text{C}$ et à haut champ, ces courants présentent un minimum. Une formule empirique a été proposée pour traduire le comportement de ces courants de charge. Quant aux courants de décharge, ils ne manifestent aucune particularité.

L'intensité du champ électrique influe énormément sur les courants transitoires.. Ainsi dans le cas du polyéthylène basse densité, lorsque le champ est inférieur à 10MV/m, les courants de décharge restent toujours négatifs. Par contre à haut champ ($F > 10\text{MV/m}$) ces courants présentent un comportement "anormal" ils sont négatifs, changent de signe à l'instant t_i , puis passent par un maximum J_m à t_m avant de s'annuler. Ce phénomène a été expliqué par deux modèles théoriques basés sur l'existence de deux distributions de charges électriques de signes contraires. Le deuxième modèle basé sur la présence, au moment de la décharge, d'un feuillet de charges positives près de la cathode, en présence de charges négatives répartis à travers le matériau, a permis de déterminer le temps d'inversion t_i du courant et la localisation temporelle t_m du maximum J_m . Les résultats trouvés concordent avec l'expérience.

Ce travail ouvre de larges perspectives tant sur le plan expérimental que sur le plan théorique. En effet il serait intéressant de pouvoir caractériser nos matériaux par d'autres techniques. Ainsi, il est possible d'étudier la répartition de la charge d'espace, dans les

échantillons que nous avons utilisés, par les méthodes de l'onde de pression [1] et de l'onde thermique [2]. Ces expériences peuvent être menées avec la collaboration des universités de Toulouse et de Montpellier.

Nous envisageons d'établir une corrélation entre les courants de décharge et les courants de dépolarisation thermostimulés (TSC), afin de mettre en évidence, par une autre technique, l'anomalie observée lors de cette étude. A cet effet, un banc de mesure de TSC existe au sein de notre laboratoire

Sur le plan théorique, les possibilités sont nombreuses. Ainsi il est serait préférable d'introduire explicitement la variable température dans la formule empirique proposée dans le cas du polyimide, pour pouvoir reproduire le changement d'allure. Il serait en outre souhaitable, dans la simulation des courants transitoires, de pouvoir à chaque fois, lier les paramètres de calcul aux variables expérimentales.

Nous travaillons actuellement, sur la réalisation d'un programme de calcul unique, dans lequel sera introduite toute forme de distribution de charges.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

CHAPITRE I

- 1 - R. Coelho et D. Aladenize
« *Les diélectriques : propriétés diélectriques des matériaux isolants* »,
Edition Hermès, (1994)
- 2 - A. Rose
Phys. Rev. , Vol. 97, p. 1538-44 (1955)
- 3 - Y. Segui
Thèse de Doctorat, U.P.S. Toulouse (1978)
- 4 - R.H. Good et W. Müller
« *Field Emission* », *Handbuch der Physik*, Vol.21 (1956)
- 5 - C. Cherki, R. Coelho et R. Nannoni
Phys. Stat.Sol., (a), 2785 (1970)
- 6 - P. Wilcox
Can. J. Phys., 50, 212 (1972)
- 7- H.J. Wintle
J. Appl. Phys., 44, 2514 (1973)
- 8 - N.F. Mott et E. A. Davis,
Electronic Processes in Noncrystalline Materials, Oxford (1979)
- 9 - A. K. Jonscher et R.M. Hill,
Electrical Conduction in Disordered Nonmetallic Films,
Physics of thin films, 8, 169-242 (1975)
- 10 - J. Frenkel,
Phys. Rev. , 54, 647 (1938)
- 11 - H. Seki,
Phys. Rev. , B2, 4877 (1970)
- 12 - G.J. Simmons,
Phys. Rev. , 155, 657 (1967)
- 13 - P. Mark et T.E. Hartman,
J. Appl. Phys. ,39, 2168 (1968)
- 14 - H.L. Yeagan et T.J. Taylor,
J. Appl. Phys., 39, 5600 (1968)

- 15 -D.M. Taylor et T.J. Lewis
J. Phys. D : Appl. Phys., Vol.4, p. 1346-57 (1971)
- 16 - H. Adachi, Y. Shibayama et S. Sono
J. Phys. D: Appl. Phys. , 4, p. 988-94 (1971)
- 17 - W. Wollmann
Phys. Stat. Solid, (a) 22, 195 (1974)
- 18 - M. Saidi,
Thèse de Doctorat, USTHB (1996)
- 19 - N. Amroun
Thèse de Magister, USTHB (1991)
- 20 - T. Miamoto et K. Shibayama
J. Appl. Phys. , 44, 5372 (1973)
- 21 – M. H. Cohen et T. Turnbull
J. Chem. Phys., 31, 1184 (1959)
- 22 - R.L. Frank et G.J. Simmons
J. Appl. Phys. , 382 (1967)
- 23 - J.C. Schug, A.C. Lilly et D. A. Lowitz
Phys. Rev. , B1,p. 4811-18 (1970)
- 24 - D.L. Pulfrey, A.H.M. Shousha et L. Young
J. Appl. Phys. , 41,p. 2838-43 (1970)
- 25 - J. Godlewski et J. Kalinowski
Injection Limited Currents in Insulators, Jap. J. Appl. Phys., Vol. 28, 24-38 (1989)
- 26 - J.J. O'Dwyer
J. Appl. Phys. , Vol. 37, 2, p. 599-601 (1966)
- 27 - H. Frölich
Proc. Roy. Soc., London, A188, 521 (1947)
- 28 - J.J. O'Dwyer
The theory of electrical conduction and breakdown in solid dielectrics,
Clarendon Oxford (1973)
- 29 - V.A. Adamec
Kolloid.-z.z.Polym., 237, p.219 (1970)
249, p.1085 (1971)
- 30 - D.K. Das Gupta and R.S. Brockley
J. Phys. D : Appl. Phys., Vol.11, p.955-62 (1978)

- 31 - V.V. Daniel
"Dielectric Relaxations", Academic Press London:, Ch.6 (1967)
- 32 - A. Many et G. Rakavy
Phys. Rev., 126, p.1980 (1962)
- 33 - R.H. Walden
J. Appl. Phys., Vol.43, No.3, p.1178-86 (1972)
- 34 - H.J. Wintle
J. Non. Crist. Solids, 15, p.471-86 (1974)
- 35 - J. Lindmayer
J. Appl. Phys., 36, p.196 (1965)
- 15 - D.M.T aylor et T.J. Lewis
J. Phys., D4, p.1346 (1971)
- 36 - J.R. Mac Donald
J. Chem. Phys., 54, p.2026-50 (1971)
- 37 - R.H. Partridge
Polym. Lett., 5, p.205 (1967)
- 38 - T.J. Lewis
Conf. on Elect. Prop. of Organ. Sol., Wroclaw, Poland, Inst.Phys.Chem. Ser.7, Conf. No.1, p.146-62 (1974)
- 39 - A.K. Jonscher
J. Non. Crist. Solids, 8-10, p. 293-315 (1972)
- 40 - A. Servini et A.K. Jonscher
Thin Solid Films, 3, p.341 (1969)
- 41 - D.K. Das Gupta et K .Joyner
J. Phys., D9, p.829 (1976)
- 42 - D.K. Das Gupta, K. Doughty, J.S. Duffy et D.E. Cooper
J. Electrostat., 14, p.165-74 (1983)
- 43 - C.J.F. Bottcher
« Theory of electric polarisation », Elsevier, Amsterdam (1952)
- 44 - B.V. Hamon
Institut Monographie, I.E.C, No.27 (1972)
- 45 – N. Ja. Vilenkin
« Fonctions spéciales et théorie de la représentation des groupes », Dunod, Paris (1969)
- 46 - D.R. Franceschetti et J.R. Mac Donald

- J. Appl. Phys.*, Vol.50, No.1, p.290-302 (1979)
- 47 - R. Goffaux,
Bul. Sci. A.I.M., Vol. 89, No.2, p.89-109 (1973)
- 48 - H.J. Wintle
J. Appl. Phys., Vol.63, No.5, p.1705-1713 (1988)
- 49 - J. Lowell
J. Phys. D: Appl. Phys., 23, p.205-210 (1990)
- 50 - H.J. Wintle,
Basic Physics of Insulators, IEEE Trans. on E. I., EI25, 27 (1990)

CHAPITRE II

- 1 - N. Amroun
Thèse de Magister, USTHB (1991)
- 2 - Hoang The Giam
Thèse de doctorat ès sciences Toulouse (1980)

CHAPITRE III

- 1 - Z. Amalou
Thèse de Magister, USTHB, Alger, (1998)
- 2 - S. Matsumoto, K. Kamisako et K.S hinohara
Jap. J. Appl. Phys. , Vol. 15, No. 1, (1976)
- 3 - A.C. Lilly et J.R.. Mc. Dowell
J. Appl. Phys., 39, p.141-7 (1968)
- 4 - N. Zebouchi, M. Bendaoud, R. Essolbi, D. Malec, Bui Aï et T.G. Hoang.
J. Appl. Phys., Vol.79, No.5, p.2497, (1996)
- 5 - J.R. Hanscomb et Y. Kaahwa
Journal of Physics D. , Vol. 12, p. 587-599, (1979)
- 6 - C. Bucci, R. Pieschi et G. Guidi
Phys. Rev., 148, 16, (1966)
- 7 - A. Gourari, M. Bendaoud, C. Lacabane et R.F. Boyer
Journ. of Polym. Sc. Polym. Phys. Ed., vol.23, No.5, p.889-916, (1985)
- 8 - E. Neagu, P. Pissis, L. Apekis et J.L. Gomez Ribelles

- J.Phys.D :Appl.Phys.*, 30, p.1551-1560 (1997)
- 9 - N. Benrekaa
Thèse de Magister, USTHB, Alger, (1999)
- 10 - E. Neagu, J.N. Marat-Mendes, D.K. Das-Gupta, R.M. Neagu et R. Igreja
J.Phys.D.Appl.Phys., Vol.82, No.5, p.2488-96 (1997)
- 11 - Y. Gorokovatsky, D. Temnov, J.N. Marat-Mendes, C.J.M. Dias et D.K. Das-Gupta
J.Appl.Phys., Vol.83, No.10, p.5337 (1998)
- 12 - A Thielen, J. Niezette, G. Feyder et J. Vanderschueren
8th Int. Sym. On Electrets ISE8 , (1994)
- 13 - Tatsumi Ito Hayakawa
J. Polym .Sci. Phys., 30, 701-706 (1992)
- 14 - J. Menegotto, P. Deuront et C. Lacabane
10th Intern.Symp. on Electrets ISE10, Delphi Greece (1999)
- 15 - S. Havriliak et J. Shortridge
Polymer, 31, 1782 (1990)
- 16 - H.J. Wintle
J. Appl .Phys., Vol.62, No.7, p.2933-36, (1987)
- 17 - E.R. Neagu, J.N. Marat-Mendes, D.K. Das-Gupta et R.M. Neagu
ISE 10, p.111-14 (1999)
- 18 - E. Neagu, P. Pissis et L. Apekis
J. Appl. Phys., Vol.87, No.6, p.2914-22 (2000)
 E.R. Neagu et R.M. Neagu
Thin Solid Films, 358, (1-2), p.283-91 (2000)
- 19 - E.R. Neagu, J.N. Marat-Mendes, D.K. Das-Gupta et R.M. Neagu
ISE 10, p.111-14 (1999)

CHAPITRE IV

- 1 - M. Saidi
Thèse de magister, USTHB, Alger (1985)
- 2 - D.K. Davis
IEEE Proc., A 128, 153 (1981)
- 3 - K. Pietrowski
J. Electrostat., 13, 301 (1982)

- 4 - N. Saidi-Amroun,, M. Saidi, M. Bendaoud, T.G. Hoang
Ann. Chim., Vol. 19, p.549, (1994)
- 5 - Y. Suzuoki, H. Muto, T. Mizutani et M Ieda
Jap. J. Appl .Phys.,Vol.24, No.5, p.604-09 (1985)
- 6 - S. Pelissou
Thèse de P.H.D., Université de Montréal, Canada (1986)
- 7 - M. Ieda, T. Mizutani, Y. Suzuoki et M. Hanai
Jap .J. Appl. Phys.,Vol.21, No.11, p.1639-41 (1984)
- 8 - M. Saidi
Thèse de Doctorat ès Science, USTHB, Alger (1996)
- 9 - H. Adachi, Y. Shibata et S. Ono
J. Phys. D :Appl. Phys., Vol.4, p.988-94 (1971)
- 10 - M. Farzaneh,
Thèse de 3^{ème} cycle, Université Paul Sabatier, Toulouse (1980)
- 11 - M.Saidi, N.Amroun, M.Bendaoud, R.Essolbi, A Antoniou et Hoang-The-Giam
High Pressure Research , Vol.9, p.355-58 (1992)
- 12 - V. Adamec et J.H. Calderwood
J. Phys. D : Appl. Phys.,Vol.16, p.203-211 (1983)
- 13 - P. Destruel
Thèse de doctorat ès-Sciences UPS Toulouse France(1980)
- 14 - D.K. Das Gupta et R.S. Brockley
J. Phys. D : Appl. Phys., Vol.11, p.955-62, (1978)
- 15 - P. Fischer et P. Rôhl
J. Polym. Sci., Vol.14, p.531-542 (1976)
- 16 - D.K. Das Gupta et P.C.N. Scarpa
IEEE Elect. Insul. Mag., Vol.15, No.2, p.23-32, (1999)
- 17 - P.C.N. Scarpa et D.K. Das Gupta
ICSD'98. IEEE 6th Int.Conf. Cond. Break. Sol. Diel., (1998)
- 18 - MC. Lanca, M.T. Viciosa, C.J. Diasl, J.N. Marat Mendes, M.A. Bento et D.K. Das Gupta
ISE10 10th International Symposium on Electrets (1999)
- 19 - PCN Scarpa, E. L. Legenza et D.K. Das Gupta
ISE10 10th International Symposium on Electrets (1999)
- 20 - G.C. Montanari et D.K. Das Gupta
IEEE Transactions on Dielectric and Electrical Insulation, Vol.7, No.4, p.319-24 (2000)

- 21 - M. Murano, L. Moreno, P.C.N. Scarpa et D.K. Das Gupta
Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (1999)
- 22 - N. Saidi-Amroun, M. Saidi, M. Bendaoud, R. Essolbi, T. Elalam et T.G. Hoang
High Pressure Research, Vol. 7, p. 153, (1991)
- 23 - R. Patsch,
J. Phys. D: Appl. Phys., Vol.23, p. 1497-1505 (1990)
- 24 - J. Lowell
J. Phys. D : Appl. Phys., Vol.23, p.205-21 (1990)
- 25 - I. Kitani, N. Tsuji et K. Arii
Jap. J. Appl. Phys., Vol.23, No.7, p.855-60 (1984)
- 26 - M. Iwamoto,
J. Appl. Phys., 79, (10), p.7936-43 (1996)
- 27 - T. Mizutani, M. Ieda et I.B. Jordan
Jap. J. Appl. Phys., Vol.18, No.1, p.65-70 (1979)
- 28 - T. Mizutani, K. Kaneka et M. Ieda
Jap. J. Appl. Phys., Vol.20, No.8, p.1443-48 (1981)

CHAPITRE V

- 1 - Kapton film Polyimide ,Dupont de Nemours
International S.A. Dupont Electronics Geneva,Switzerland
<http://www.dupont.com>
- 2 - J. Wiley
J. Polym. Sci. Macro. Rev., Vol.11, p.161-208, (1976)
- 3 - Shien-Yang Wu et D. Denton
IEEE Trans.Elect.Ins, 27, 2, (1992)
- 4 - L. Anouche et C. Alquie
J. Appl. Phys., Vol.86, No.2, p.1156-66, (1999)
- 5 - F.T. Emery
Conf. on Electr. Insul. and Diel. Phen., Vol.1, p.220-30, (1998)
- 6 - TR. Bergstresser, NE. Bergkessel, S.K. Chiang
IPC 4th Annual National Conference on Flexible Circuits, Vol.2, p.63-71, (1998)
- 7 - B.D. Harper, J.M. Rao, V.H. Kenner et C.H. Popelar
Journal of Electronic Materials, Vol.26, No.7, p.798-804, (1997)

- 8 - M. Akita
IPC 4th Annual National Conference on Flexible Circuits, Vol.2, p.117-23, (1998)
- 9 - JP. Bellomo, A. Mbaye et T. Lebey
International Symposium on Electrical Insulation, Vol.1, p.177-80, (1998)
- 10 - A.J. Broadbent, J. Crozier, K.D. Smith, AJ. Street et J.M. Wiatrzyk
Advances in Cryogenic Engineering, Vol.1, p.213-18, (1997)
- 11 - C.A. Outten, D. Kester, C. Venkatraman, D. Bray et C. Halter
1999 TMS Annual Meeting, p.271-82, (1999)
- 12 - H.N. Benford, W. Yufen, D.J. Tedford et M.J. Given
Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, p.239-42, (1995)
- 13 - J.M. Constantini, JP. Salvétat, F. Brisard, MP. Cals, JP. Marque et F. Issac
Nuclear Instruments & methods in Physics Research, Vol.116, No.1, p.496-501, (1996)
- 14 - J.P. Salvétat, J.M. Constantini, F. Brisard et L. Zuppiroli
Phys. Rev. B, Vol.55, No.10, p.6238-48, (1997)
- 15 - Y. Muramoto, M. Nagao, et M. Kosaki
Inter. Conf. on Prop. and Appl. of Diel. Mater., Vol.2, p.802-5, (1997)
- 16 - E. Motyl et R. Kacprzyk
9th International Symposium on Electrets, p.608-13, (1996)
- 17 - D. Benzerouk
Thèse de Magister, USTHB Alger (1996)
- 18 - H. Benalla
Thèse de 3^{ème} cycle, UPS, Toulouse, France, (1984)
- 19 - M.H. Chohan, H. Mahmood et F. Shah
Modern Physics Letter B, Vol.8, No25, p.1591-5, (1994)
- 20 - M. Saidi
Thèse de Magister, U.S.T.H.B., Alger (1985)
Thèse de Docteur d'état, U.S.T.H.B., Alger (1996)
- 21 - Y. Muramoto, M. Nagao, S. Mitsumoto, M. Fukuma et M. Kosaki
Conf. on Electr. Insul. and Diel. Phen., Vol.1, p.110-13, (1999)
- 22 - Y. Muramoto, M. Nagao, F. Mizuno et M. Kosaki
Int.Symp.Electr.Insul.Mater., (1998)
- 23 - Y. Muramoto, M. Nagao, et M. Kosaki
Conf. on Electr. Insul. and Diel. Phen., Vol.1, p.158-61, (1997)
- 24 - G. Sawa, S. Nakamura, K. Lida et M. Ieda

- Jap. J. Appl. Phys*, 19, 453, (1980)
- 25 - J.R. Hanscomb et J.H. Calderwood
J. Phys. D., Vol.13, p.1093, (1973)
- 26 - B. L. Sharma et P. K. C. Pillai
Polymer, 23, 17, (1982)
- 27 - E. Sacher
IEEE Trans.Electr.insul., Vol.14, p.85-93, (1979)
- 28 - J.P. Crine, D.L. Pironawd et A. Yelon
Conf. on Electr. Insul and Diel. Phen., 226, (1977)
- 29 - M. Kosaki, K. Sugiyama et M. Ieda
J. Appl. Phys., Vol.42 ,No.9, (1971)
- 30 - H.G. Wintle
J. Non-Crist. Solids, 15, p.471-86, (1974)
- 31 - J. Vanderschueren et A. Linkens
J. Phys., Vol.49, No.7, p.4195, (1978)
- 32 - D.K. Das Gupta et R.S. Brockley
J. Phys. D : Appl. Phys., Vol.11, p.955-62, (1978)
- 33 - D.K. Das-Gupta
Inter. Conf. on Prop. and Appl. on Diel. Mater. (ICPADM 2000), Chine (2000)
- 34 - J.R. Mac Donald
J. Chem. Phys., 54, p. 2026-50 (1971)
- 35 - K. Kaneko, Y. Suzuoki, T. Mizutani et M. Ieda.
Jap. J. Appl. Phys., Vol.29, No.8, p.1506-1510 (1990)
- 36 - M. Iwamoto
J. Appl. Phys., 79, (10), p.7936-43 (1996)
- 37 - D. Malec
Mémoire d'Ingéniorat CNAM, UPS Toulouse, p.39, (1992)
- 38 - Y. Segui
Thèse de Doctorat, UPS Toulouse, France, (1974)

CHAPITRE VI

- 1 – N. Amroun
Thèse de Magister, USTHB Alger, 26 juin (1991)

- 2 - K. Kaneko, Y. Suzuoki, T. Mizutani et M. Ieda,
Jap. J. 1996, International symposium on Electrical Insulation (Montréal)
- 3 - D. Malec, R. Essolbi, T.G. Hoang et Bui ai,
IEEE Trans. On Diel. And Elec. Ins., Vol. 3, N° 1 (1996)
- 4 – N.Amroun-Saidi, M.Saidi et M.Bendaoud
4^{ème} Conférence Nationale sur la Haute Tension, janvier 2002 (acceptée)
- 5 - T. Mizutani, T.Oomura et M.Ieda.
Jap. J. Appl. Phys., Vol.23, No.8, p.1195 (1982)
- 6 - D. K. Davies,
J. Phys. D : Appl. Phys., p.7262-8, (1972)
- 7 - T.Tanaka et J.H.calderwood,
J. Phys. D : Appl. Phys.,Vol.7, p.1295-1302, (1974)
- 8 - T. Mizutani, K. Mitani et M. Ieda,
Jap. J. Appl. Phys., Vol. 22, N°. 5, p. 855-62, (1983)
- 9 - I. Kitani, Y. Tsuji et K. Arii,
Jap. J. Appl. Phys., Vol.23, No.7, p. 855-860, (1984)
- 10 - A. Rahal,
Thèse de troisième cycle, UPS, Toulouse, France , (1978)
- 11 - H. J. Wintle,
J .Appl. Phys., 42, 4724,(1971)
- 12 - K.Kitani et K.Arii.
Jap. J. Appl. Phys., Vol.22, No.5, p.887 (1983)
- 13 - A. Cros Le Gloan et H St. Onge.
RGE, tome 89, No.2, p 122 (1980)
- 14 - S. Pellisou,
Thèse de PHD, université de Montréal, Canada (1986)
- 15 - T. Mizutani, K. Kaneko, et M. Ieda.
Jap. J. Appl. Phys. Vol.20, No.8, p.1443, (1981)

CONCLUSION

- 1 – P. Laurenceau, G. Dreyfus et J. Lewiner
Phys. Rev. Lett., Vol. 38, No.46 (1977)
- 2 – A. Toureille
Rev. Gen. Electr. Vol. 8, No.15 (1991)