

N° d'ordre : 14/2003-M/PH

UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE

HOUARI BOUMEDIENNE

(USTHB)-ALGER

FACULTE DES SCIENCES (PHYSIQUE)



MEMOIRE

Présenté pour l'obtention du diplôme de

**MAGISTER**

EN PHYSIQUE

Spécialité : PHYSIQUE DES MATERIAUX

Par : M<sup>lle</sup> Sarah CHAIBI

**SUJET**

**CONDUCTION ELECTRIQUE DANS LES FILMS DE  
POLYETHERIMIDE (P.E.I), EN FONCTION  
DU CHAMP ELECTRIQUE ET DE LA TEMPERATURE**

Soutenu publiquement le 11 Novembre 2003, devant le jury composé de :

Mr. A. BOUBAKEUR	Professeur, (E.N.P).Alger	Président
Mme.N.SAIDI AMROUN	Maître de Conférences, (U.S.T.H.B)	Directeur de thèse
Mr. M. KECHOUANE	Maître de Conférences, (U.S.T.H.B)	Examineur
Mr. S. BOUAZABIA	Chargé de Cours, (U.S.T.H.B)	Examineur
Mr. N. BELDJOUDI	Maître de Conférences (U.S.T.H.B)	Examineur

# REMERCIEMENTS

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à monsieur le professeur M. BENDAOUD, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire et pour m'avoir dirigé et orienté tout au long de ce travail, qu'il trouve ici l'expression de toute ma gratitude.

Je tiens à présenter tous mes remerciements et toute ma gratitude à ma directrice de thèse, madame N. SAIDI AMROUN, pour m'avoir guidé tout au long de ce travail.

Monsieur A. BOUBAKEUR, professeur à l'E.N.P, me fait l'honneur de présider ce jury, qu'il trouve ici l'expression de mes remerciements les plus chaleureux.

Je remercie monsieur M. KECHOUANE, maître de conférences à l'U.S.T.H.B, d'avoir bien voulu accepter de juger ce travail.

Mes remerciements vont également à monsieur N. BELDJOUDI, maître de conférences à l'U.S.T.H.B, pour avoir accepté d'examiner cette thèse.

Je remercie aussi Monsieur S. BOUAZABIA, chargé de cours à l'U.S.T.H.B, de participer au jury.

Je ne saurais oublier tous mes amis et membres du laboratoire qui m'ont apporté leur aide morale et leur sympathie.

## LISTE DES PRINCIPAUX SYMBOLES

$\beta_s$	Constante de Schottky
$\beta_{FN}$	Constante de Fowler-Nordheim
$\beta_{PF}$	Constante de Poole-Frenkel
$\varepsilon$	Constante diélectrique
$\varepsilon^*$	Permittivité complexe
$\varepsilon_s$	Permittivité du matériau en basses fréquences
$\varepsilon_\infty$	Permittivité du matériau en hautes fréquences
$\Phi$	Energie potentielle électrique de l'électron
$\Phi_0$	Hauteur de la barrière de potentiel en absence de champ électrique
$\Delta\Phi$	L'abaissement de la barrière de potentiel
$\Phi_m$	Maximum de l'énergie potentielle de l'électron
$\lambda$	Distance inter sites
$\mu$	Mobilité des électrons
$\rho(x)$	Densité de charge
$\sigma$	Conductivité
$\tau$	Temps de relaxation
$A$	Constante de Richardson
$d$	Épaisseur de l'échantillon
$D$	Constante de diffusion des électrons
$E_\tau$	Niveau énergétique du piège
$f$	Force électrostatique
$f$	Fonctions spéciales données dans les tables O'Dwyer
$\vec{F}$	Champ électrique
$g$	Fonctions spéciales données dans les tables O'Dwyer
$h$	Constante de Planck
$J$	Densité de courant
$k$	Constante de Boltzmann
$m^*$	Masse effective de l'électron
$n_i$	Concentration d'électrons libres injectés en régime permanent
$n(x,t)$	Concentration des électrons libres
$n_t(x,t)$	Concentration des électrons piégés
$n_0$	Concentration initiale des électrons libres à l'équilibre thermodynamique
$n_{t0}$	Concentration initiale des électrons piégés à l'équilibre thermodynamique
$N_c$	Densité d'état dans la bande de conduction
$N_\tau$	Densité de piège au niveau énergétique $E_\tau$
$N_t$	Nombre total de pièges par unité de volume
$P$	Probabilité de saut par unité de temps
$S$	Surface des électrodes
$T$	Température
$T_c$	Paramètre de distribution
$V_{TFL}$	Tension caractéristique correspondant à l'état où tous les pièges sont remplis
$V$	Tension électrique
$x_m$	Abscisse relative à une énergie potentielle maximale atteinte par l'électron
$x_0$	Constante d'intégration représentant le rapport entre les porteurs libres et piégés

## TABLES DES MATIERES

<b>INTRODUCTION.....</b>	<b>1</b>
<b>CHAPITRE I.....</b>	<b>3</b>
<b>THEORIES SUR LES PHENOMENES DE TRANSPORT DE CHARGES DANS LES ISOLANTS SOLIDES.....</b>	<b>3</b>
<b>I. MECANISMES DE CONDUCTION EN REGIME PERMANENT .....</b>	<b>5</b>
<b>I.1. COURANTS LIMITES PAR L'INTERFACE METAL-ISOLANT .....</b>	<b>5</b>
I.1.a. Effet Schottky.....	5
I.1.b. Effet Fowler-Nordheim .....	7
<b>I.2. COURANTS REGIS PAR LE VOLUME.....</b>	<b>9</b>
I.2.a. Courant limité par la charge d'espace .....	9
I.2.b. Modèle de conduction par saut (Hopping).....	18
I.2.c. Modèle de Poole-Frenkel .....	21
I.2.d. Modèle de conduction ionique .....	24
<b>II. PHENOMENES TRANSITOIRES .....</b>	<b>26</b>
<b>II.1. PHENOMENOLOGIE .....</b>	<b>26</b>
<b>II.2. MODELE DE DEBYE ET SES LIMITES .....</b>	<b>27</b>
<b>II.3. AUTRES MECANISMES .....</b>	<b>29</b>
<b>II.4. APPROXIMATION DE HAMON.....</b>	<b>30</b>
<b>III.RELAXATION MECANIQUE .....</b>	<b>30</b>
<b>CHAPITRE II.....</b>	<b>32</b>
<b>DISPOSITIF EXPERIMENTAL .....</b>	<b>32</b>
<b>I. DISPOSITIF EXPERIMENTAL.....</b>	<b>33</b>
<b>I.1. CELLULE DE MESURE.....</b>	<b>33</b>
<b>I.2. CIRCUIT D'ALIMENTATION ELECTRIQUE .....</b>	<b>37</b>
<b>I.3. CIRCUIT DE MESURE DU COURANT .....</b>	<b>37</b>
<b>I.4. SYSTEME DE REGULATION THERMIQUE.....</b>	<b>37</b>
<b>I.5. DISPOSITIF DE POMPAGE ET D'INJECTION DE GAZ .....</b>	<b>37</b>
<b>II. PROCEDURE DE MESURE.....</b>	<b>38</b>
<b>III.METALISATION DES ECHANTILLONS .....</b>	<b>40</b>
<b>CHAPITRE III.....</b>	<b>43</b>
<b>LES ECHANTILLONS DE POLYETHERIMIDE.....</b>	<b>43</b>
<b>I. FORMULE CHIMIQUE ET SYNTHESE DU POLYETHERIMIDE.....</b>	<b>44</b>

<b>II. CARACTERISTIQUES DES FILMS ULTEM 5000 .....</b>	<b>45</b>
<b>III.PROPRIETES DU PEI.....</b>	<b>46</b>
<b>III.1. PROPRIETES GENERALES .....</b>	<b>46</b>
<b>III.2. PROPRIETES MECANIQUES.....</b>	<b>47</b>
<b>III.3. PROPRIETES THERMIQUES.....</b>	<b>48</b>
<b>III.4. PROPRIETES ELECTRIQUES .....</b>	<b>49</b>
<b>III.5. PROPRIETES CHIMIQUES.....</b>	<b>49</b>
<b>IV. APPLICATIONS.....</b>	<b>49</b>
<b>CHAPITRE IV .....</b>	<b>51</b>
<b>RESULTATS ET INTERPERTATION .....</b>	<b>51</b>
<b>I. RESULTAS EXPERIMENTALES .....</b>	<b>52</b>
<b>I.1. EFFET DE LA TEMPERATURE .....</b>	<b>52</b>
<b>I.2. EFFET DU CHAMP ELECTRIQUE .....</b>	<b>58</b>
<b>II. ETUDE DU REGIME PERMANENT :.....</b>	<b>63</b>
<b>II.1. EFFET DE LA TEMPERATURE SUR LE COURANT DE CONDUCTION .....</b>	<b>63</b>
<b>II.2. EFFET DU CHAMP ELECTRIQUE .....</b>	<b>65</b>
<b>II.3. CARACTERISTIQUE DENSITE DE COURANT–RACINE CARREE DU CHAMP ELECTRIQUE.....</b>	<b>67</b>
<b>III. CONCLUSION .....</b>	<b>69</b>
<b>CONCLUSION GENERALE .....</b>	<b>70</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE.....</b>	<b>72</b>

## INTRODUCTION

La résine ULTEM, un polytherimide thermoplastique amorphe, allie les performances élevées qui distinguent les plastiques spéciaux particulièrement sophistiqués, aux excellentes caractéristiques de mise en œuvre propres aux plastiques techniques. Grâce à cela, le PEI apporte aux industries une latitude exceptionnelle de conception; en particulier, il présente d'excellentes propriétés électriques qui restent stables sur une large gamme de conditions environnantes. Cette stabilité alliée à ses propriétés thermiques et mécaniques, fait de l'ULTEM un candidat idéal pour les applications de pointe dans le domaine de l'électricité et électronique.

Compte tenu de l'intérêt industriel que représentent ces matériaux dans le domaine de l'isolation électrique en haute tension et en électronique, il est nécessaire de connaître leur comportement électrique et en particulier leur conductivité et éventuellement leur rigidité diélectrique, afin de pouvoir apporter des améliorations sur leurs propriétés électriques. Car, malgré ses excellentes qualités, il subsiste jusqu'à présent des problèmes liés au comportement de ces matériaux à température élevée et au champ : des charges électriques sont injectées du métal vers l'isolant, alors que d'autres charges prennent naissance dans le volume du matériau par dissociation ionique, sous l'action conjuguée 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 la résultante de ces deux champs entraîne un claquage prématuré de l'isolant et la détérioration du matériel électrique. Plusieurs travaux ont été publiés sur le comportement électrique de ce type de matériaux lorsqu'ils sont soumis à des champs électriques continus.

Notre travail s'insère dans ce cadre et concerne en particulier l'effet de la température sur la conduction électrique, particulièrement à la limite des températures de service.

Le premier chapitre est consacré à l'étude des phénomènes de transport de charges dans les isolants solides.

Le dispositif expérimental, la procédure de mesure ainsi que la technique de métallisation des films de polyetherimide, sont décrits dans le second chapitre.

Dans le troisième chapitre nous présentons l'échantillon étudié avec ses caractéristiques et ses applications.

La présentation des résultats obtenus est reportée dans le quatrième chapitre.

Quand au dernier chapitre, il est destiné à l'interprétation et la discussion des résultats.

Enfin, nous concluons cette étude et présenterons les différentes perspectives envisagées par ce travail.

## **CHAPITRE I**

# **THEORIES SUR LES PHENOMENES DE TRANSPORT DE CHARGES DANS LES ISOLANTS SOLIDES**

Il existe un certain nombre de polymères dont les chaînes, pour des raisons stériques et conformationnelles, ne peuvent s'ordonner en réseaux cristallins, et restent en désordre à l'état solide : ce sont les polymères amorphes. Toutefois, les corps amorphes peuvent posséder les mêmes propriétés électriques que les corps cristallins.

Un polymère amorphe ne possède pas d'ordre à longue distance, cependant on admet l'existence d'un ordre à courte distance. Cette dernière constatation nous permet d'appliquer pour de tels polymères les concepts de la théorie des bandes.

En fait, la notion d'ordre à courte distance, se traduit par l'existence de niveaux délocalisés (bandes continues de conduction), une queue de bande formée d'états de plus en plus localisés aux voisinages de la bande interdite, permet la transition de la bande de conduction vers la bande interdite.

Les mécanismes de transport dans les diélectriques sont classés en deux catégories : la première concerne ceux induits par l'interface métal-isolant parmi lesquels on trouve les phénomènes d'injection de porteurs de charge, l'émission thermoionique définie dans la loi de Schottky, ainsi que la conduction par effet tunnel de Fowler- Nordheim. La deuxième catégorie comprend les phénomènes de conduction limités par le volume, on cite les modèles de courants limités par charge d'espace, la conduction ionique liée directement à la présence d'impuretés dans les polymères, mais également les phénomènes de dépiégeage provenant de l'existence d'états localisés dans la bande interdite, ces phénomènes sont évoqués dans le modèle de conduction de Hopping ou dans le modèle de Poole-Frenkel.

Les mécanismes de conduction cités peuvent se manifester en même temps, toutefois, pour des raisons de commodité, nous les présenterons séparément.

## I. MECANISMES DE CONDUCTION EN REGIME PERMANENT

### I.1. Courants limités par l'interface métal-isolant

La conduction limitée par l'interface métal-isolant est due à l'injection des porteurs de charge au niveau des électrodes. Les mécanismes qui permettent aux électrons de pénétrer dans l'isolant sont ceux donnés par l'effet Schottky ou alors par effet tunnel, auquel cas il s'agirait de l'effet Fowler-Nordheim. Cet effet apparaît pour des champs électriques intenses ; toutefois, on constate que pour des échantillons diélectriques dont l'épaisseur est importante ( $d > 1\mu$ ), et aux températures élevées, l'émission Schottky devient prépondérante par rapport à la conduction par effet tunnel.

#### I.1.a. Effet Schottky

La conduction par effet Schottky (figure I.1) est due à l'injection des porteurs de charge de l'électrode dans l'isolant, lorsque la barrière de potentiel à l'interface métal-isolant est abaissée sous l'action conjuguée du champ image et du champ électrique [1]. La force image considérée s'exerce sur l'électron lorsqu'il est extrait du métal à la distance  $x$  de l'interface. Elle est donnée par :

$$f = -\frac{1}{4\pi\epsilon} \frac{e^2}{(2x)^2} \quad (1)$$

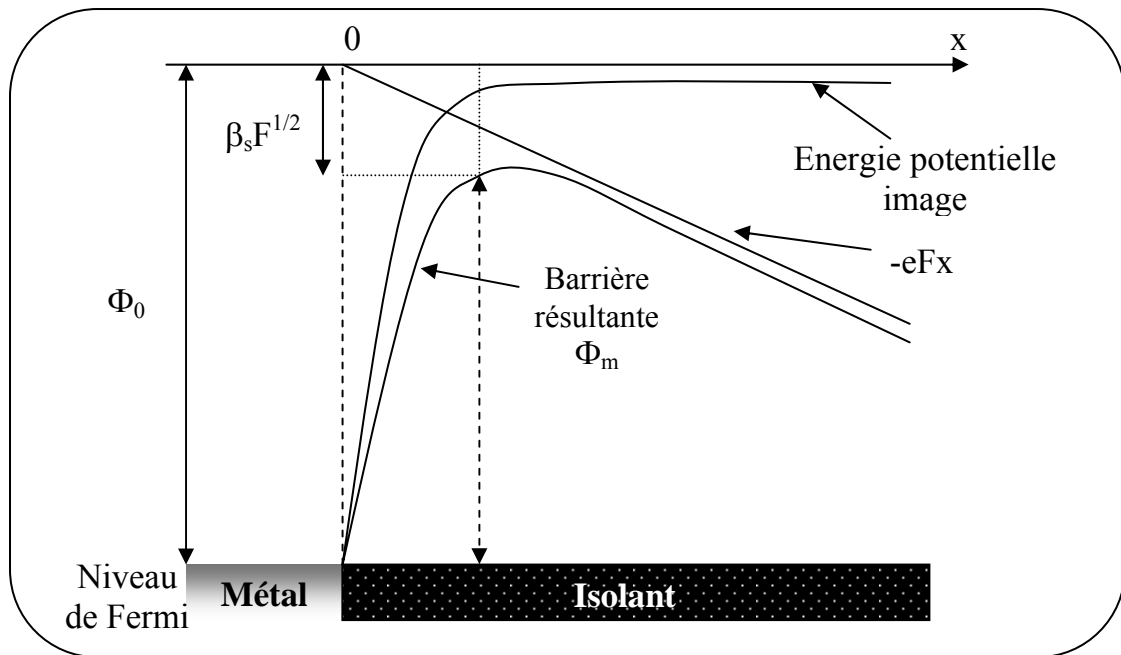
$2x$  représente donc la distance entre l'électron et son image dans le métal.

On suppose dans ce qui suit que tous les porteurs injectés dans l'isolant sont évacués.

L'énergie potentielle de cet électron est donnée par :

$$\Phi(x) = \Phi_0 - \frac{e^2}{16\pi\epsilon x} \quad (2)$$

où  $\Phi_0$  représente la hauteur de barrière en absence de champs.



**Figure I.1 :** Abaissement de la barrière de potentiel par effet de Schottky

Lorsqu'on applique un champ électrique  $\vec{F}$  constant, cette expression devient :

$$\Phi(x) = \Phi_0 - \frac{e^2}{16\pi\epsilon x} - eFx \quad (3)$$

L'énergie potentielle possède un maximum  $\Phi_m$  en un point  $x_m$  donné par :

$$x_m = \left| \frac{e}{16\pi\epsilon F} \right|^{1/2} \quad \text{on a} \quad \Phi_m = \Phi_0 - 2eFx \quad (4)$$

$$\Phi_m = \Phi_0 - \beta_s F^{1/2} \quad \text{avec} \quad \beta_s = \left( \frac{e^3}{4\pi\epsilon} \right)^{1/2}$$

$\beta_s$ : représente le coefficient de Schottky.

La barrière de potentiel est abaissée de  $\Delta\Phi = \beta_s F^{1/2}$

Les électrons ainsi émis par l'électrode métallique se retrouvent dans la bande de conduction du diélectrique, ce qui induit un courant électrique. Notons qu'à une température  $T$  égale au zéro absolu, aucun électron ne peut franchir la barrière ; toutefois, lorsque la température est différente de zéro, l'énergie thermique permet à

certains électrons de passer par-dessus la barrière ; c'est l'émission thermoélectronique. D'où, la densité de courant donnée par :

$$J = AT^2 \exp\left(\frac{-\Phi_0}{kT}\right) \text{ en absence de champ.} \quad (5)$$

En présence de champ, la densité de courant devient :

$$J = AT^2 \exp\left(\frac{-\left(\Phi_0 - \beta_s F^{1/2}\right)}{kT}\right) \quad (6)$$

Avec  $A = \frac{4\pi m^* e k^2}{h^3}$ , constante de Richardson  $A=12.10^5 \text{A/m}^2\text{K}^2$ .

Ce modèle ne donne pas lieu à un régime transitoire ou à des pertes diélectriques.

### I.1.b. Effet Fowler-Nordheim

Cet effet est dû au passage des porteurs dans l'isolant par effet tunnel. Les porteurs qui passent à travers la barrière, possèdent une énergie inférieure à la hauteur de cette barrière. Ce type de conduction est présent essentiellement pour des champs très intenses et à basse température. Notons également qu'un électron traverse plus facilement la barrière de potentiel si celle-ci est d'autant plus mince ; la longueur d'onde de l'électron doit être supérieure à la largeur de la barrière.

Par ailleurs, lorsque le matériau est dénué de pièges, le régime transitoire ne peut exister et le nombre de porteurs traversant la barrière par unité de temps, ne dépend que de la forme de celle-ci et du nombre de places disponibles (pour les électrons dans la bande de conduction ou, pour les trous dans la bande de valence); ainsi Fowler et Nordheim [2] ont étudié l'injection par cet effet d'un électron d'une électrode plane dans le vide à 0°K, en négligeant le champ image, on obtient l'expression de la densité de courant comme suit (figure I.2) :

$$J(0) = \frac{e^3 F^2}{8\pi h \Phi_0} \exp\left(-\frac{8}{3} \frac{\pi}{e} \frac{\sqrt{2m^*}}{hF} \Phi_0^{3/2}\right) \quad (7)$$

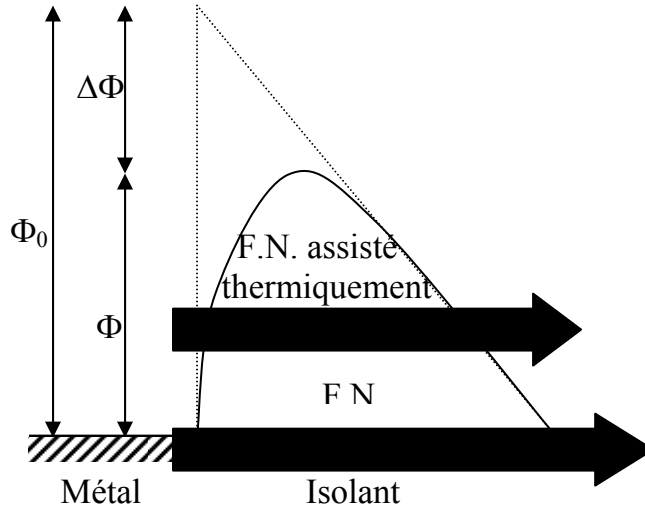
et en posant 
$$\beta_{FN} = + \frac{8}{3} \frac{\pi}{e} \frac{\sqrt{2m^*}}{h} \Phi_0^{3/2}$$

Tel que  $\beta_{FN}$  est la constante de Fowler-Nordheim, on a :

$$J(0) = AF^2 \exp\left(\frac{-\beta_{FN}}{F}\right) \quad (8)$$

Si l'on tient compte de la force image et de la permittivité du diélectrique, et en introduisant la masse effective de l'électron  $m^*$ , on obtient (figure I.2) l'expression donnée par Good et Muller [1] qui est :

$$J(0) = \frac{e^3 m F}{8\pi h \Phi_0 m^*} \frac{1}{f^2\left(\frac{\Delta\Phi}{\Phi_0}\right)} \exp\left(-\frac{8}{3} \frac{\pi}{e} \frac{\sqrt{2m^*}}{hF} \Phi_0^{3/2} g\left(\frac{\Delta\Phi}{\Phi_0}\right)\right) \quad (9)$$



**Figure I-2** : Effet Fowler-Nordheim sans pièges

Tel que  $f$  et  $g$  sont les fonctions spéciales utilisées par Good et Muller [1] et  $\Delta\Phi$  l'abaissement de la barrière de potentiel.

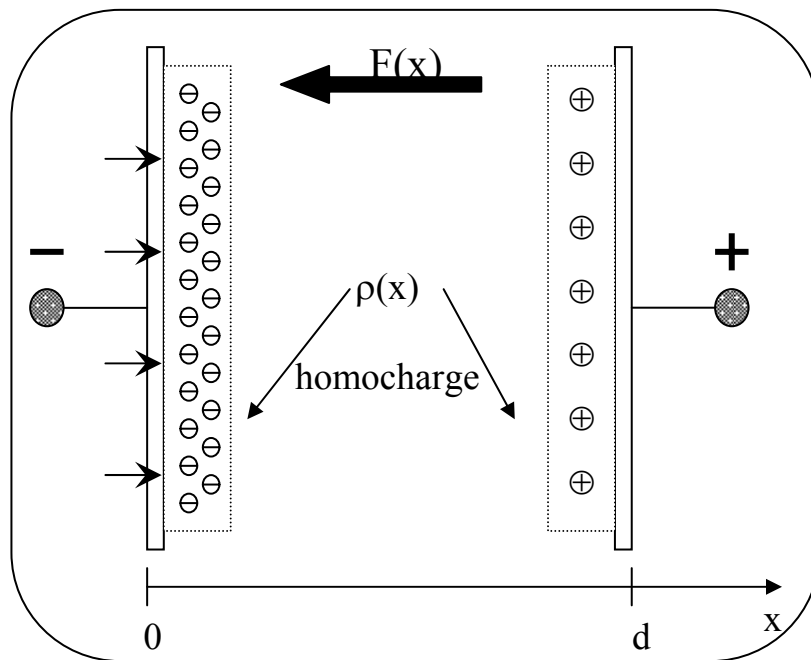
Cependant, pour des températures plus élevées, les électrons possédant donc des énergies supérieures au niveau de Fermi, leurs probabilités de passage par effet tunnel deviennent plus importantes, il en résulte une densité de courant plus grande. Ainsi :

$$J(T) = J(0) \frac{\pi k T d_1}{\sin(\pi k T d_1)} \quad \text{où} \quad d_1 = \frac{heF}{4\pi\sqrt{2m^*}\phi_0} \cdot \frac{1}{g\left(\frac{\Delta\phi}{\phi_0}\right)} \quad (10)$$

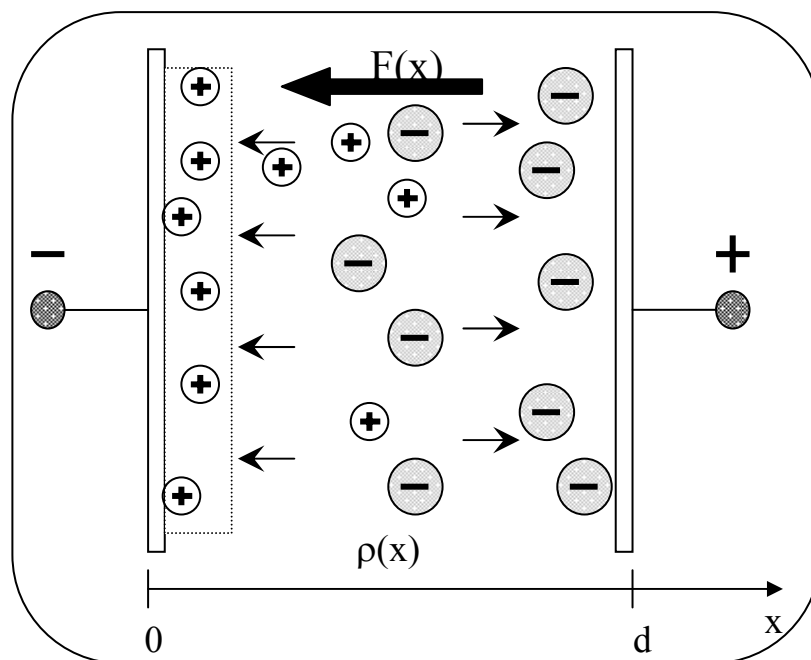
## **I.2. Courants régis par le volume**

### **I.2.a. Courant limité par la charge d'espace**

Si nous nous plaçons dans le cas idéal d'un matériau isolant ne contenant pas de charges libres et que nous lui appliquions une différence de potentiel  $V$  constante, un champ électrique uniforme apparaît à ses bornes. Or, dans la réalité, le matériau peut contenir des porteurs de charges qui peuvent être des impuretés ou issus de dissociations ioniques sous l'action d'un champ électrique. Le phénomène d'injection de charge au niveau d'une interface métal-isolant pourrait être similaire à l'injection à partir d'une cathode thermoïonique dans le vide. Ceci n'est pas le cas; car dans la bande de conduction de l'isolant, le flux d'électrons est régi par les différentes collisions avec les vibrations du réseau (phonon) et avec les impuretés contenues dans le matériau, ce qui marque la différence entre le comportement du flux d'électrons dans le vide et dans un matériau solide isolant. Lorsqu'on est en présence d'une émission à l'interface métal-isolant supérieure à l'écoulement des charges dans le diélectrique, les charges émises peuvent être capturées par les impuretés et défauts présents dans le volume de l'isolant, et feront apparaître une accumulation de charges aux voisinages des électrodes ayant le même signe que l'électrode adjacente, il s'agit d'homocharges (figure I.3.a); la présence de ces dernières fera abaisser la valeur du champ aux voisinages des électrodes injectantes.



**Figure I.3.a :** Répartition des charges dans le matériau dans le cas des homocharges



**Figure I.3.b:** Répartition des charges dans le matériau dans le cas des hétérocharges

Cependant, lorsqu'on applique un champ électrique de faible valeur tels que  $v/d$  soit inférieure à 10 kV/cm des porteurs de charges d'origine interne peuvent se déplacer sous l'effet de ce champ, elles peuvent être issues d'une dissociation ionique ou d'impuretés, les porteurs vont s'accumuler au niveau des électrodes de sorte que le champ au contact est supérieur au champ dans le volume de l'échantillon, formant ainsi une charge d'espace de signe opposé à l'électrode injectante; se sont des *hétérocharges* (figure I.3.b).

Tous ces processus détruisent la neutralité électrique, et le champ électrique en un point donné du diélectrique n'est plus égal au champ moyen appliqué. Ainsi, dans la zone limitée par la charge d'espace, l'équation de poisson à une dimension est :

$$\frac{dF(x)}{dx} = \frac{\rho(x)}{\varepsilon} = \frac{e}{\varepsilon} (n(x,t) - n_0 + n_t(x,t) - n_{t0}) \quad (11)$$

$n(x,t)$  et  $n_t(x,t)$  représentent respectivement les concentrations des électrons libres et piégés en un point d'abscisse  $x$  à un instant  $t$  donné,  $n_0$  et  $n_{t0}$  sont les concentrations initiales à l'équilibre thermodynamique correspondant, supposées uniformes dans le volume du diélectrique.

L'équation de la densité de courant local est donnée par :

$$J(x,t) = e\mu n(x,t)F(x,t) - D \frac{\partial \rho(x,t)}{\partial x} + \varepsilon \frac{\partial F(x,t)}{\partial t} \quad (12)$$

L'équation de continuité s'écrit comme suit :

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

Par souci de simplicité, nous n'avons considéré qu'un seul type de porteur, l'équation donnant l'autre type de porteur étant identique à un signe près.

La résolution de ces équations nécessite la connaissance des conditions aux limites ainsi que quelques approximations; par exemple, on considère que le courant de diffusion est négligeable devant le courant de conduction, ceci reste valable tant que l'épaisseur du film est supérieure aux dimensions moléculaires [3]. On suppose que la permittivité n'est pas affectée par la présence des charges injectées et que la mobilité de ces dernières est uniforme et indépendante du champ local.

On se placera également dans le cas du régime permanent. Les équations précédentes deviennent :

$$\begin{cases} \frac{dF(x)}{dx} = \frac{\rho(x)}{\varepsilon} \\ J(x) = en(x) \mu F(x) \\ \frac{dJ}{dx} = 0 \end{cases} \quad (14)$$

Quant aux conditions aux limites, elles se traduisent par la condition de polarisation qui s'écrit :

$$\int_0^d F(x) dx = V \quad (15)$$

La résolution de ces équations nous conduit à l'évaluation du courant en fonction du temps pour le régime transitoire, alors que l'étude du régime permanent mène à l'expression du courant électrique en fonction du champ électrique.

Nous étudierons le régime permanent dans le cas d'une injection unipolaire avec contact ohmique, bien qu'en réalité le cas de la double injection rend mieux compte des différentes possibilités pouvant intervenir dans ce modèle de conduction. Cette hypothèse signifie que le nombre de porteurs disponibles aux électrodes est infini. On se placera dans le cas des conditions aux limites énoncées plus haut et se traduisant par les équations (14). Les caractéristiques typiques des courants limités par la charge d'espace sont schématisées sur la figure (I.4), ainsi différents cas s'offrent à nous :

\* Cas d'un isolant sans piège.

Dans ce cas, la concentration de porteurs piégés est nulle  $n_t = 0$ , l'équation (11) devient :

$$\frac{\partial F(x)}{\partial x} = \frac{e}{\varepsilon} (n - n_0) = \frac{e}{\varepsilon} n_i \quad (16)$$

Tel que  $n_i = n - n_0$  est la concentration d'électrons libres injectés en régime permanent.

Pour un champ faible, l'injection est nulle  $n - n_0 \approx 0$

$$\text{d'après l'équation (14) : } J = e\mu n_0 \frac{V}{d} \quad (17)$$

A champ fort,  $n - n_0 \gg n_0$  dans ce cas, il y aura formation d'une charge d'espace et l'expression résultante après des simplifications appropriées est :

$$J = e\mu n F \quad (18)$$

J devient alors :

$$J = \frac{\mu}{2} \varepsilon \frac{dF^2}{dx} \quad (19)$$

En intégrant (19), il résultera que :

$$J = \frac{\varepsilon\mu}{2(x + x_0)} F^2 \quad (20)$$

Où  $x_0$  est la constante d'intégration, elle définit le nombre d'électrons libres à la cathode. En réalité,  $x_0$  caractérise le niveau d'injection suivant sa valeur par rapport à la largeur  $d$ .

Par ailleurs, en utilisant l'équation (15) nous obtenons :

$$V = \int_0^d \left( \frac{2J(x+x_0)}{\varepsilon\mu} \right)^{\frac{1}{2}} dx \quad (21)$$

$$V = \left( \frac{2J}{\varepsilon\mu} \right)^{\frac{1}{2}} \frac{2}{3} \left( (d+x_0)^{\frac{3}{2}} - x_0^{\frac{3}{2}} \right) \quad (22)$$

$$V^2 = \frac{8J}{9\varepsilon\mu} \left( (d+x_0)^{\frac{3}{2}} - x_0^{\frac{3}{2}} \right)^2 \quad (23)$$

d'où

$$J = \frac{9\varepsilon\mu}{8} V^2 \frac{1}{\left( (d+x_0)^{\frac{3}{2}} - x_0^{\frac{3}{2}} \right)^2} \quad (24)$$

Ainsi, à partir de cette dernière équation, Toureille [4] a considéré 3 cas possibles :

1)  $x_0 = 0$  caractérisant le contact homogène, dans ce cas :

$$J = \frac{9\varepsilon}{8} \frac{\mu V^2}{d^3} \quad (25)$$

2)  $x_0 = \infty$  contact bloquant, ce cas donne :

$$J = \frac{1}{2} \varepsilon\mu \frac{V^2}{dx_0^2} \quad (26)$$

3)  $x_0 \sim d$  : l'équation (24) est conservée.

#### \* Cas d'un isolant contenant des pièges

Dans ce cas,  $n_t \neq 0$  ainsi l'équation de poisson devient :

$$\frac{\partial F}{\partial x} = \frac{e(n-n_0)}{\varepsilon} + \frac{e(n_t-n_{t0})}{\varepsilon} \quad (27)$$

Si on considère le cas d'un champ faible c'est à dire  $n_t - n_{t0} \ll n_{t0}$  et  $n - n_0 \ll n_0$ , on obtient la même expression que celle donnée dans le cas de l'isolant sans pièges, à savoir l'équation (17).

Pour un champ fort où on a  $n_t - n_{t0} \gg n_{t0}$  et  $n - n_0 \gg n_0$ , l'équation de poisson donne :

$$\frac{\partial F}{\partial x} = \frac{en}{\varepsilon} + \frac{en_t}{\varepsilon} \quad (28)$$

Or, d'après (16), l'équation du courant est :

$$J(x) = e\mu n(x)F(x) \quad (29)$$

En combinant (28) et (29) on obtient

$$\frac{\partial F}{\partial x} = \frac{J}{\varepsilon\mu F} \left( 1 + \frac{n_t}{n} \right) \quad (30)$$

Dans le cas où  $n_t \gg n$  :

$$\frac{\partial F}{\partial x} = \frac{J}{\varepsilon\mu F} \frac{n_t}{n} \quad (31)$$

Cette dernière relation varie selon la nature du piège. Ainsi, en intégrant

$$J = \frac{9}{8} \varepsilon\mu\theta \frac{V^2}{d^3} \quad \text{avec} \quad \theta = \frac{n}{n_t} \quad (32)$$

Cette relation a été proposée par Rose [5] qui distingue 3 cas suivant la distribution de pièges :

a) un seul niveau de piège ( $N_t, E_t$ )

$$\theta = \frac{N_c}{N_t} \exp\left(-\frac{\Phi}{kT}\right) \quad (33)$$

alors

$$J = \frac{9}{8} \varepsilon\mu\theta \frac{V^2}{d^3} \quad (34)$$

b) distribution uniforme de pièges donnée par :

$$\rho = \frac{Nt}{E_2 - E_1}, \quad \theta = \frac{ed^2 N_c}{\varepsilon s V} \exp\left(-\frac{E_1}{kT}\right) \exp\left(\frac{\alpha V}{kT}\right) \quad \text{où} \quad \alpha = \frac{\varepsilon s}{e\rho d^2} \quad (35)$$

où  $N_t$  représente le nombre total de pièges par unité de volume

alors  $J = \text{cste } V \exp(\alpha V)$

c) distribution exponentielle de pièges

Dans le cas d'une distribution croissante, traité par Muller [6], on a :

$$\rho(E) = \frac{N_t}{kT_c} \exp\left(\frac{E}{kT_c}\right) \quad (36)$$

Le cas d'une distribution décroissante donnée par :

$$\rho(E) = \frac{N_t}{kT_c} \exp\left(\frac{-E}{kT_c}\right) \quad (37)$$

où  $T_c$  caractérise le profil de la distribution autour du niveau de Fermi.

et  $E$  l'énergie du piège comptée à partir du bas de la bande de conduction. Dans ce cas :

$$\theta = \frac{ed^2}{\epsilon s} \frac{CT_c}{eN_t T} V^{\frac{T_c}{T}-1} \quad (38)$$

$$\text{Où } \frac{CT_c}{eN_t T} = \frac{\epsilon s}{eN_t d} \frac{T_c}{T}$$

La distribution la plus utilisée dans l'étude des polymères est la distribution en exponentielle décroissante. Dans ce cas,

$$J = e\mu N_c \left(\frac{\epsilon l}{eN_t l}\right)^l \left(\frac{2l+1}{l+1}\right)^{l+1} \frac{V^{l+1}}{d_{2l+1}} \quad (39)$$

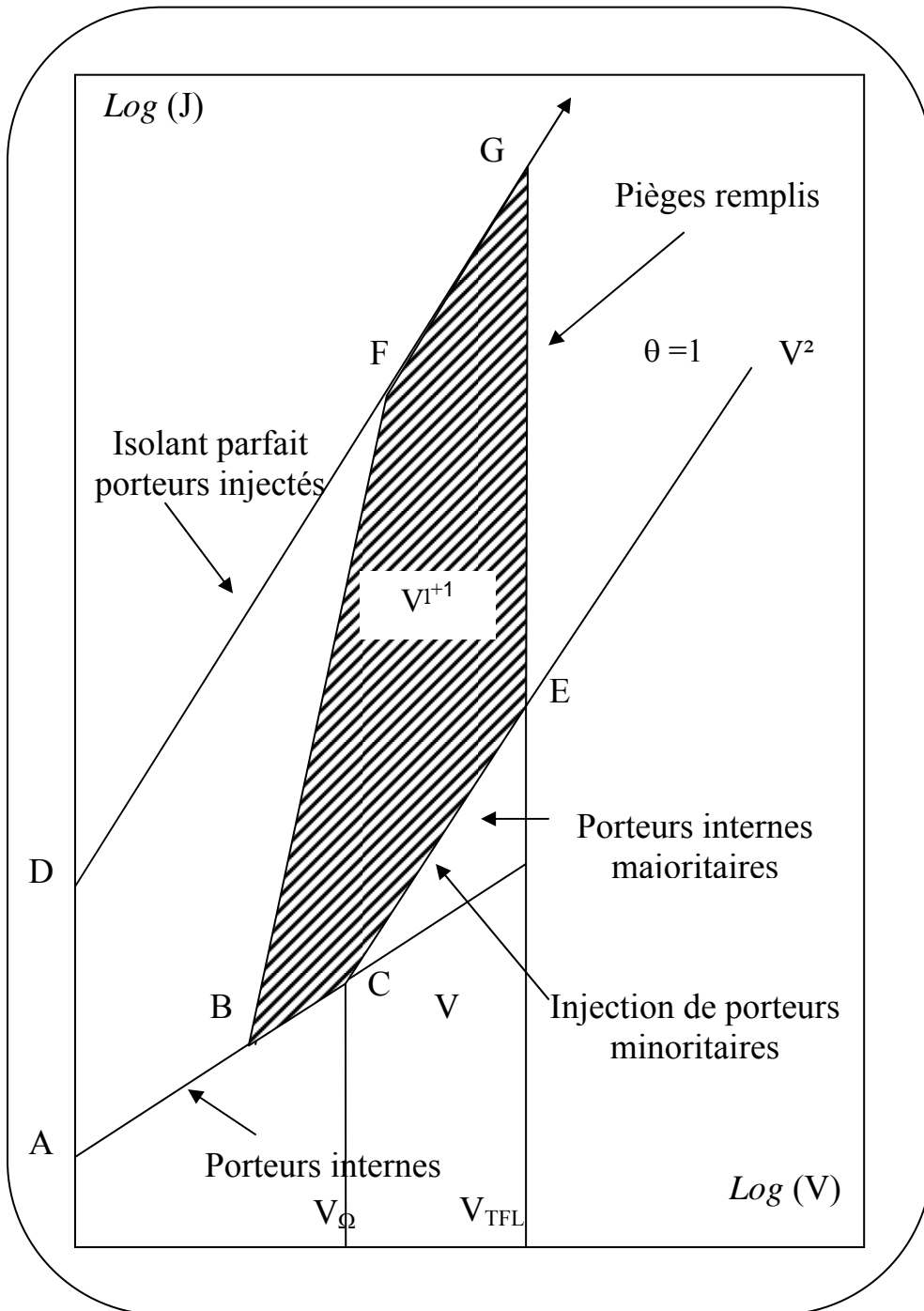
où  $l=T_c/T$

Ce type de distribution a été étudié et revu par divers auteurs tels que Tourelle [4] et Goldewski [7].

Dans la figure I.4, les portions de la caractéristique courant-tension traduisent les différents cas cités.

DG : représente le comportement d'un isolant parfait (sans porteurs internes) et ne contenant pas de pièges. Le courant est attribué aux porteurs injectés (équation (25)).

AC : isolant sans piège avec une injection nulle  $n - n_0 < 0$ , dans ce cas la densité de courant est donnée en (17).



**Figure I.4. :** Caractéristiques courant-tension des courants limités par la charge d'espace

CE : isolant sans pièges avec une forte injection  $n-n_0 \gg 0$ , le passage du régime ohmique au régime quadratique se passe au niveau de la tension  $v_\Omega$  tels que

$V_\Omega = \frac{8ed^2n_0}{9\varepsilon}$ . La densité de courant est donnée par l'équation (25).

AC : isolant avec pièges, pour des champs à faibles intensités, les porteurs internes sont majoritaires par rapport aux charges injectées, (équation (17)).

CE : pour des champs forts, les charges injectées dans l'isolant contenant des pièges sont majoritaires et la densité de courant à la forme (32)

$\theta$  : Représente le rapport entre les porteurs libres et piégés. A partir de la tension  $V_{TFL}$ , où tous les pièges sont remplis ( $\theta = 1$ ) et le courant augmente brutalement (EG).

Pour cette distribution la densité de courant suivra le parcours BF après un régime ohmique (AB) (équation (39)).

Pour des isolants amorphes, Lampert [8] suppose une distribution continue pouvant s'étaler jusqu'à la bande de conduction qui pourrait être de nature gaussienne [9].

Aux champs électriques élevés, la caractéristique reprend une forme quadratique (FG)

Ainsi:  $\rho = eN_\tau$ , où  $N_\tau$  représente la densité de piège au niveau énergétique  $E_\tau$ .

Ainsi le champ  $F(x)$  à la profondeur  $x$  de l'échantillon est donné par

$$F(x) = \frac{eN_\tau x}{\varepsilon} \quad \text{de sorte que} \quad V_{TFL} = \int_0^d F(x) dx = \frac{eN_\tau d^2}{2\varepsilon}. \quad (40)$$

### I.2.b. Modèle de conduction par saut (Hopping)

Le modèle de conduction par saut "Hopping" repose sur un processus de transport entre états localisés ; il ne s'applique qu'aux matériaux ayant une structure désordonnée.

En effet, dans ces derniers, les états localisés ont une influence prépondérante sur le mécanisme de transport des porteurs légers (électron ou trou). Tout se passe dans les queues de bande qui séparent la bande de conduction de la bande interdite des matériaux amorphes traduisant ainsi l'existence d'une densité d'état. Aussi, ce

mécanisme de conduction ne se manifeste que lorsque le nombre de porteurs situés dans la bande de conduction ou susceptibles d'y être amenés est très faible.

Un transport d'électrons (ou de trous) peut se produire entre états localisés dans la bande interdite au voisinage du niveau de Fermi.

Le porteur se déplace d'un site à un autre par saut assisté par phonon. Le saut entre deux sites est lié à la probabilité de transition d'un porteur d'un site à un autre, qui dépend directement du recouvrement des orbitales relatives à chacun des sites.

Ainsi, la probabilité par unité de temps de saut d'un ion positif vers un site voisin vacant dans la direction du champ électrique est :

$$p_{s^+} = p_0 p(\lambda) \exp\left(-\frac{\Delta E - \frac{1}{2} qF \lambda}{kT}\right) \quad (41)$$

et dans le sens opposé :

$$p_{s^-} = p_0 p(\lambda) \exp\left(-\frac{\Delta E + \frac{1}{2} qF \lambda}{kT}\right) \quad (42)$$

$\Delta E$  représente la différence d'énergie moyenne entre deux sites.  $p(\lambda)$  est un facteur dépendant du recouvrement des fonctions d'onde associées aux porteurs, dans les états correspondants aux deux sites.

Il est donné comme suit :  $p(\lambda) = \exp(-2 \alpha \lambda)$  pour  $\lambda$  grande.

$\alpha$  exprime la décroissance de la fonction d'onde.

Par ailleurs, il a été montré que  $p(\lambda)$  s'approche de l'unité si le recouvrement devient important.

Aussi, l'expression de la densité de courant est :

$$J = ne \mu_{hopp} F = A \exp\left(-2\alpha\lambda - \frac{\Delta E}{kT}\right) sh\left(\frac{eF \lambda}{2kT}\right) \quad (43)$$

$$\text{Avec : } A = \frac{1}{3} n \frac{q^2 \lambda^2}{KT} F v$$

$\mu_{hopp}$  mobilité de Hopping

$\nu$  fréquence de vibration du phonon

pour des champs faibles, un développement aux limites au premier ordre donne :

$$J = \frac{2q\lambda}{3} n\nu \left( \frac{qF\lambda}{2kT} \right)^2 \exp \left( -2\alpha\lambda - \frac{\Delta E}{kT} \right) \quad (44)$$

La théorie de Mott [10] étudie le modèle, en particulier si la densité d'états localisés près du niveau de Fermi est élevée où l'énergie des porteurs est voisine de  $kT$  et la probabilité du saut  $y$  est appréciable. En fait, la théorie de Mott consiste à considérer une sphère de rayon  $\lambda$  dans laquelle la répartition des sites en énergie est uniforme, puis limiter la probabilité de saut dans cette même sphère ; dans ce cas, la conductivité s'exprime comme :

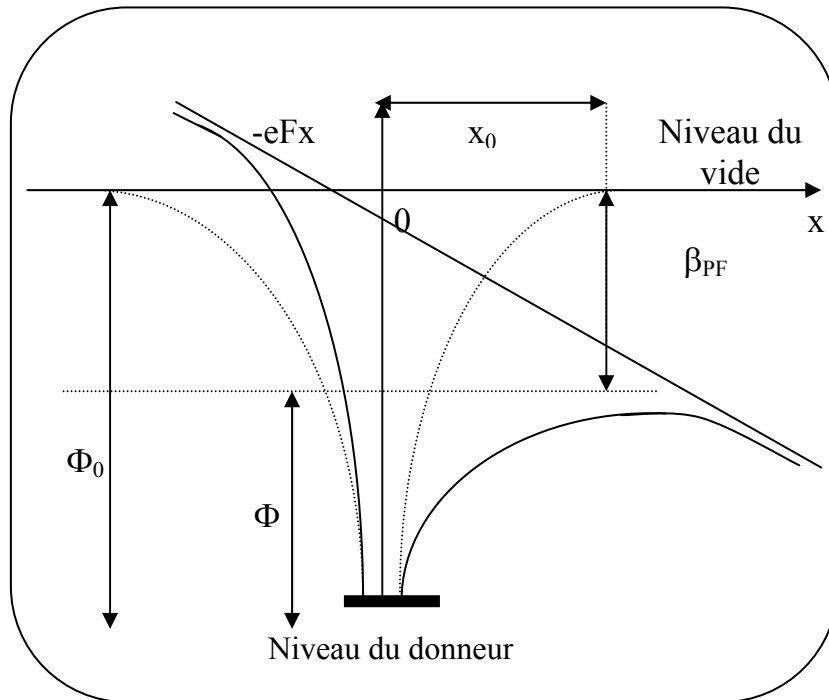
$$\delta(T) = \delta_0 \exp \left( - \left( \frac{T_1}{T} \right)^{1/4} \right) \quad (45)$$

Dans ce modèle, la mobilité apparente des porteurs tend à augmenter.

Plusieurs auteurs ont proposé divers modèles pouvant justifier les résultats expérimentaux obtenus par ce type de conduction.

Ainsi, le modèle de Miller et Abrahams [11] suppose que les sauts ne se font qu'entre plus proches voisins, il modélise la structure interne du diélectrique en un réseau d'impédance. D'autres auteurs, supposent l'existence d'un chemin de courant liant les deux faces du solide ; la théorie qui traduit ce modèle porte le nom de théorie de percolation.

### I.2.c. Modèle de Poole-Frenkel



**Figure I.5.** : L'effet Poole- Frenkel

Le mécanisme élaboré à partir de ce modèle de Poole-Frenkel, est de nature similaire à celui de l'effet Schottky, celui-ci suppose l'existence d'un certain nombre de sites, capables de piéger les porteurs puis de les réémettre dans la bande de conduction (figure (1.5)).

Dans le cas où le porteur est ré émis dans un piège voisin, on parlera de l'effet Poole. Notons que ce dernier ne se réalise que pour des distances entre sites assez faibles. Afin de réaliser ces mécanismes, les porteurs doivent vaincre le potentiel coulombien du piège qui les ramène vers le site d'origine.

Toutefois, l'application d'un champ électrique abaisse la barrière de potentiel que doit franchir le porteur, afin de se trouver dans la bande de conduction ou dans un autre piège, si les sites sont suffisamment rapprochés.

Ainsi, l'expression du potentiel d'un porteur devant vaincre le potentiel coulombien d'un piège sous l'action d'un champ, et en considérant le cas des contacts ohmiques, est donné par :

$$\Phi(x) = \Phi_0 + \frac{-e^2}{4\pi\epsilon x} - eFx \quad (46)$$

Le maximum de cette barrière est atteint en :

$$x_0 = \sqrt{\frac{e}{4\pi\epsilon F}} \quad (47)$$

La barrière de potentiel sous l'effet d'un champ est abaissée de  $\Delta\phi = \beta_{PF} F^{1/2}$

$\beta_{PF}$  est appelée coefficient de Poole-Frenkel tel que  $\beta_{PF} = \sqrt{\frac{e^3}{\pi\epsilon}}$

Cette barrière vaut donc  $\phi(x_0) = \phi_0 - \beta_{PF} F^{1/2}$

En supposant que la conduction est limitée par effet Poole-Frenkel, due à des pièges donneurs, celle ci ne peut s'établir que par le biais d'électrons ayant franchi la barrière abaissée de  $\phi_0 - \Delta\phi$ , la densité de ces électrons est donnée par :

$$n_0 = (N_c N_t)^{1/2} \exp\left(-\frac{\Phi_0 - \Delta\phi}{kT}\right) \quad (49)$$

tels que  $N_c$  représente la densité d'état dans la bande de conduction et  $N_t$  la densité de pièges.

On outre, l'expression du courant est donnée par :

$$J = e\mu nF \quad (50)$$

D'où le courant de Poole-Frenkel :

$$J_{PF} = e\mu F \sqrt{N_c N_t} \exp\left(-\frac{\Phi_0 - B_{PF} \sqrt{F}}{kT}\right)$$

On remarque que l'expression de la densité de courant donnée par Poole-Frenkel est semblable à celle obtenue dans l'effet Schottky, à ceci près que  $\beta_{PF}$  est le double de  $\beta_S$ . En effet, on voit apparaître un facteur « 2 » qui provient de l'approximation établie sur la densité des pièges et donc, sur la position du niveau de Fermi. Cette différence entre  $\beta_{PF}$  et  $\beta_S$  suscita plusieurs recherches par divers auteurs parmi lesquels on cite : Seki [12], Simmons [13] Mark et Hartman [14], Yeorgan et

Taylor [15]. Ces derniers, ont montré que  $\beta_{PF} = \alpha \beta_S$  avec  $1 < \alpha < 2$ , où  $\alpha$  est un facteur qui dépend de la position du niveau de Fermi par rapport au centre piège considéré.

Frenkel [16] étudia le cas  $\alpha = 1$ , où le niveau de Fermi est à mi-chemin entre le piège et la bande de conduction. Le deuxième cas extrême se présente pour  $\alpha = 2$ , il correspond à un diélectrique contenant des pièges compensés par des centres accepteurs profonds.

Cependant, l'étude des lois expérimentales permettant de déterminer la permittivité électrique, a contraint certains chercheurs à reconsidérer l'expression donnée par J en se basant sur les résultats déduits du tracé de  $\log(J)$  en fonction de  $F^{1/2}$ .

En effet, les valeurs de la permittivité électrique obtenues à partir de cette courbe ne traduisent pas les modèles théoriques établis, afin d'affiner l'expression précédente, plusieurs auteurs se sont penchés sur divers facteurs pouvant intervenir sur J et qui ont été omis auparavant. Ainsi, certains ont pris en considération la direction d'émission des porteurs par rapport à celle du champ, d'autres tiennent compte de l'abaissement de la barrière de potentiel d'un piège supposé de type coulombien, ou bien encore, comme l'a traité Hill [17], qui propose un modèle de calcul de densité de courant permanent, en se basant sur la connaissance de la vitesse des porteurs au moment de l'émission dans la direction du champ. Tout cela a été détaillé dans la thèse de doctorat de Saidi [18]. Toutefois, l'expression qui reste la plus satisfaisante en ce qui concerne les résultats expérimentaux a été celle obtenue par Taylor [19]; ces derniers ont considéré le potentiel du centre ionisé du type  $\Phi(x) = kenx^{-n}$   $n \neq 1$ , cela

a permis à Lewis d'en déduire que J est proportionnel à  $\exp\left(\frac{B(n, k) F^{\frac{n}{n+1}}}{kT}\right)$ . (52)

Pour ce qui concerne l'effet Poole, celui ci ne se manifeste que lorsque la distance a entre deux sites est assez faible inférieure à  $15 \text{ \AA}$ , dans ce cas J n'est plus proportionnel à  $F^{\frac{1}{2}}$ ,  $j_p \approx F \exp\left(\frac{qFa}{2kT}\right)$  pour des champs moyens et forts.

### I.2.d. Modèle de conduction ionique

Il existe dans les diélectriques une conduction ionique, celle-ci est assurée par le transport des ions dans le diélectrique.

La conduction ionique dans un cristal a été étudiée par divers auteurs tels que O'Dwyer [20]. Dans les matériaux non ioniques, la conduction est due aux impuretés. On considère l'ion comme une charge qui se déplace sous l'effet du champ électrique, dans un système de puits de potentiel d'égale profondeur  $\Phi_0$  distant de  $a$  et répartis uniformément (Figure(I.6)). D'après la théorie développée par Lamb [21], Dignam [22] et Bean [23], la probabilité de saut du porteur de charge par unité de temps est :

$$p_+ = \nu \exp\left(-\frac{\phi_0 - \frac{eFa}{2}}{kT}\right) \text{ dans le sens du champ électrique.} \quad (53)$$

et

$$p_- = \nu \exp\left(-\frac{\phi_0 + \frac{eFa}{2}}{kT}\right) \text{ dans le sens inverse du champ électrique.} \quad (54)$$

D'autre part, on sait que la densité de courant est définie par :  $J = nqv_d$

Avec  $v_d = a(p_+ - p_-)$  représentant la vitesse moyenne des ions.

L'expression de la densité de courant qui en résulte est donnée par :

$$J = 2neav \exp\left(\frac{-\Phi_0}{kT}\right) \text{sh}\left(\frac{eaF}{2kT}\right) \quad (55)$$

Avec  $n$  : concentration des porteurs de charge

$e$  : charge élémentaire

$a$  : distance entre deux sites

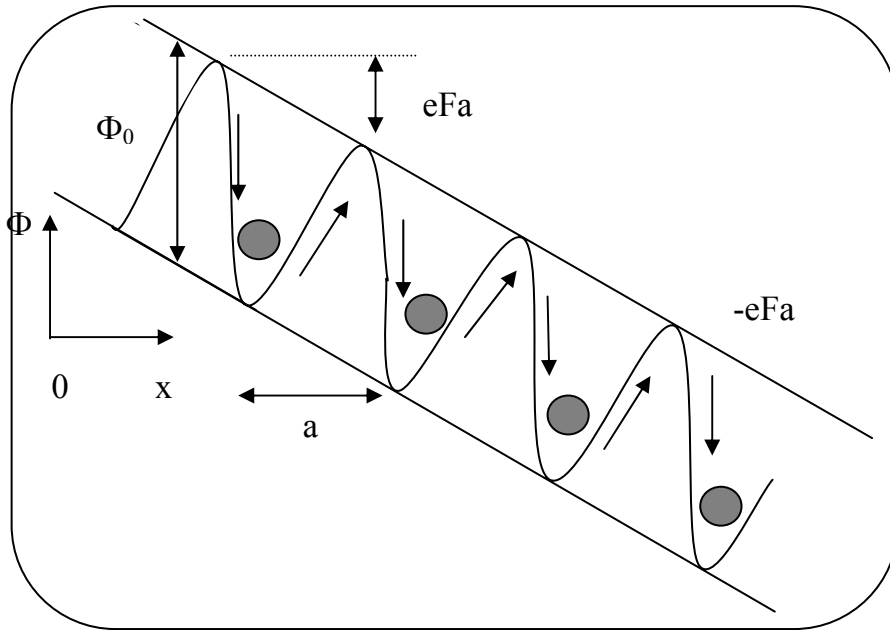
$\nu$  : fréquence de vibration de l'ion

$\Phi_0$  : hauteur de la barrière en champ nul.

$k$  : constante de Boltzmann

$T$  : température absolue

$F$  : intensité du champ électrique



**Figure I.6. :** Conduction ionique

Selon les modèles établis par Vollmann et Adachi [18], des solutions numériques ont été proposées, celles ci dépendent à la fois de la distance intersite  $a$  et du champ appliqué  $F$ .

Toutefois, ce résultat ne peut s'appliquer rigoureusement aux matériaux dont la structure est désordonnée, car dans ce cas  $\Phi_0$  et  $a$ , sont toutes les deux fonction de la position ; il apparaîtra alors une charge d'espace dans certaines zones et la formule précédente ne peut plus s'utiliser dans ce cas.

Dans la théorie qui précède, nous avons considéré l'ion comme étant une charge ponctuelle; en d'autres termes, le volume propre qui lui est associé n'a pas été pris en compte. Or, l'ion possède un volume propre ; aussi, Miamoto [24] a élaboré un modèle de transport ionique fondé sur la notion de volume libre. Cette théorie stipule qu'un courant ionique résulte d'un déplacement des ions sous l'effet du champ électrique d'une position d'équilibre à une autre dans le volume libre, et ceci à partir d'un mouvement des molécules avoisinant l'ion qui prennent une configuration favorable à son déplacement. La redistribution du volume libre ne peut avoir lieu qu'à partir d'une température critique pour laquelle la configuration des molécules donnerait lieu à un volume libre critique, le courant qui en résulte a pour expression :

$$J = 2 n e a v \alpha sh \left( \frac{eaF}{2kT} \right) \exp \left( \frac{-\gamma V_i}{V_f} - \frac{E_j + \frac{W}{2\varepsilon}}{kT} \right) \quad (56)$$

- où
- $\alpha$  : facteur de corrélation compris entre 0 et 1
  - $\gamma$  : facteur de correction du recouvrement du volume libre.
  - $V_i$  : volume critique requis pour le transport des ions.
  - $V_f$  : volume libre
  - $E_j$  : hauteur de la barrière de potentiel
  - $W$  : énergie de dissociation ionique
  - $\varepsilon$  : constante diélectrique
  - $a$  : distance de saut entre deux positions d'équilibre

Il apparaît que la modification du volume libre provoque une large variation de  $\sigma$ . Cette observation nous permet de différencier expérimentalement la conduction ionique d'une conduction électronique.

## II. PHENOMENES TRANSITOIRES

### II.1. Phénoménologie

Les courants transitoires dans les polymères sont dus à plusieurs processus. Wintle [25] en a cité quatre : la relaxation dipolaire, l'effet tunnel à partir d'une électrode, l'injection des porteurs conduisant à une charge d'espace piégée et enfin la polarisation aux électrodes.

les phénomènes dipolaire ont fait l'objet des toutes premières études sur les diélectriques. En fait, la difficulté réside dans les limites de validité des modèles théoriques.

L'approximation de Debye suppose un seul type de relaxation. Elle conduit à un courant dipolaire de la forme :  $J = J_0 e^{-\frac{t}{\tau}}$  (57)

Toutefois, cette loi ne rend pas bien compte des résultats expérimentaux dans les polymères ou les céramiques.

## II.2. Modèle de DEBYE et ses limites

Le modèle de Debye [26] considère un matériau constitué de N dipôles identiques de moment  $\Gamma$  et indépendants tel que la permittivité complexe en fonction de la pulsation  $\omega$  soit :

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + i\omega\tau} \quad (58)$$

Sachant que :  $\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon' - i\varepsilon''$  (59)

où  $\varepsilon_\infty$  est la permittivité du matériau en hautes fréquences et  $\varepsilon_s$  la permittivité du matériau en basses fréquences.

En effectuant la transformée de Fourier de (58) il vient alors :

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \left[ 1 - e^{-\frac{t}{\tau}} \right] \quad (60)$$

Suivant ce modèle, l'échantillon est assimilé à un circuit électrique tel que lorsqu'on applique une tension V on a :

$$Q = CV = C_0 \times \frac{\varepsilon(t)}{\varepsilon_0} \quad (61)$$

où  $Q$  représente la charge du matériau et  $C_0$  la capacité géométrique du matériau

Le courant  $J(t)$  s'écrit

$$J(t) = \frac{C_0 V}{\varepsilon_0} (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (62)$$

D'après la relation (58)

On a 
$$\begin{cases} \varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + \omega^2 \tau^2} & (63) \\ \varepsilon''(\omega) = (\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} & (64) \end{cases}$$

Expérimentalement, on peut tracer  $\varepsilon'' = f(\varepsilon')$  d'après la relation suivante :

$$\varepsilon''^2 = (\varepsilon_S - \varepsilon')(\varepsilon' - \varepsilon_\infty) \text{ obtenue en combinant (63) et (64)}$$

La figure obtenue [27] est un demi-cercle centré sur l'axe  $\varepsilon'$ ; toutefois, cette représentation n'est pas valable pour les isolants réels, ainsi le modèle a été corrigé en considérant que les dipôles étaient différents et interagissaient entre eux tel que chaque dipôle répond sur une bande de fréquence propre à lui. Dans ce cas il n'existe qu'un seul temps de relaxation, ce qui conduit à proposer une distribution de temps de relaxation  $f = (\tau)$  normalisée.

#### b- Cas de deux temps de relaxation

La distribution  $f = (\tau)$  est comprise entre  $\tau_1$  et  $\tau_2$ . Dans la mesure où l'interaction entre dipôles est négligeable; le courant transitoire se met sous la forme :

$$J(t) = \frac{C_0 V}{\varepsilon_0} (\varepsilon_S - \varepsilon_\infty) \int_{\tau_2}^{\tau_1} f(\tau) e^{-\frac{t}{\tau}} \frac{d\tau}{\tau} \quad (65)$$

En particulier pour  $f = (\tau) = \frac{b}{\tau}$  l'équation (24) devient :

$$J(t) = b C_0 \frac{V}{\varepsilon_0} (\varepsilon_S - \varepsilon_\infty) \frac{\left[ e^{-\frac{t}{\tau_2}} - e^{-\frac{t}{\tau_1}} \right]}{t} \quad (66)$$

où b est une constante de normalisation.

Dans le même contexte Curie et Von Schweidler [28] ont étudié les courants transitoires en circuit fermé dans des matériaux possédant une large distribution de temps de relaxation. Il découle de leurs travaux une loi empirique à laquelle la charge de ces matériaux semble obéir et qui est :

$$I = I_0 t^{-n} \quad \text{où} \quad \begin{array}{l} n < 1 \text{ pour } t < \tau_0 \\ n > 1 \text{ pour } t > \tau_0 \end{array} \quad (67)$$

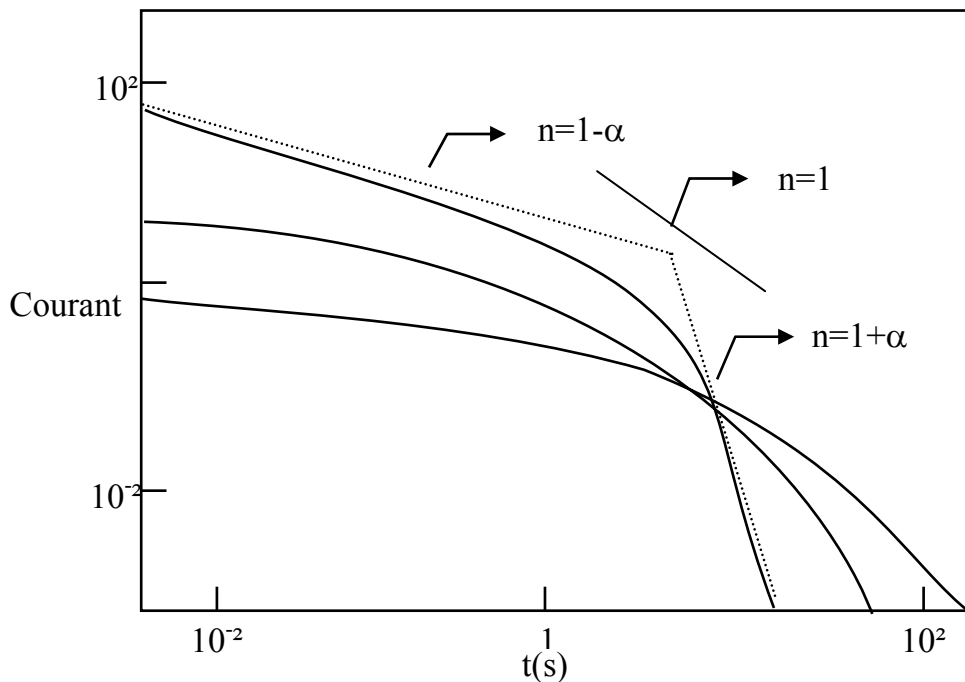
Ce cas correspond à une distribution de temps de relaxation  $f(\tau)$  centrée sur la valeur la plus probable  $\tau_0$ .

Une autre approche a été proposée par Cole et Cole [27], il en découle une nouvelle expression de permittivité électrique

$$\text{Tel que : } \varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + (i\omega\tau_0)^\alpha} \quad (68)$$

Avec  $0 < \alpha < 1$ , ce cas est attribué aux isolants réels. Le courant transitoire résultant est de la forme de Curie et Von Schweidler.

Une représentation de  $\text{Log}(I)$  en fonction de  $\text{Log}(t)$  est donnée sur la figure. (I.7).



**Figure I.7. :** Courant transitoire d'absorption

D'après cette même figure, on remarque deux régions séparées par un coude correspondant à un temps  $\tau_0$  où la pente est égale à (-1). Par ailleurs, on note une asymptote de pente  $-(1 - \alpha)$  aux temps courts ( $t \ll \tau$ ), pour les temps longs ( $t \gg \tau$ ), la courbe  $I(t)$  se rapproche d'une droite de pente  $-(1+\alpha)$ .

### II.3. Autres mécanismes

Nous avons cité certains mécanismes pouvant créer des courants transitoires et cela en évoquant la théorie de Wintle [29]. On peut citer d'autres processus responsables de l'apparition des courants transitoires, par exemple :

1. La pénétration dans l'échantillon des charges déposées en surface par un mécanisme d'injection du type Schottky, faisant apparaître un déclin de potentiel. Ceci n'est notable que pour des échantillons de faibles épaisseurs [30] ;
2. Le dépiègage des électrons contrôlés thermiquement [31] ;
3. L'accumulation des porteurs mobiles aux interfaces discuté par Coelho [31] qui a montré que pour des temps longs le courant prenait une forme en  $t^{-2}$  ;
4. La recombinaison des charges déposées avec les ions ambiants ;

#### **II.4. Approximation de HAMON**

Les mécanismes de polarisation sont étudiés soit par la réponse indicielle ( $I(t)$ ) soit par la réponse fréquentielle ( $\varepsilon''(f)$ ). Le choix de la méthode d'analyse repose sur les difficultés rencontrées auquel cas, on préconise telle ou telle méthode. Aussi, afin d'avoir accès à la transformation directe des données de la réponse indicielle, Hamon propose une méthode qui permet de calculer simplement la grandeur  $\varepsilon''(\omega)$ .

### **III. RELAXATION MECANIQUE**

Cet effet traite de l'influence de la pression sur la charge d'espace, en effet, il a été observé que l'application d'un champ électrique à un échantillon induit une pression qui provoque une réduction progressive de son épaisseur. Tout cela aboutit à un déplacement de la charge dans le circuit extérieur et un courant non négligeable prend naissance. Cet effet est observé dans la plupart des matériaux viscoélastiques.

L'idée de Lowell [32] suggère que dans un champs appliqué, un électron piégé sur un site particulier d'une chaîne polymérique pourrait 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. Par conséquent, la vitesse d'un tel électron serait diminuée d'un terme viscoélastique. Lowell aboutit à une loi de variation de courant de type Curie Von schweidler, avec  $n = 1$ .

Dans cette première partie nous avons rappelé les principaux mécanismes de conduction dans les isolants solides. Ceci nous a permis de donner une formulation du courant en fonction des paramètres auxquels il est possible d'accéder expérimentalement (la température, le champ électrique ect..) et par conséquent de tenter une interprétation de nos résultats afin de déterminer la nature des mécanismes qui régissent le transport de charges dans le polyetherimide.

**CHAPITRE II**  
**DISPOSITIF EXPERIMENTAL**

## **I. DISPOSITIF EXPERIMENTAL**

Les mesures de courant électrique, en fonction de la température et du champ électrique ont été effectuées, au laboratoire des Diélectriques de l'USTHB, à l'aide du dispositif représenté sur la photographie N° 1 et la figure II. 1. Ce dernier comporte essentiellement:

- Une cellule, en acier inoxydable, à l'intérieur de laquelle se trouve l'échantillon,
- Un système de chauffage, de lecture et de régulation de la température,
- Un dispositif de pompage et d'injection de gaz,
- Des circuits d'alimentation électrique et de mesure du courant.

### **I.1. Cellule de mesure**

La cellule de mesure représentée en figure II.2, est une enceinte cylindrique en acier inoxydable de longueur  $L = 49$  cm et de diamètre  $d = 7.6$  cm, elle peut contenir un volume égal à 2.5 litres. Elle nous permet d'effectuer des mesures dans un milieu dont on peut faire varier : la nature, le taux d'humidité relative, la température de  $-190^{\circ}\text{C}$  à  $200^{\circ}\text{C}$  et la pression de  $10^{-6}$  à 2 bar.

Cette cellule possède en outre une entrée qui lui permet d'être reliée à une pompe à vide, et une seconde entrée munie d'une vanne à vis micrométrique qui assure l'injection d'un gaz à l'intérieur de l'enceinte. L'extrémité supérieure de celle-ci est limitée par un couvercle mobile, celui-ci comporte cinq passages étanches dont l'un est relié à la haute tension. Par ailleurs, on trouve à l'intérieur de la cellule deux électrodes en acier inoxydables et de forme circulaire dont le diamètre est égal à 1.4 cm, et entre lesquelles se place l'échantillon.

Le système formé par les deux électrodes présente un profil de Rogowsky qui nous garantit un champ électrique uniforme. (figure II.3).

Ainsi, l'électrode inférieure est reliée au circuit de mesure alors que l'électrode supérieure est portée à la haute tension. Aussi, une résistance chauffante de type thermocoax est enroulée autour d'un cylindre en cuivre qui entoure ces électrodes.

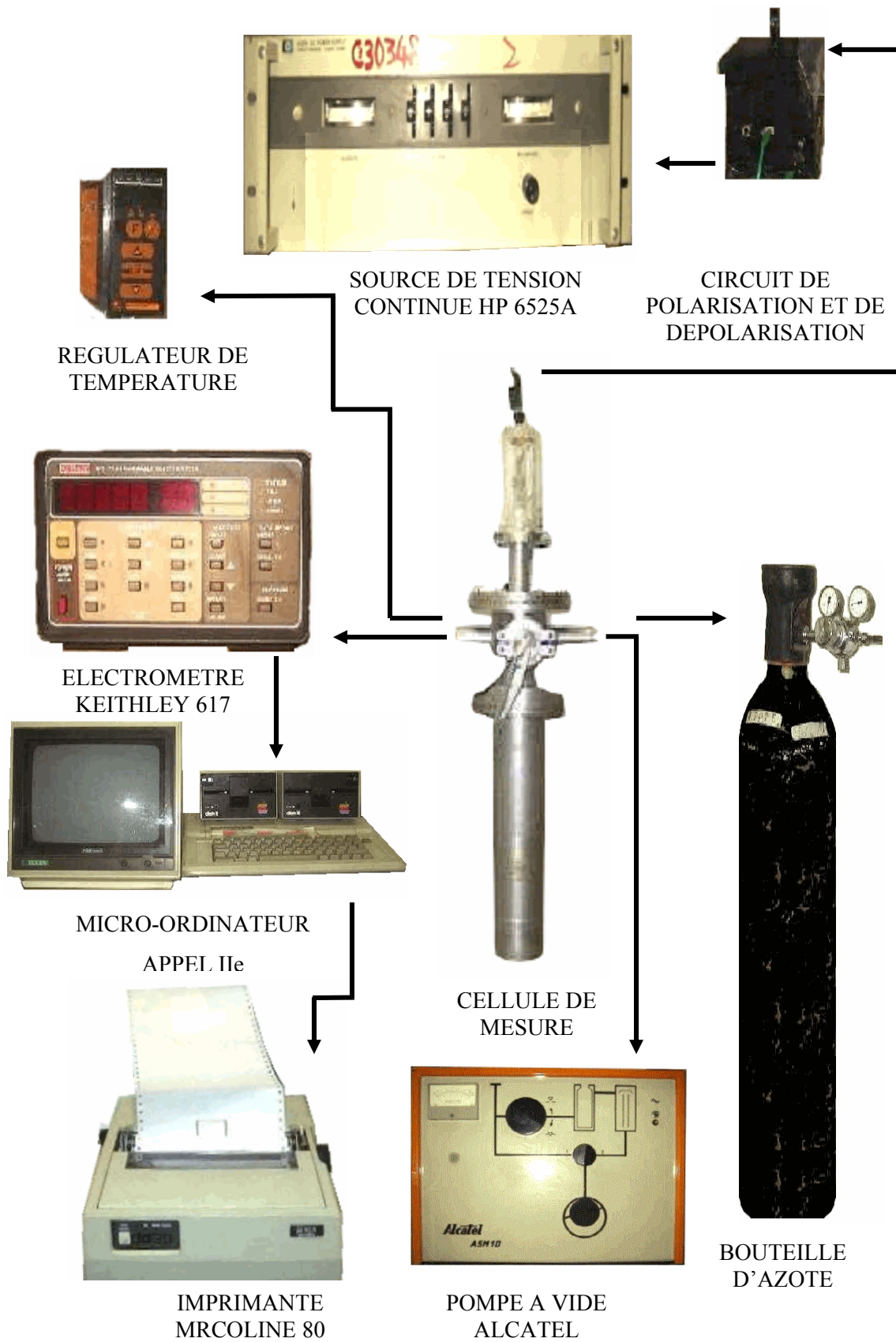


Figure II.1: Schéma du dispositif expérimental

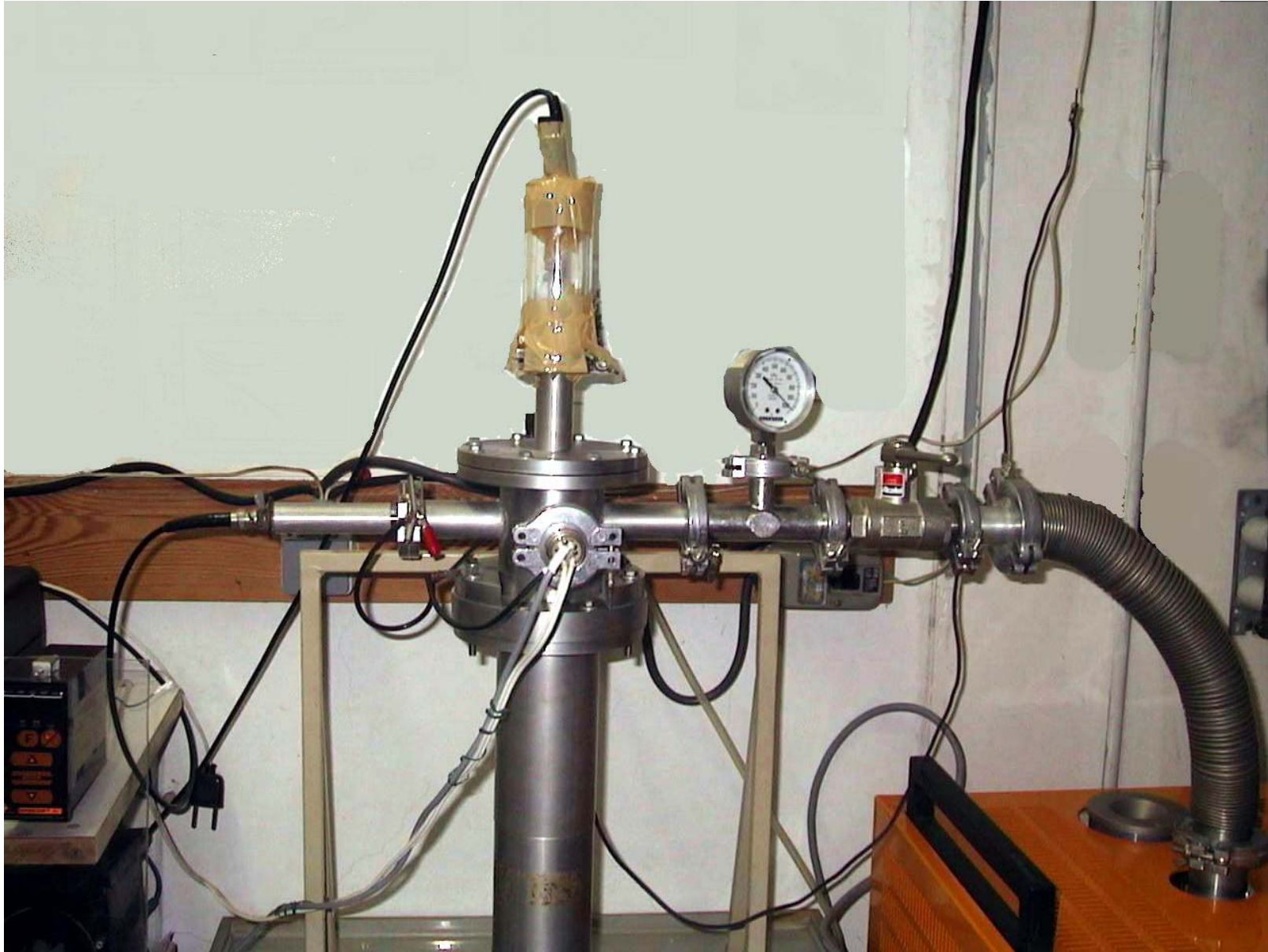
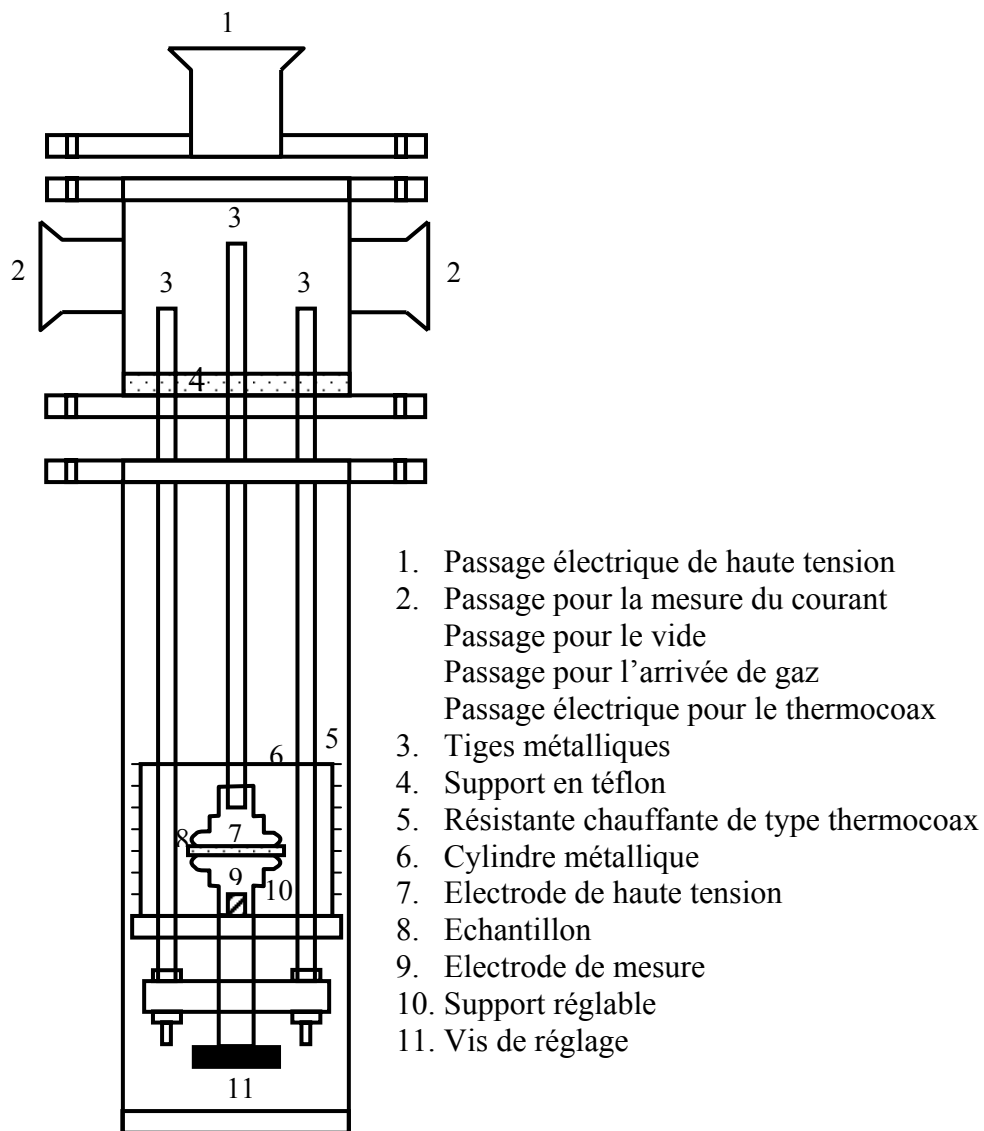
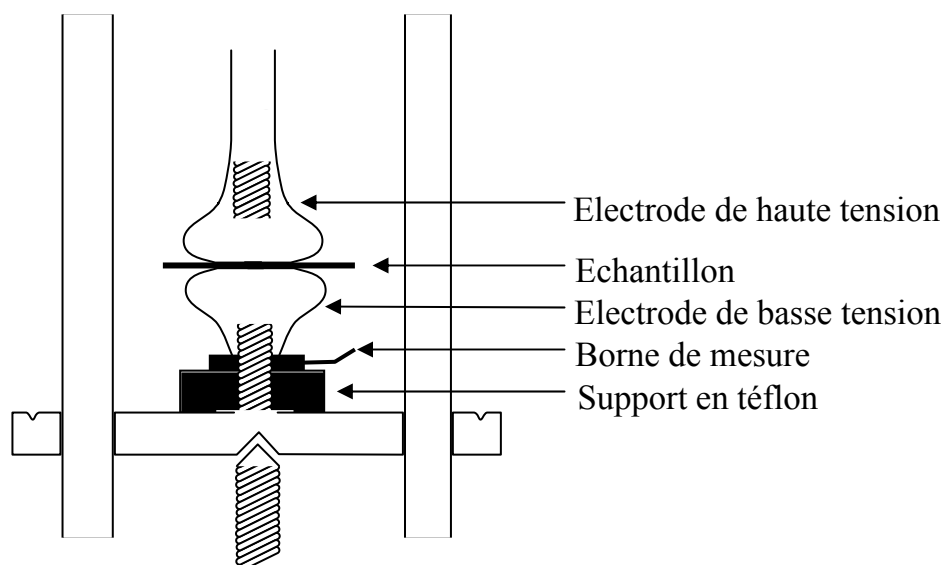


Photo N° 1



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



**Figure II-3** : Système d'électrodes à profil Rogowsky

## **I.2. Circuit d'alimentation électrique**

Le circuit d'alimentation utilisé est constitué d'un générateur de tension stabilisé (HP 6525A DC) qui délivre des tensions continues allant jusqu'à 4000 V.

Les opérations de polarisation et de dépolarisation du matériau s'effectuent à l'aide d'un système électrique qui permet de relier l'échantillon tantôt au générateur à haute tension, tantôt à la terre.

## **I.3. Circuit de mesure du courant**

La mesure du courant électrique qui circule à travers le matériau se fait à l'aide d'un électromètre KHEITHLEY 617 programmable de sensibilité égale à  $10^{-15}$  A. Une lecture du courant à intervalles de temps réguliers sur une échelle logarithmique, est assurée à l'aide d'un programme de pilotage. A cet effet, une carte d'interface GPIB de type IEEE 488 a été placée entre l'électromètre et un micro-ordinateur Apple. La saisie de ces mesures s'effectue grâce à une imprimante  $\mu$  line 80.

## **I.4. Système de régulation thermique**

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. 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  $0.5^{\circ}\text{C}$ .

## **I.5. Dispositif de pompage et d'injection de gaz**

La photographie N°2 montre un premier passage qui relie l'enceinte à une pompe à vide Alcatel ASM10 et un second, à une bouteille d'azote gazeux. La pression à l'intérieur de l'enceinte est lue sur un manomètre de Bourdon et la mesure du vide est effectuée à l'aide d'une jauge Pirani.

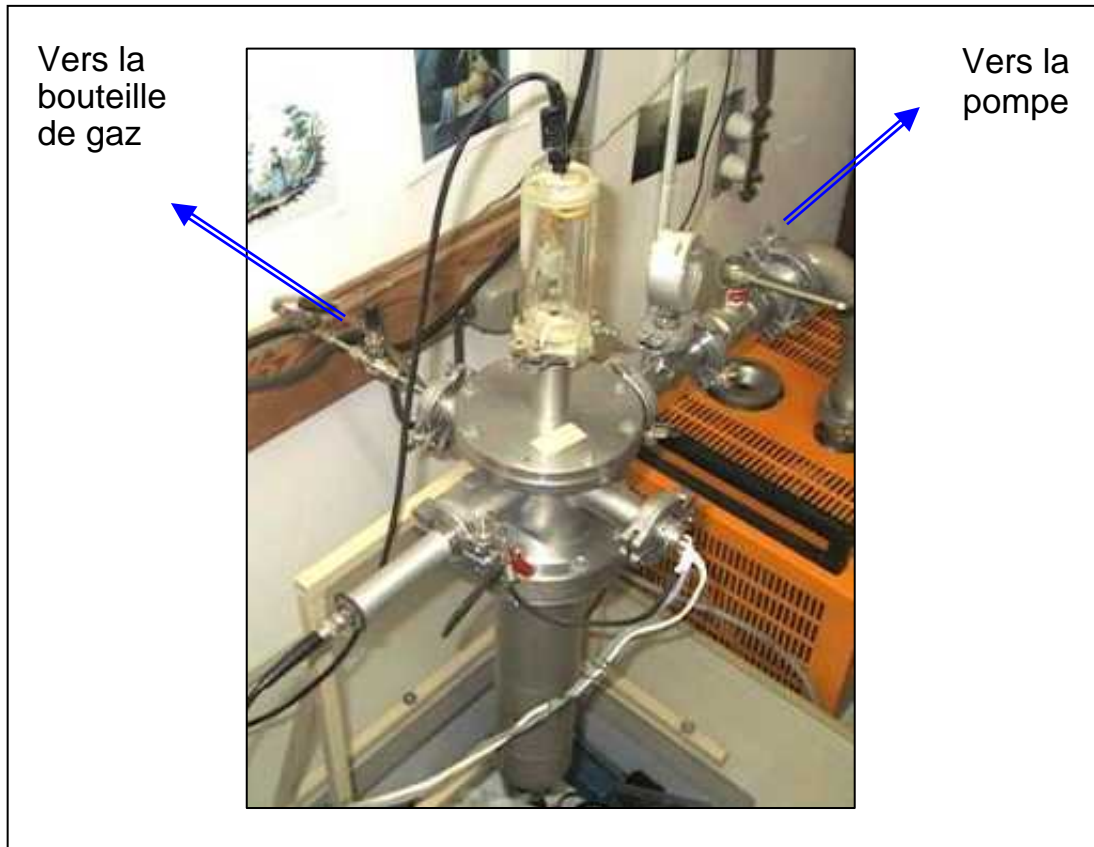


Photo N°2

## II. PROCEDURE DE MESURE

Les échantillons métallisés contiennent des charges résiduelles, ainsi, avant chaque expérience, on les court-circuite pendant plusieurs heures à température ambiante afin d'éliminer les charges qui subsistent dans le matériau.

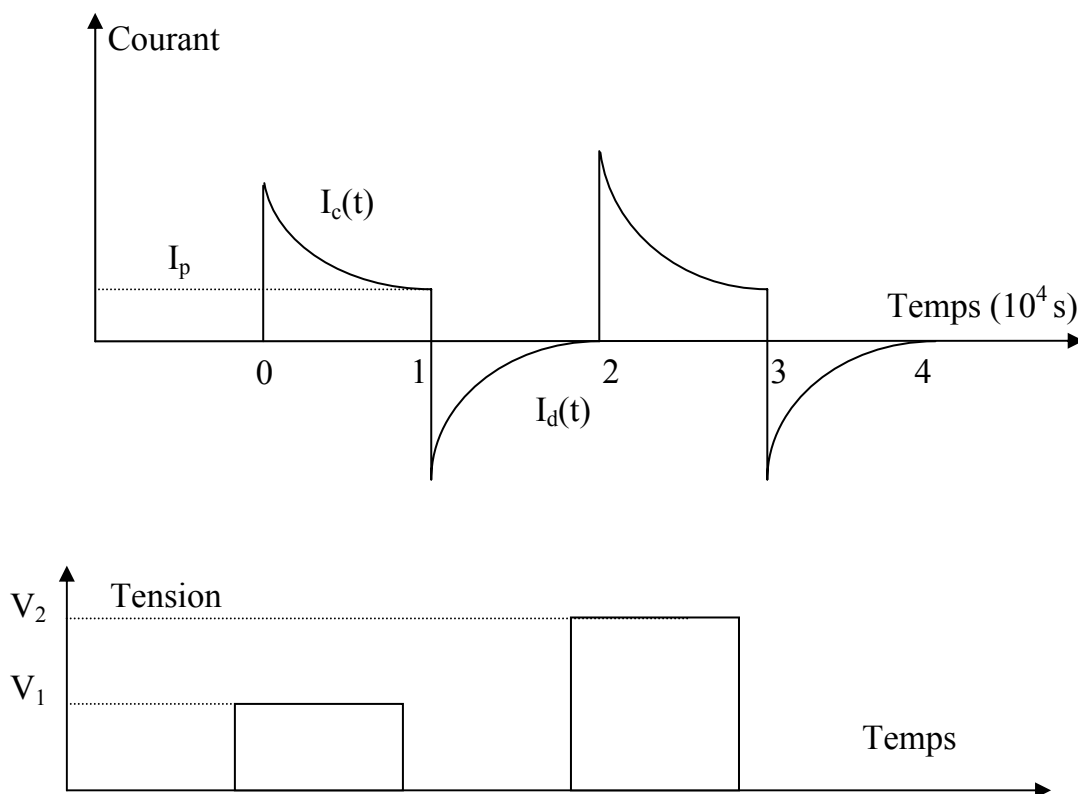
Suite à cela, on procède à l'établissement d'un vide primaire dans l'enceinte, puis on injecte un gaz sec (azote) jusqu'à l'obtention de la pression atmosphérique. L'enceinte est ensuite chauffée jusqu'à la température de consigne.

Lorsque l'équilibre thermique est établi, on applique une tension de polarisation à l'échantillon et le courant qui circule à travers le matériau est ainsi mesuré pendant 10 000 secondes. Dès que le régime permanent est atteint, on supprime la tension appliquée et l'échantillon est mis en court circuit pendant environ 20 heures cette fois ci, on procédera à la mesure du courant de décharge. Cette

opération sera réitérée à de multiples reprises pour une tension et une température soigneusement choisies à cet effet.

La figure II.4 traduit ce procédé de façon schématique ; ainsi la première courbe représente l'échelon de tension appliquée à l'échantillon qui sera alors traversé par un courant appelé courant de polarisation ou de charge ( $I_c$ ) ; ce dernier décroîtra pendant un temps relativement long appartenant au régime transitoire jusqu'à atteindre une valeur limite nommée courant permanent ( $I_p$ ).

C'est ainsi que l'on définira le courant d'absorption ( $I_a$ ) qui est donné par la différence de ces deux courants. Le courant de résorption est identifié au courant de décharge, il possède en outre un signe opposé au courant d'absorption.



**Figure II.4 :** Principe de mesure du courant

### III. METALLISATION DES ECHANTILLONS

Les électrodes déposées pour la mesure de la conductivité peuvent influencer nettement sur la nature de la conduction qui peut être limitée soit par les effets de volume, soit par les mécanismes d'interfaces électrode-polymère.

Il existe plusieurs mécanismes sur la théorie de collage, ils diffèrent selon le type de collage et le domaine d'application [33].

Les échantillons qui ont fait l'objet de notre étude, sont des films de polyetherimide (PEI), (ULTEM 5000) de 125 $\mu$ m d'épaisseur. Ces derniers sont munis, sur les deux faces, d'électrodes circulaires en aluminium de 1.8cm de diamètre, obtenues par évaporation sous vide (figure (II.5)). La technique utilisée [34] à cet effet est la suivante :

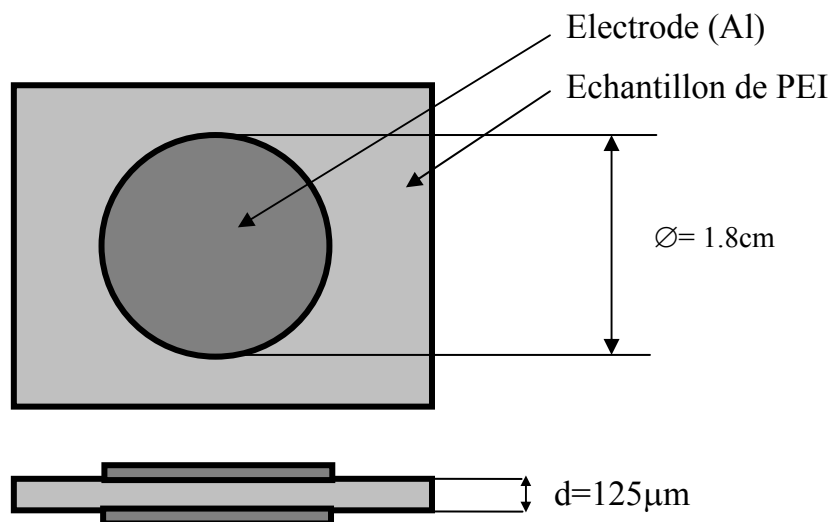
La résine ULTEM nécessite un traitement préparatoire intense [35] dans la plupart des cas : une décharge de rayons a lieu dans un milieu où règne le vide, en présence d'un gaz de basse pression. Ce processus fera accroître l'énergie des surfaces extérieures du film ULTEM. Par ailleurs, le nettoyage à l'aide d'un tissu ou un solvant n'est pas recommandé, en raison de la sensibilité de l'ULTEM aux fissures qui peuvent être visibles après la métallisation. Ainsi, la meilleure façon de maintenir les films propres est de métalliser les pièces aussitôt après le moulage, ou alors les stocker dans des récipients propres. Suite à ce traitement, on dépose des morceaux d'Aluminium dans un creuset en Tungstène. Un vide primaire de  $10^{-6}$  mbr est effectué dans la cloche au moyen d'une pompe primaire. Celle-ci, est reliée à une jauge qui assure le contrôle de la pression.

A l'aide d'une pompe secondaire appelée pompe à diffusion, on effectue un vide secondaire de  $10^{-2}$  mbr, un serpentin est enroulé autour de cette dernière dans lequel circule un liquide réfrigérant (eau), dont le rôle serait de permettre la condensation de l'huile (contenue dans la pompe à diffusion) lorsque le vide limite est atteint, veillant ainsi au bon fonctionnement de la pompe. Notons également la présence d'un piège à azote liquide dans le groupe de pompage, il comporte un réservoir à azote liquide et a pour fonction de protéger la pompe contre les vapeurs

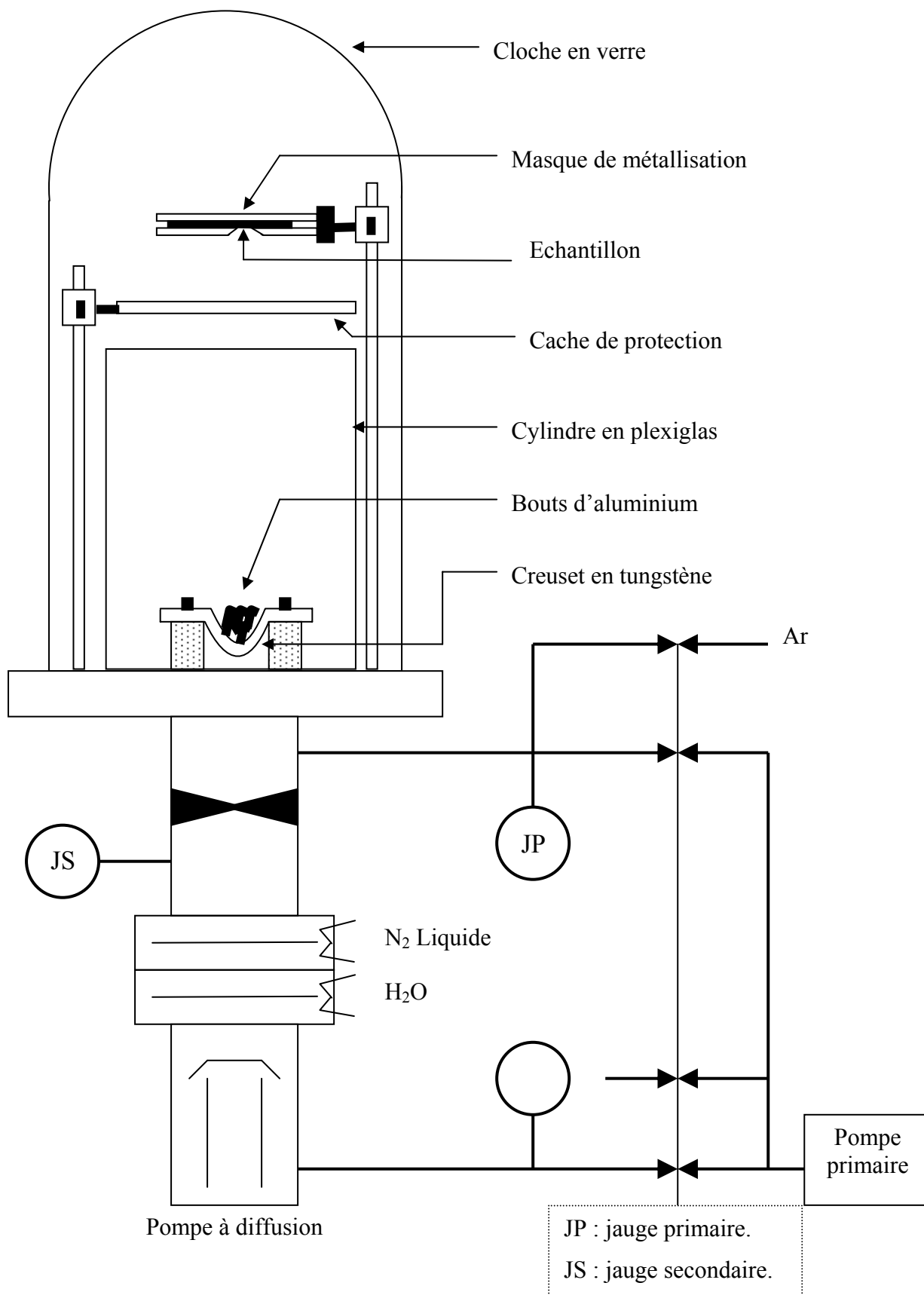
condensables et agressives, qui peuvent être véhiculées par le gaz pompé [36]. Il évite ainsi toute remontée d'huile de la pompe vers l'enceinte assurant par ce principe un vide propre. Après cela, on fait passer un courant de 40 Ampères à travers le creuset qui engendre une élévation de la température et la décomposition de l'Aluminium par électrolyse [34]. Puis, pour finir, on ôte le cache protecteur permettant par cela le dépôt de la vapeur d'aluminium sur la surface de l'échantillon, jusqu'à obtenir un disque uniforme d'une épaisseur de 1000Å. Cette dernière étape a été conduite sous le contrôle d'un mesureur à quartz « sloan »'.

Le dispositif de métallisation utilisé lors de cette opération est représenté sur la figure (II.6).

L'adhésion entre l'ULTEM et l'Aluminium déposé par évaporation thermique sous vide est de nature chimique [33], elle fait intervenir une couche intermédiaire à l'interface formée par le complexe Al-C-O. Actuellement, les méthodes de métallisations les plus courantes et efficaces sur l'ULTEM, sont des techniques de galvanoplastie [35].



**Figure II-5 :** Echantillon de PEI métallisé



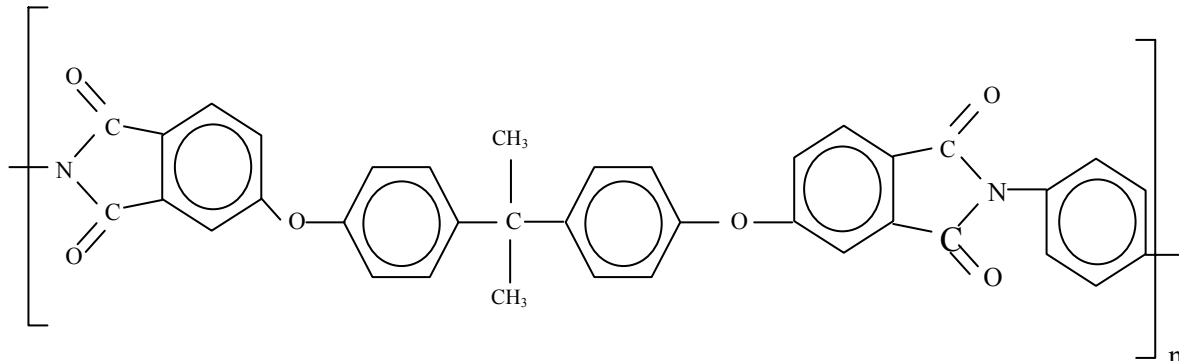
**Figure II-6 : Dispositif de métallisation des échantillons**

## **CHAPITRE III**

### **LES ECHANTILLONS DE POLYETHERIMIDE**

## I. FORMULE CHIMIQUE ET SYNTHÈSE DU POLYETHERIMIDE

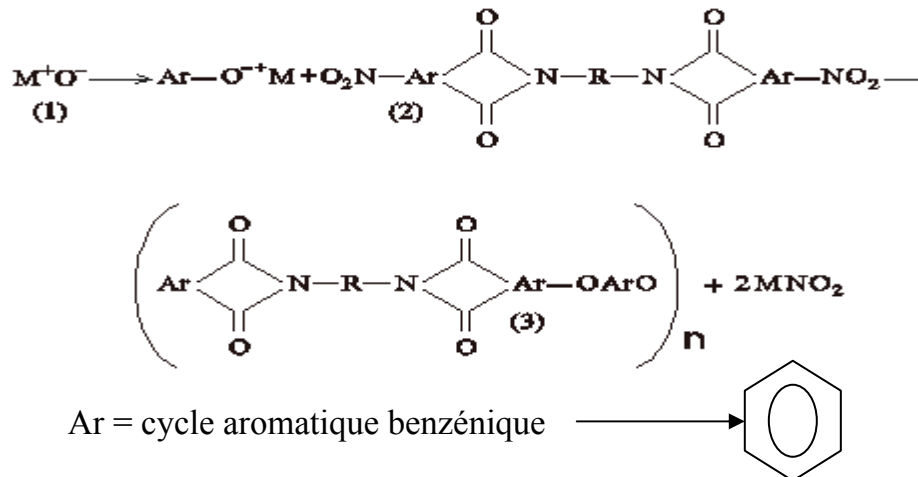
Le Polyetherimide (PEI) de nom commercial ULTEM 5000 est un film biorienté et thermostable, il est fourni par la firme General Electric. Ce polymère possède une structure cyclique dont la structure chimique est donnée par la formule représentée sur la figure III.1.



**Figure III.1.** Formule chimique du polyetherimide.

Le polyetherimide est un polymère issu de la famille des polyimides, cette résine thermoplastique a fait son apparition en 1970. Les monomères les plus utilisés lors de la préparation du polyetherimide sont des bisphénols et des dinitrobisimides [37] choisies suivant la méthode de nitrodéplacement. La chimie utilisée pour la condensation des bisphénols avec des dinitrobisimides implique, une réaction aromatique nucléophile de substitution dans laquelle, la chaîne de polymère est produite par la formation des liens aromatiques successifs d'éther. Ainsi, le polyetherimide [37] dérivant de ce mécanisme (figure III.2) est obtenu de la manière suivante :

D'abord, un bisphénol est converti avec du sodium ou l'hydroxyle de potassium en sel de bisphenoxide suite à quoi, on procède à une déshydratation azéotropique, laquelle produit les sels anhydriques bisphenoxide, ces derniers sont chauffés à des températures variant de  $80^\circ\text{C}$  à  $130^\circ\text{C}$  avec le dinitrobisimide. Le poids est rapidement atteint et les réactions s'accomplissent sans catalyseur.



**Figure (III-2) :** Mécanisme de synthèse du PEI

## II. CARACTERISTIQUES DES FILMS ULTEM 5000

Les échantillons utilisés se présentent sous forme de films transparents de deux épaisseurs différentes (125 et 75  $\mu\text{m}$ ) munis d'électrodes métalliques circulaires, obtenues par évaporation de l'aluminium sous vide, sur les deux faces.

Les principales caractéristiques du PEI sont résumées dans le tableau III.1 :

**Tableau III.1 :** Principales caractéristiques du PEI

GRANDEUR	UNITE	VALEUR
Densité	—————	1.28
Résistance à la traction à 23°C	Mpa	0.10480
Module d'élasticité en traction à 23°C	Mpa	2.63519
Module d'élasticité en flexion	Mpa	2.82686
Rigidité diélectrique	kV/mm	24
Résistivité volumique	Ohm-cm	$4.3 \cdot 10^{17}$
Résistivité surfacique	Ohm-cm	$1.8 \cdot 10^{16}$
Constante diélectrique à $10^6$ Hz	—————	3.05
Facteur de pertes diélectrique à $10^6$ Hz	—————	0.00199
Indice d'inflammabilité (3.1mm)	Norme UL94	VTM-0
Résistance au cheminement de l'arc	seconde	101
Absorption d'eau en 24 h	%	0.50
Température de fusion	° C	365
Température de transition vitreuse	° C	230
Conductibilité thermique	W/m K	0.4
Chaleur spécifique volumique	J/m <sup>3</sup> K	$3 \cdot 10^6$

### **III. PROPRIETES DU PEI**

Les polymères thermostables offrent un éventail de propriétés exceptionnelles. Ce sont des groupes intéressants de polymères, incroyablement résistants mécaniquement, chimiquement et également thermiquement. Leur résistance est si grande que ces matériaux remplacent souvent le verre et les métaux comme l'acier dans des applications industrielles exigeantes.

#### **III.1. Propriétés générales**

Après 10 000 heures d'immersion dans l'eau à 100°C, l'ULTEM conserve 95% de sa résistance à la traction. De plus, les essais démontrent que les caractéristiques physiques de la résine ULTEM restent pratiquement constantes après des cycles répétés d'expositions à la vapeur d'eau sous pression et de séchages dans le vide à la température ambiante.

L'ULTEM résiste bien aux radiations ultraviolettes sans exiger l'addition de stabilisants. Une exposition de 1000 heures dans l'appareil weatherometer en atmosphère de xénon ne conduit qu'à une variation négligeable de la résistance à la traction.

Les pièces moulées en ULTEM sont dotées d'une excellente résistance aux rayonnements gamma. Après l'action d'une dose absorbée cumulée de 500 Mrad à la cadence d'un Mrad à l'heure émis par le radiocobalt 60, l'ULTEM n'a perdu que 6% de sa résistance à la traction.

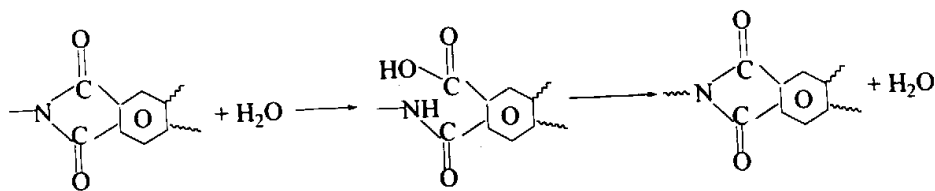
Le dégagement de fumée d'un polymère dans les conditions réelles d'un incendie constitue un facteur essentiel qui conditionne la sécurité relative de ce matériau. Des mesures comparatives effectuées sur l'ULTEM et d'autres thermoplastiques techniques démontrent que la résine ULTEM dégage des quantités de fumée très faibles (NBS). En outre, il a été démontré que les produits de la combustion de la résine ULTEM ne sont pas plus toxiques que ceux que dégage le bois et ils sont constitués surtout de CO, CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O à l'état gazeux [35].

Les résines ULTEM présentent une résistance exceptionnellement élevée à l'action de la flamme, sans aucun additif ignifugeant. C'est ainsi par exemple que l'ULTEM 5000

est homologué VTM-O sous une épaisseur de 3.1mm d'après la norme UL 94. ( tableau III.1).

L'eau peut interagir avec les polymères par la voie dissolution-plastification-gonflement ou alors par dissolution et hydrolyse.

L'absorption purement physique est en principe réversible (aux effets près d'un éventuel endommagement). Par contre, l'hydrolyse est irréversible et entraîne des coupures de chaînes susceptibles d'altérer le comportement mécanique du matériau. Aussi, selon des études récentes entreprises par Merdas [38], il apparaît que l'hydrolyse, dans le cas du polyetherimide, est négligeable aux températures inférieures à 180°C. Cela est attribué en partie à l'efficacité de la recondensation : L'acide et l'amine résultant d'un acte d'hydrolyse sont dans l'impossibilité de diffuser. Maintenus l'un près de l'autre par leur liaison à la chaîne, ils n'ont pratiquement pas d'autre voie que de se recombinaison (figure.(III-3)).



**Figure.(III-3)**

Par ailleurs, il a été constaté que le PEI absorbe très peu l'eau.

### **III.2. Propriétés mécaniques**

La résine ULTEM allie de manière inégalée une excellente résistance mécanique et un module d'élasticité élevé, très supérieur à ceux de la plupart des thermoplastiques techniques. La qualité la plus impressionnante concerne le fait que la résistance et le module d'élasticité conservent leurs valeurs élevées aux fortes températures; en effet leurs modules d'élasticité sont très grands en dessous de leurs températures de transition vitreuse. Quant à leurs contraintes de rupture en flexion, ainsi qu'en traction et en compression, elles sont excellentes, l'allongement à la rupture en traction est compris entre 20 et 100% [35].

D'autre part, une augmentation des propriétés mécaniques du polyetherimide a été constatée suite à l'introduction de charges inertes comme le verre, la poudre de

carbone et les minerais dont l'implication directe est un accroissement de sa rigidité. Enfin, les résines ULTEM conservent leur stabilité après de longues expositions aux UV jusqu'à une certaine limite de temps car cela pourrait occasionner des pertes considérables de leurs propriétés physiques.

### **III.3. Propriétés thermiques**

Le polyetherimide compte parmi les polymères thermostables les plus résistants aux températures élevées [35] jusqu'à 170°C et ce, pendant plusieurs heures. Par ailleurs, il possède la propriété d'autoextinguibilité, bien qu'il soit difficilement inflammable. C'est pour cette raison qu'il représente un excellent candidat dans le domaine de l'aérospatiale et dans l'industrie électronique et électrotechnique.

Les polymères thermostables possèdent une température de transition vitreuse  $T_g$  élevée. Par ailleurs, la gamme de variation de  $T_g$  dans les polyimides est large, elle varie de 50°C à 400°C [37] et dépend fortement de leurs structures. Une température de transition vitreuse basse réduit la température finale d'utilisation, aussi bien que les températures exigées pour traiter le polymère dans la fusion. A cet égard, les polyetherimides sont uniques, ils sont facilement traités à la fusion. Par ailleurs, il est à noter que pour la plupart des polyimides, la stabilité oxydante chute brusquement au-dessus de leurs températures de transition vitreuses, ceci est dû probablement à la migration plus facile de la molécule d'oxygène dans la majeure partie du polyimide. Ainsi, la température de transition vitreuse de l'ULTEM5000 [39] est de 230°C.

Les polymères thermostables jouent un rôle de plus en plus important dans les applications structurales comme adhésifs ou comme matrice pour des matériaux composites. Si l'utilisation de ces polymères présente des avantages indéniables (par exemple l'allègement des structures ou la réduction des concentrations de contraintes), ils sont souvent soumis à des environnements agressifs (température, humidité, oxygène..) et leurs durée de vie dans ces conditions restent énigmatiques. Il est en effet bien connu que de longues périodes d'exposition à haute température peuvent provoquer une dégradation thermique qui s'accompagne généralement d'une chute des propriétés mécaniques. Les polymères thermostables, en particulier le PEI, présentent un maximum de résistance non seulement à l'oxydation mais à la pyrolyse, cette

résistance dépend de l'énergie de dissociation de la liaison chimique et dans ce contexte la structure aromatique présente dans le polyetherimide est la plus solide [40].

#### **III.4. Propriétés électriques**

La résine ULTEM est un excellent isolant électrique; en effet, elle possède une haute rigidité diélectrique ainsi qu'une valeur élevée de la résistivité volumique et de surface. Aussi, il représente un excellent candidat pour l'isolation électrique dans les domaines électrique et électrotechnique.

Sa constante diélectrique est proche de celle du Kapton, du PET et du PAI, son facteur de pertes diélectrique est relativement faible.

#### **III.5. Propriétés chimiques**

Contrairement aux résines amorphes, le polyetherimide ULTEM présente une résistance exceptionnellement élevée à l'action d'une très grande diversité d'agents chimiques.

La résine ULTEM est inerte vis-à-vis de la plupart des hydrocarbures et grâce à cette qualité, c'est un matériau de choix dans les applications de l'automobile et l'aéronautique exposé au contact de l'essence et des huiles. Bien que le polymère soit soluble dans les hydrocarbures partiellement halogénés tels que le chlorure de méthylène et le trichloréthane, il résiste bien à l'action des agents de nettoyage, à base de Fréon, des frigorigènes et des produits de soudages en phase vapeur. La résine ULTEM résiste à l'action des acides minéraux, des solutions de sels minéraux et des bases diluées (pH inférieur à 9). Cet avantage ainsi que son excellente tenue aux températures élevées et sa transparence permettent d'utiliser ce polymère dans les applications telles que les ustensiles de laboratoires et les systèmes d'échangeurs de chaleur employés dans l'automobile [35].

### **IV. APPLICATIONS**

Grâce à son ensemble remarquable de propriétés et à sa grande facilité de mise en œuvre, l'ULTEM est le matériau idéal pour les applications intéressantes des

industries extrêmement diverses. Dans le secteur de l'électrotechnique et de l'électronique, la résistance thermique de l'ULTEM qui atteint 200°C, ses excellentes caractéristiques électriques et sa résistance intrinsèque au feu représentent des qualités idéales pour l'isolation des fils et des câbles ainsi que les connecteurs exposés à de fortes températures, les consoles des terminaux, les éléments des moteurs électriques et les circuits intégrés. Dans l'aéronautique et les autres équipements de transports en commun, son excellent comportement au feu, contribue à faire de l'ULTEM le polymère de choix pour des pièces telles que les sièges, l'éclairage et même les panneaux de revêtement intérieur. Dans le domaine des appareils électroménagers, grâce aux propriétés supérieures de l'ULTEM telles que la transparence aux micro-ondes et la résistance mécanique, le polyetherimide apporte une solution toute trouvée pour la fabrication d'éléments des fours à micro-ondes, en particulier les modèles extrêmement compacts. Les fibres ULTEM offrent des possibilités intéressantes sur le plan économique. L'extrême souplesse d'emploi de l'ULTEM permet de fabriquer un email d'isolation des fils servant dans les moteurs, les génératrices et les transformateurs.

**CHAPITRE IV**

**RESULTATS ET INTERPERTATION**

## I. RESULTAS EXPERIMENTALES

Dans le cadre de notre étude nous avons réalisé une série de mesures sur le polyéthérimide. Des courants de charge et de décharge ont été recueillis sur une gamme de température allant de 100°C à 180°C pour des champs variants de 6.4 MV/m à 12.8 MV/m.

### I.1. Effet de la température

A partir des résultats obtenus nous avons représenté sur les figures (IV-1 à IV-8), l'évolution des densités de courants de charge et de décharge au cours du temps, à champ constant, suivant des valeurs croissantes de la température sur une échelle double logarithmique.

**Tableau IV.1** : Densité de courant à différentes températures pour des champs constants

V(V)	F(MV/m)	T(°C)	J(A/m <sup>2</sup> )
800	6.4	100	1.57200 10 <sup>-10</sup>
		140	1.98588 10 <sup>-10</sup>
		160	3.58544 10 <sup>-10</sup>
		180	9.03475 10 <sup>-10</sup>
1000	8	100	1.43594 10 <sup>-10</sup>
		140	2.31693 10 <sup>-08</sup>
		160	8.63792 10 <sup>-08</sup>
		180	1.30527 10 <sup>-07</sup>
1400	11.2	100	1.72169 10 <sup>-10</sup>
		140	4.52190 10 <sup>-08</sup>
		160	2.06548 10 <sup>-07</sup>
		180	2.86434 10 <sup>-07</sup>
1600	12.8	100	2.303265 10 <sup>-10</sup>
		140	6.328158 10 <sup>-08</sup>
		160	2.349479 10 <sup>-07</sup>
		180	3.871346 10 <sup>-07</sup>

La variation du courant permanent augmente globalement de façon monotone d'environ trois décades lorsque la température varie de 100 °C à 180°C pour toutes les valeurs du champ électrique.

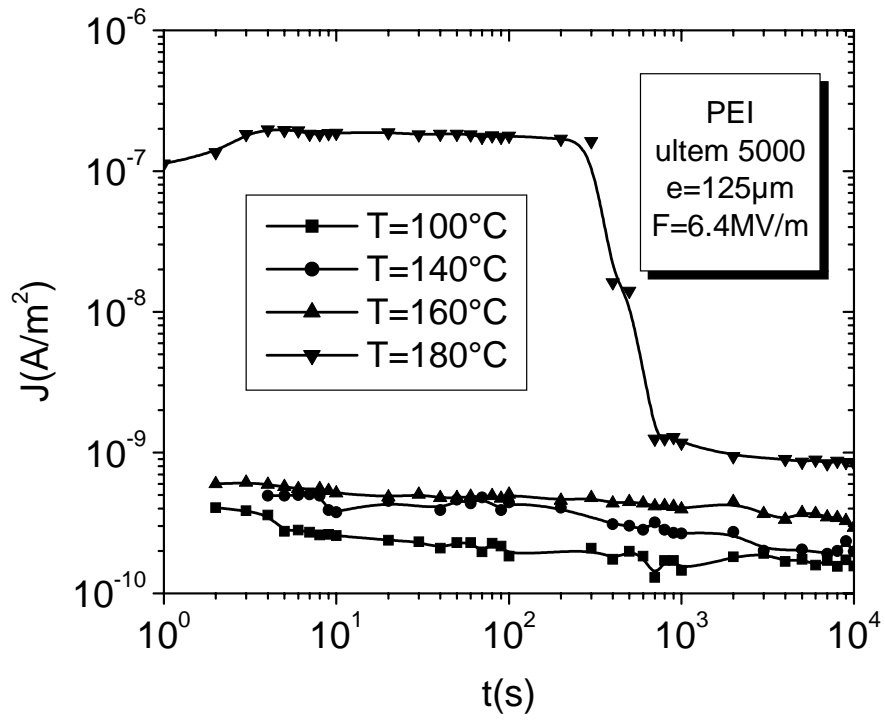
Toutefois, on dénote un effet de la température remarquable à partir de 8 MV/m, l'écart entre les courants permanents atteint presque trois décades pour une température variant de 100 °C à 180 °C.

Nous avons également observé au niveau de la courbe représentée sur la figure (IV-1) un comportement singulier à  $T = 180$  °C, une chute brusque de la densité de courant d'une valeur avoisinant les deux décades à  $t = 2 \cdot 10^2$  s est constatée. Cela peut être dû à une formation d'une charge d'espace qui serait évacuée après une durée de temps  $t = 2 \cdot 10^2$  s [39], vers l'autre électrode.

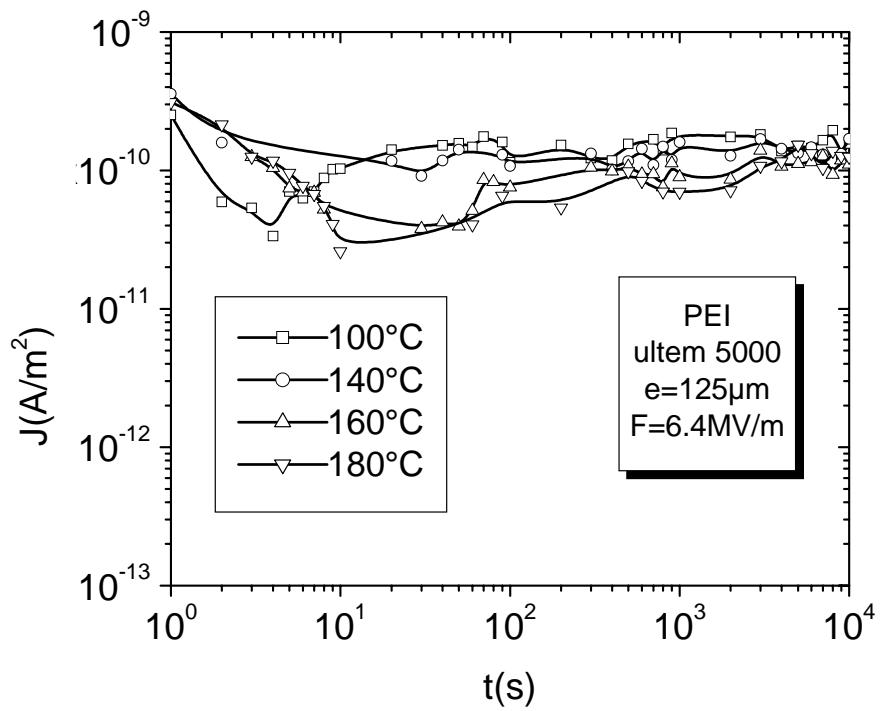
En ce qui concerne la densité de courant de décharge (de signe opposé à la densité de courant de charge), elle évolue globalement avec un écart comparable à celui de la charge à partir de 8 MV/m et augmente jusqu'à deux décades. Néanmoins, nous avons constaté quelques anomalies au niveau des courbes représentées sur la figure (IV-2). Ces dernières possèdent toutes un point de chute brutale dès les premières décades du temps, à une position qui semble s'éloigner à mesure que la température s'élève, puis reprennent une allure normale.

La comparaison entre les densités de courant de charge et les densités de courant de décharge à partir d'un certains temps révèle une superposabilité de ces dernières pour les températures comprises entre 100°C et 140°C.

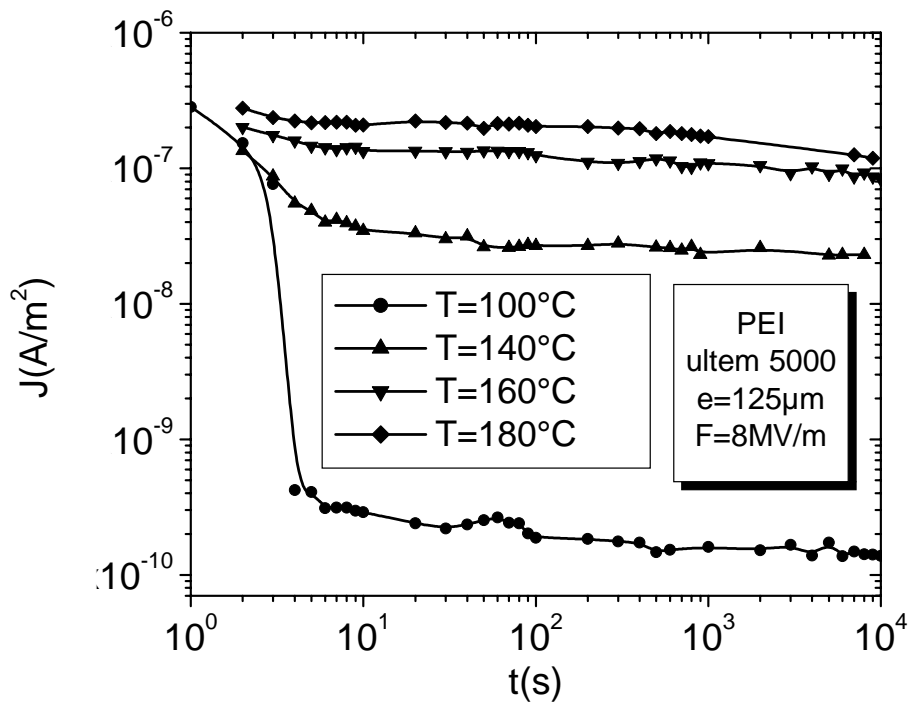
En ce qui concerne le reste des courbes elles ne se distinguent pas par cet attribut.



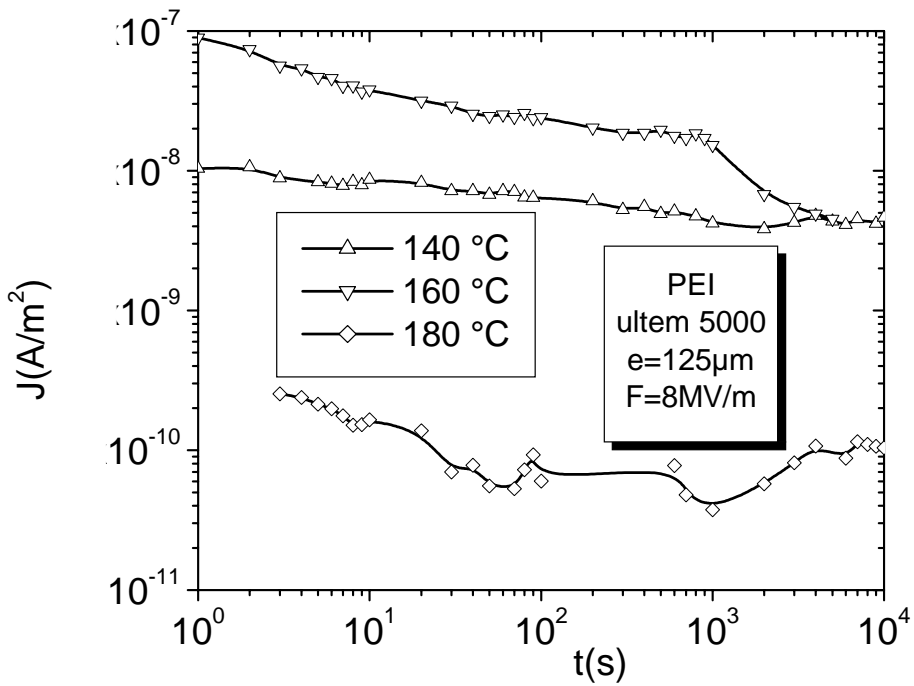
**Figure IV-1:** Densité de courant de charge à 6.4MV/m



**Figure IV-2:** Densité de courant de décharge à 6.4MV/m



**Figure IV-3:** Densité de courant de charge à 8MV/m



**Figure IV-4 :** Densité de courant de décharge à 8MV/m

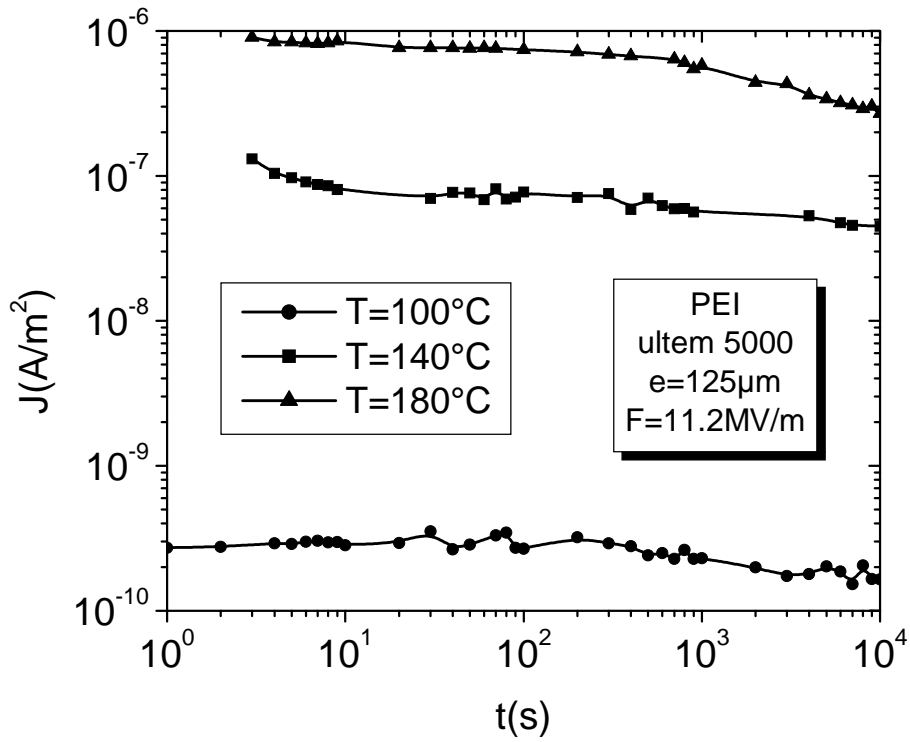


Figure IV-5 : Densité de courant de charge à 11.2MV/m

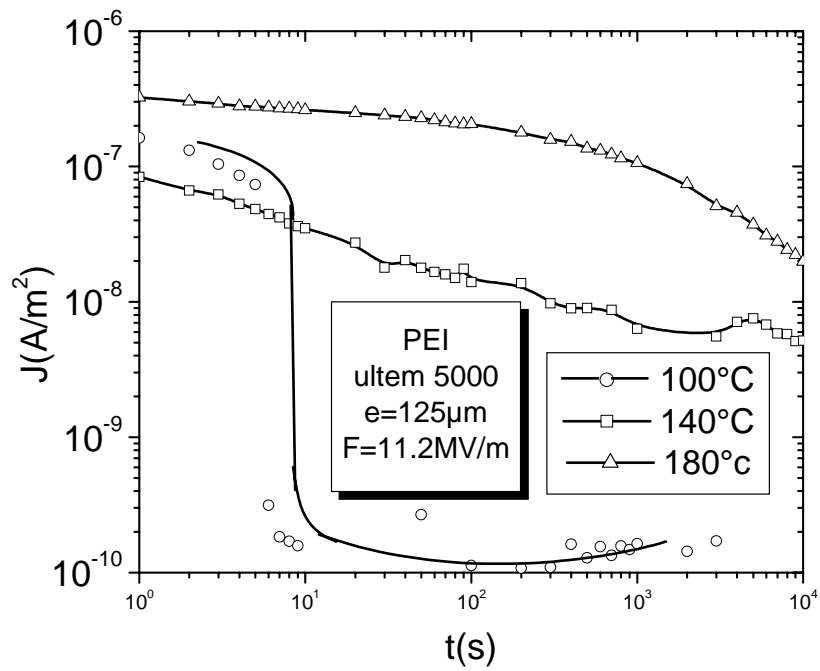


Figure IV-6 : Densité de courant de décharge à 11.2MV/m

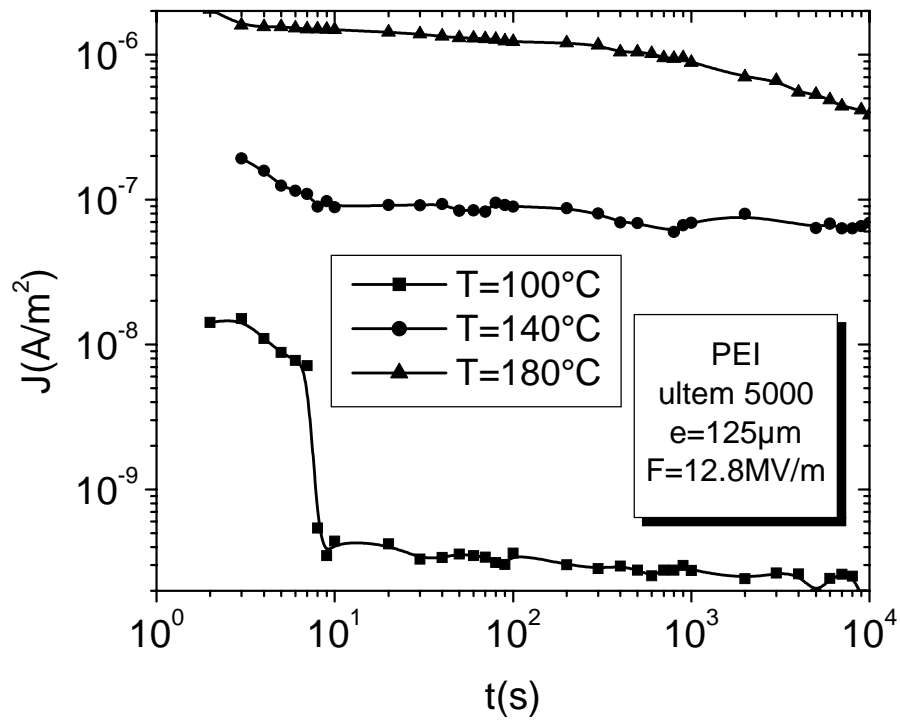


Figure IV-7 : Densité de courant de charge à 12.8MV/m

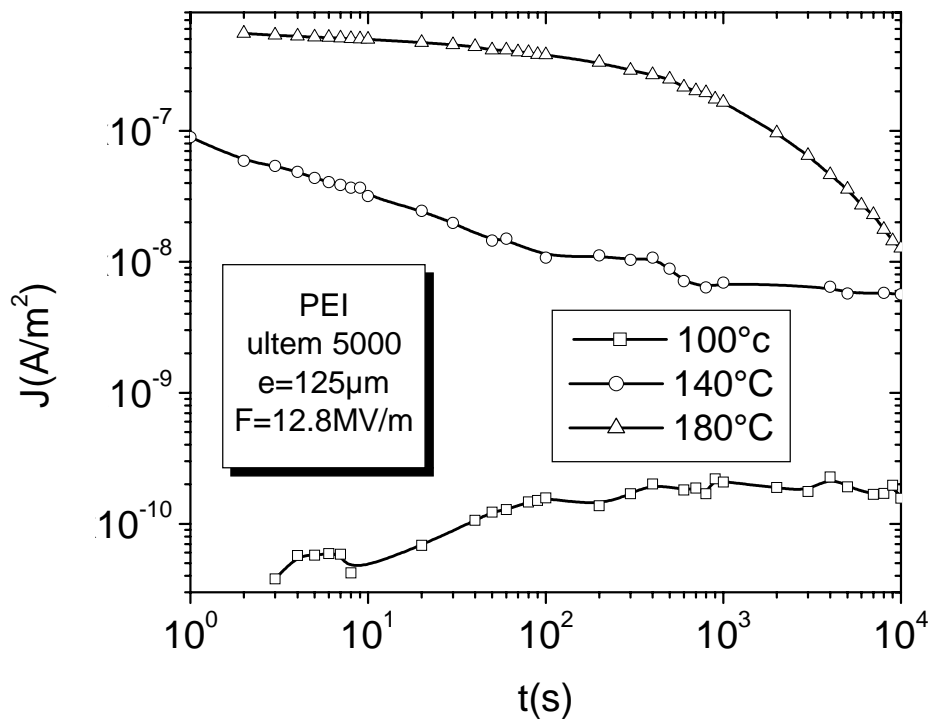


Figure IV-8 : Densité de courant de décharge à 12.8MV/m

## **I.2. Effet du champ électrique**

Les figures (IV-9 à IV-16) représentent l'évolution des densités de charge et de décharge au cours du temps à des températures fixes pour des champs variant de 6.4 à 12.8 MV/m. Pour une température fixe, on remarque une croissance des courants permanents relatifs aux courbes de charge, qui peut atteindre dans certains cas les deux décades (figure (IV-13) et (IV-15)) et ce, pour des valeurs de champs variant de 6.4 à 12.8 MV/m.

Globalement, les courbes de charge évoluent d'environ une décade à mesure que la température croit. Toutefois, un effet de champ est visible à partir de 140 °C et plus précisément pour des champs électriques compris entre 6.4 et 8 MV/m, dans cette gamme de champ, on remarque une croissance des courants permanents de charge plus importante qui atteint une décade. Un écart d'environ deux décades est également présent au niveau des courbes de décharge pour les températures 140°C et 160°C.

Par ailleurs, on remarque que la durée du régime transitoire est courte et peu sensible au champ électrique.

Aussi, lorsqu'on visualise l'ensemble des courbes de charge et de décharge, on remarque un écart croissant entre elles, pour une même température, ainsi que l'absence de réversibilité.

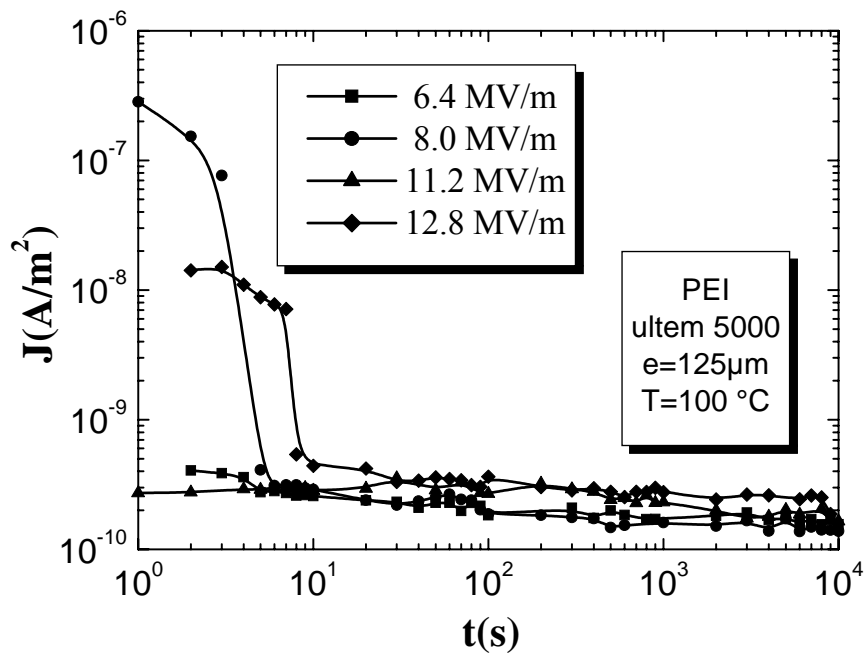


Figure IV-9: Densité de courant de charge à T = 100°C

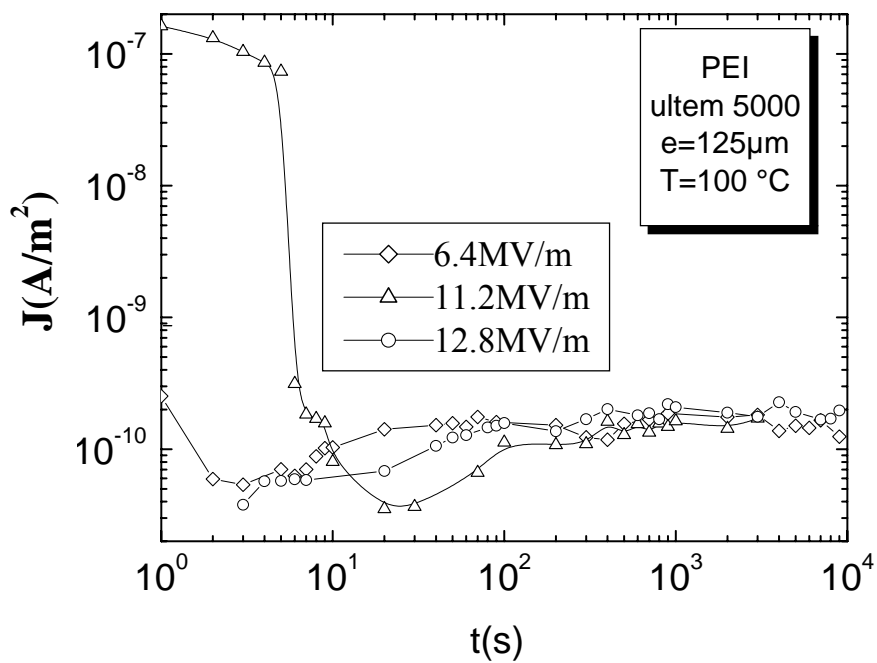


Figure IV-10: Densité de courant de décharge à T = 100°C

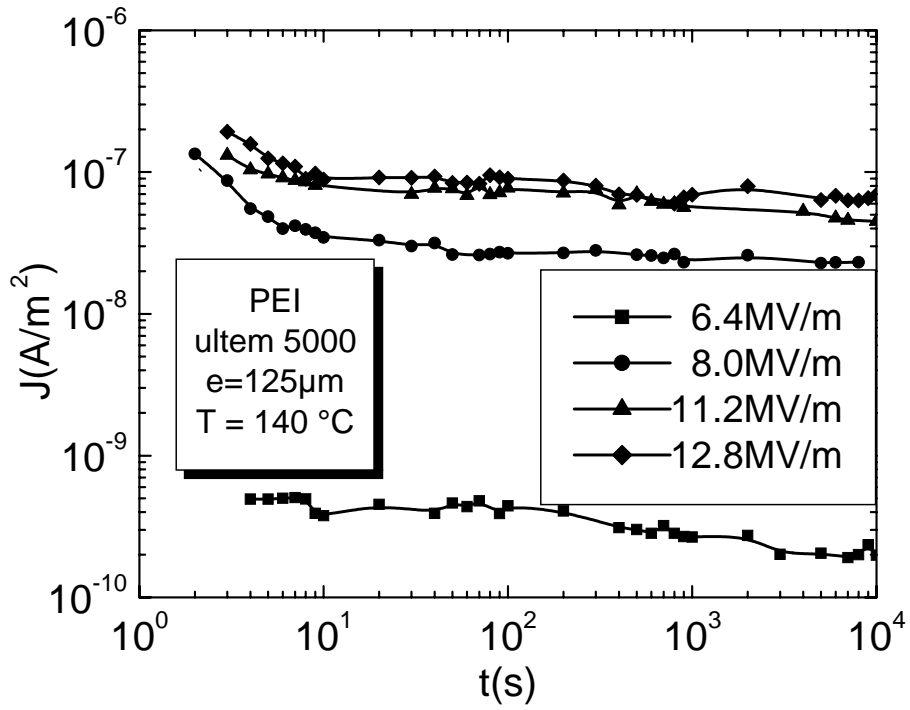


Figure IV-11 : Densité de courant de charge à  $T = 140^\circ\text{C}$

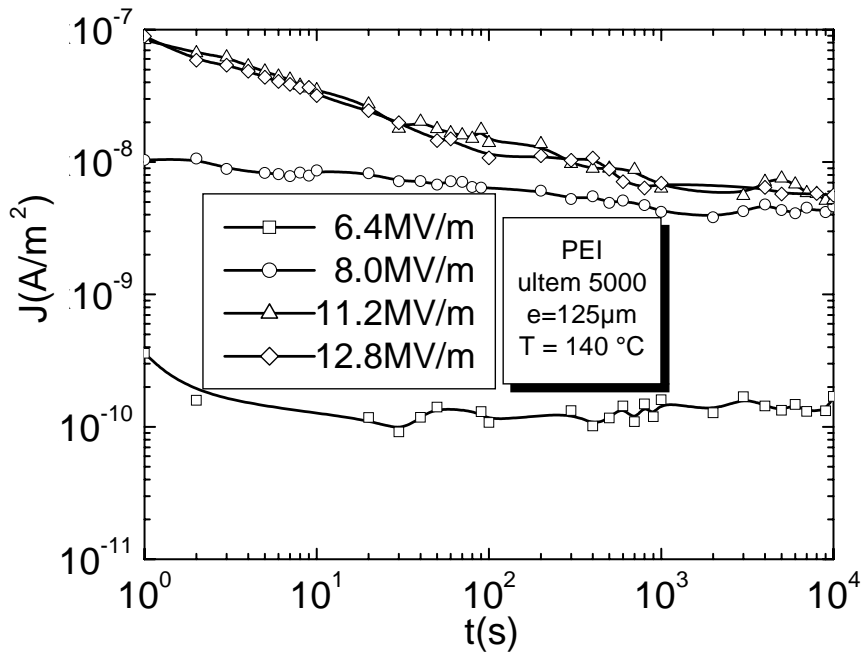
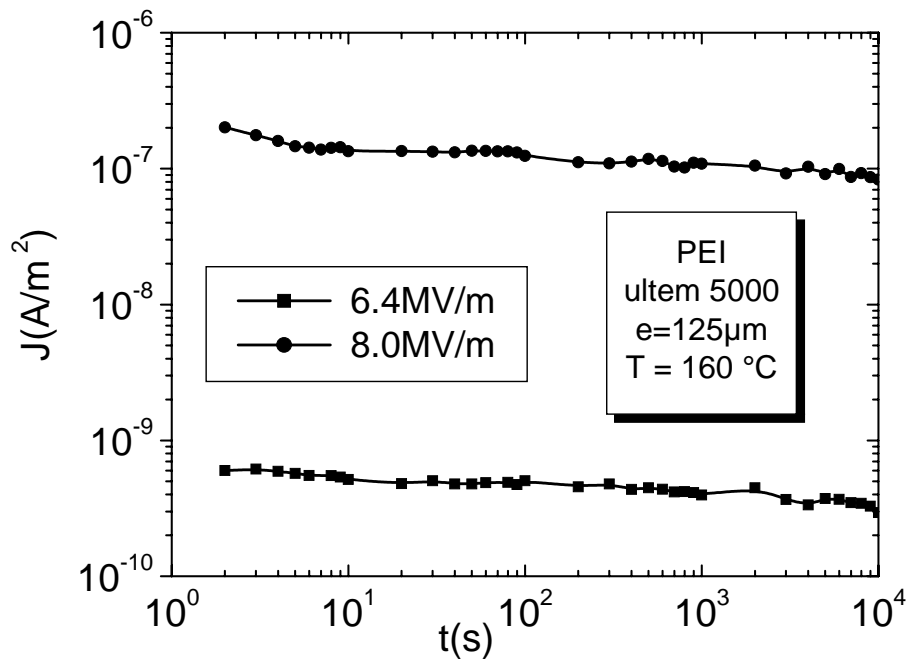
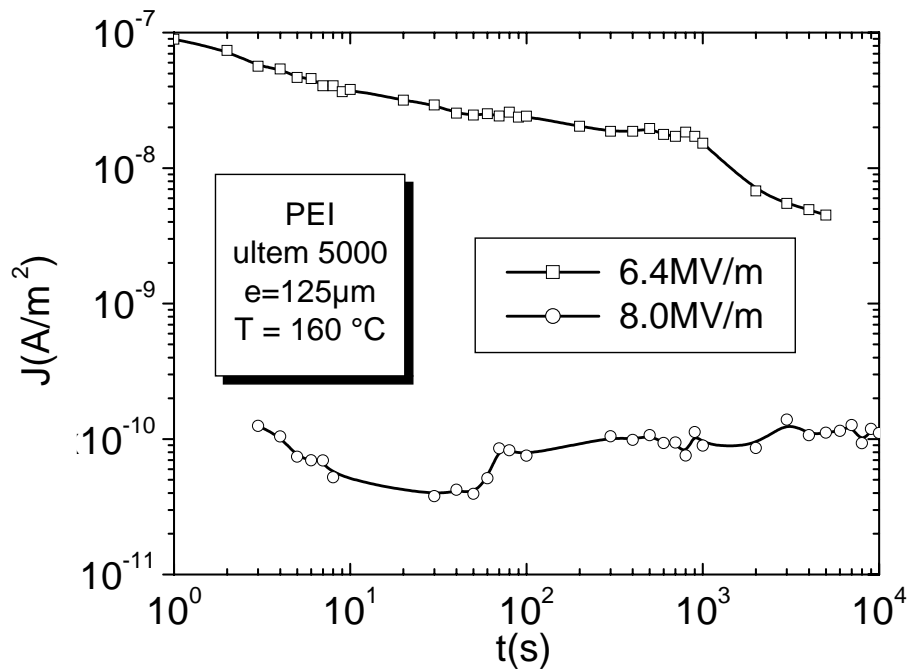


Figure IV-12 : Densité de courant de décharge à  $T = 140^\circ\text{C}$



**Figure IV-13** : Densité de courant de charge à T = 160°C



**Figure IV-14** : Densité de courant de décharge à T = 160°C

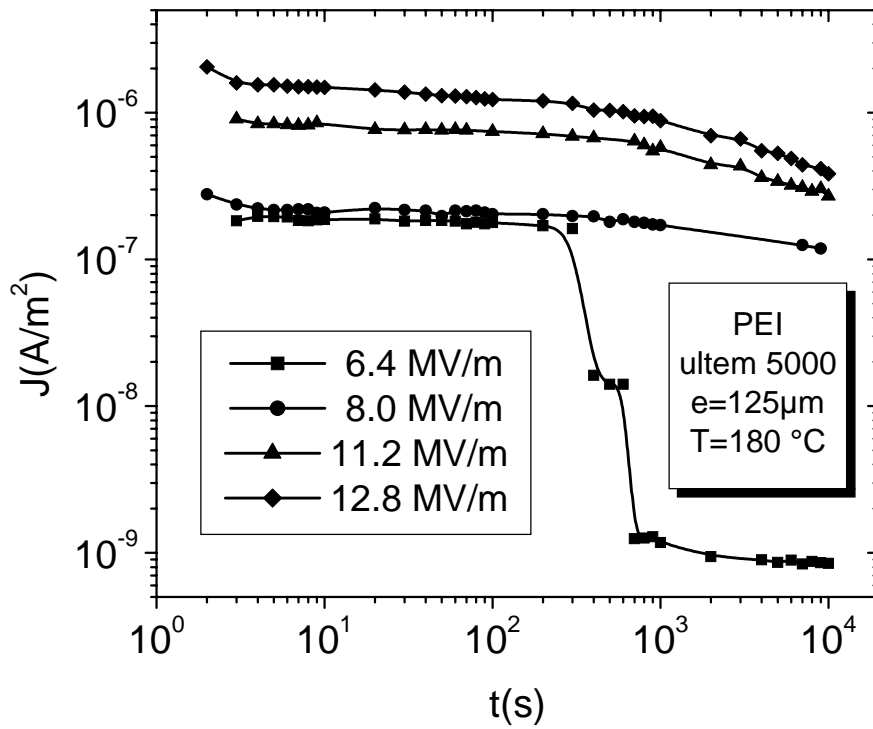


Figure IV-15 : Densité de courant de charge à  $T = 180^\circ\text{C}$

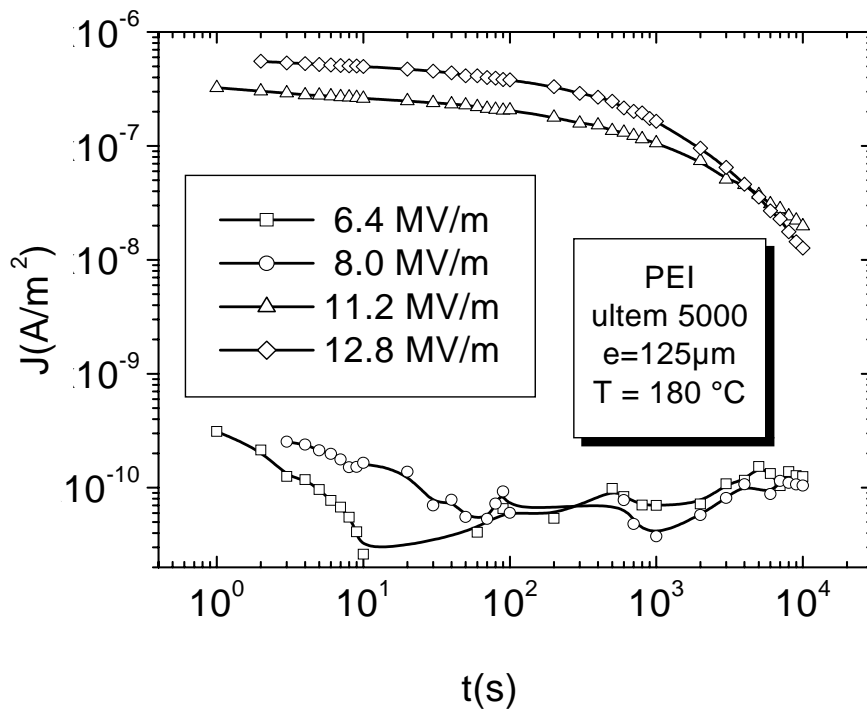


Figure IV-16 : Densité de courant de décharge à  $T = 180^\circ\text{C}$

## II. ETUDE DU REGIME PERMANENT :

Lorsqu'on polarise l'échantillon, celui-ci tend à se charger à travers un courant qui atteint après un temps relativement long (10000 s) une limite appelée courant permanent.

### II.1. Effet de la température sur le courant de conduction

La figure IV-17 représente la variation de la densité de courant en fonction de l'inverse de la température, ces courbes présentent toutes un changement de pente au niveau de la température 140°C, on dénote également une augmentation rapide de la densité de courant dans la gamme de température allant de 100°C à 140°C. Après cela, la croissance de la densité de courant devient plus lente et indépendante du champ appliqué.

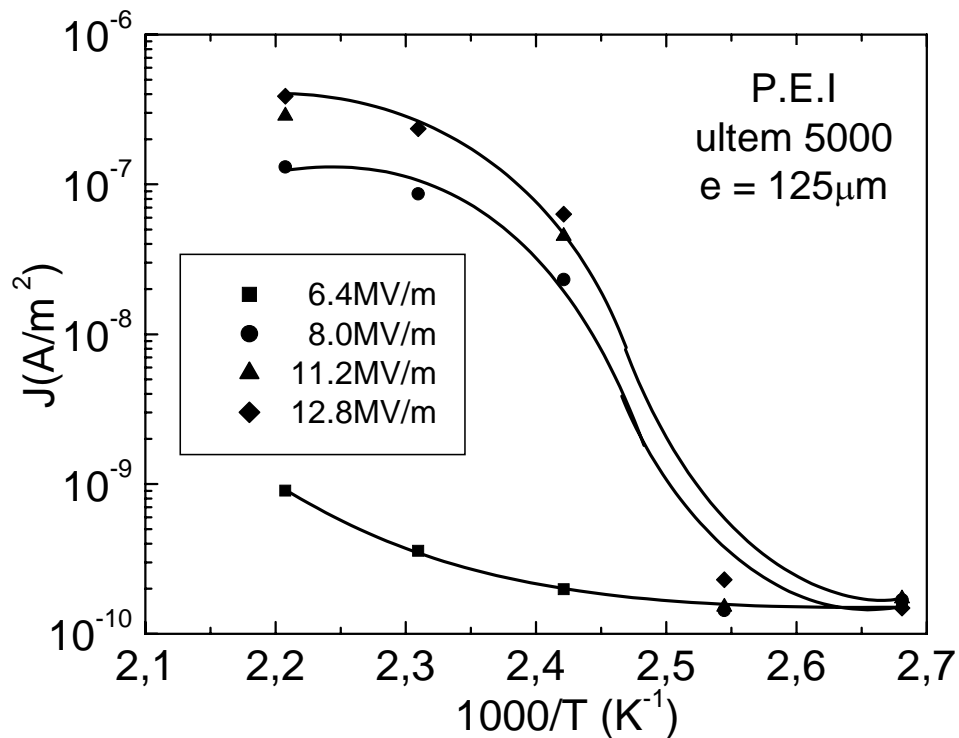
Par ailleurs, les valeurs des énergies d'activation à partir de l'équation d'Arrhenius :

$$j = j_0 \exp\left(-\frac{\Phi}{kT}\right) \quad (69)$$

sont données dans le tableau IV.2, pour des températures comprises entre 140°C et 180°C :

**Tableau IV.2**

F (MV/m)	6.4	8	11.2	12.8
Pente (°K)	3.1	3.5	3.7	3.7
$\Phi$ (eV)	0.6	0.7	0.7	0.7



**Figure IV-17** : Variation de la densité de courant en fonction de l'inverse de la température

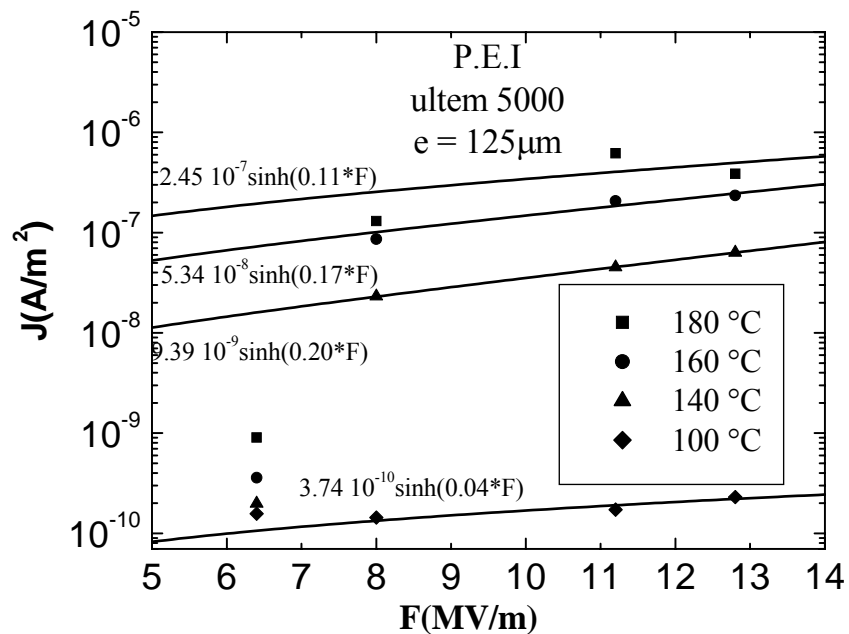
En analysant la figure IV-17, on observe un changement de pente au voisinage de  $T=140^{\circ}\text{C}$ , ce qui implique que le mécanisme de conduction est modifié dans cette gamme de température. Le calcul des pentes dans les deux domaines nous donne deux énergies d'activation. Le point de changement de pente n'est pas localisé avec exactitude en raison du manque de points expérimentaux dans cette gamme de température ; toutefois, on suppose qu'il se situe au voisinage de  $140^{\circ}\text{C}$ , ce comportement a été observé par de multiples auteurs notamment; Benzerouk [41], Tchangai [33], Benalla [42]. Par ailleurs, l'énergie d'activation reportée dans le tableau IV.2, est du même ordre que celle obtenue par Suh [43], à savoir 0.7 eV. Selon Smith [44], l'énergie d'activation relevée pour le PTDA à des températures élevées vaut 0.6 eV.

## II.2. Effet du champ électrique

Le courant de conduction de type ionique a pour expression :

$$J = 2n\lambda\nu \exp\left(-\frac{\Phi}{kT}\right) \sinh\left(\frac{eF\lambda}{2kT}\right) \quad (70)$$

Par la méthode de superposition nous avons représenté sur la figure IV-18, les courants calculés par la formule précédente, les courbes obtenues sont des droites dans la gamme des hauts champs électriques ( $F > 8$  MV/m) (figure IV-18).



**Figure IV-18** : Comparaison entre les valeurs expérimentales et celles obtenues par la méthode de superposition

Ceci nous a permis de déduire la distance intersite  $\lambda$  pour chaque température. Les valeurs des distances intersites ainsi déduites sont résumées dans le tableau IV.3 :

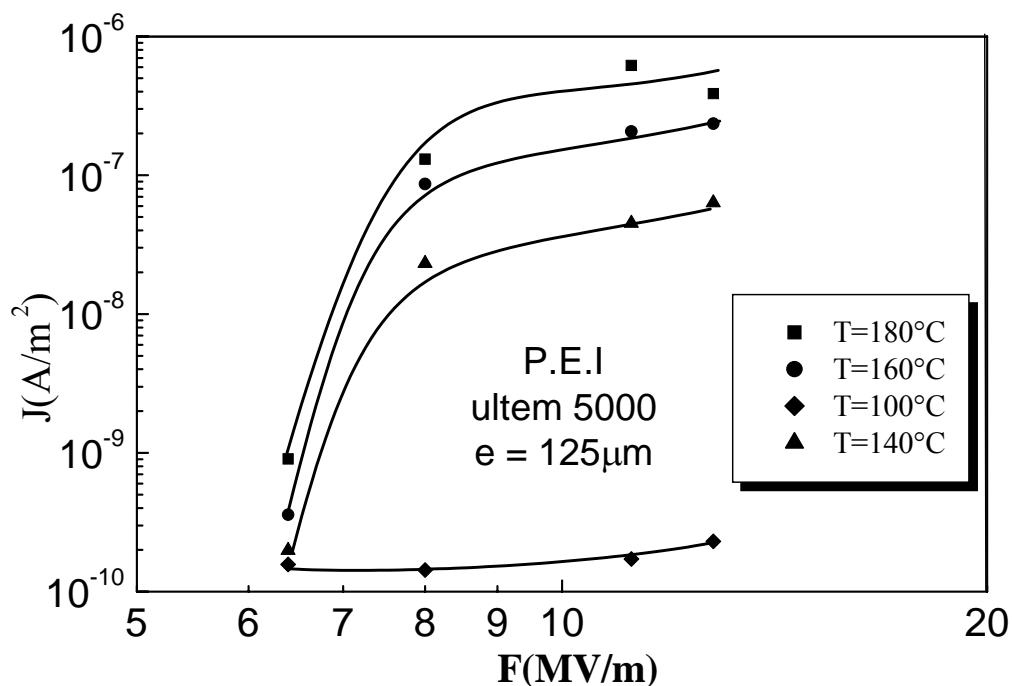
**Tableau IV.3**

$T^\circ(\text{K})$	373	413	433	453
$\lambda$ (Å)	28	144	130	89

En examinant le tableau IV-3, nous constatons une croissance de la distance intersite jusqu'à la température 140 °C, puis une décroissance à partir de cette dernière. Cependant, entre la température de 100 °C et celle de 140 °C, on remarque que la distance intersite augmente brutalement de 28 Å à 144 Å. Toute fois, les résultats obtenus sont en bon accord avec ceux donnés dans la littérature, ainsi, Lim [43] a obtenu une valeur de  $\lambda$  égale à 33.4 Å à  $T = 40$  °C et pour  $T = 50$  °C,  $\lambda$  vaut 56.9 Å. Truong [45] trouve une distance intersite égale à 20.9 Å à une température de 70 °C. Dans l'article de Sawa [46] on trouve des distances intersite données pour le polypyro-mellitimide variant de 80 à 115 Å dans une gamme de température allant de 120 °C à 180 °C.

Lorsqu'on représente sur la figure IV-19 la densité du courant en fonction du champ  $F$ , en échelle bilogarithmique, on obtient une variation quasi linéaire pour des champs supérieurs à 8 MV/m. Ce genre de comportement est observé dans un modèle limité par la charge d'espace avec pièges dont l'expression est :

$$j = A(T) F^n \quad (71)$$



**Figure IV-19** : Densité de courant en fonction du champ électrique en échelle bi-logarithmique

En ce qui concerne la courbe à  $T = 100^\circ\text{C}$ , on remarque que son allure est linéaire sur toute la gamme de champ et que sa pente est faible ; en la comparant à la caractéristique courant-tension CLCE (figure I.4), on pourrait dire quelle représente un régime ohmique puisque  $n$  tend vers 1. Cela a été également observé par Truong [45] pour le même matériau. Quant aux courbes de densités de courant à des températures plus élevées  $T > 100^\circ\text{C}$ , elles possèdent toutes des pentes supérieures à 1 ( $2 < n < 3$ ) dans la gamme de champs de 6.4 à 8 MV/m. On remarque aussi l'absence d'un régime ohmique. En se référant à la courbe CLCE (figure I.4), celles-ci deviennent comparables à une courbe en  $V^{1+1}$  décrivant un comportement caractéristique d'un polymère possédant des pièges.

La valeur élevée du champ pourrait expliquer l'absence du régime ohmique. Puis, pour des champs plus élevés la courbe prend une allure en  $V^n$  avec une pente supérieure à 2.

**Tableau IV.4**

T(°K)	373	413	433	453
$n$ ( $F > 8$ MV/m )	0.9	2.1	2.2	2.8

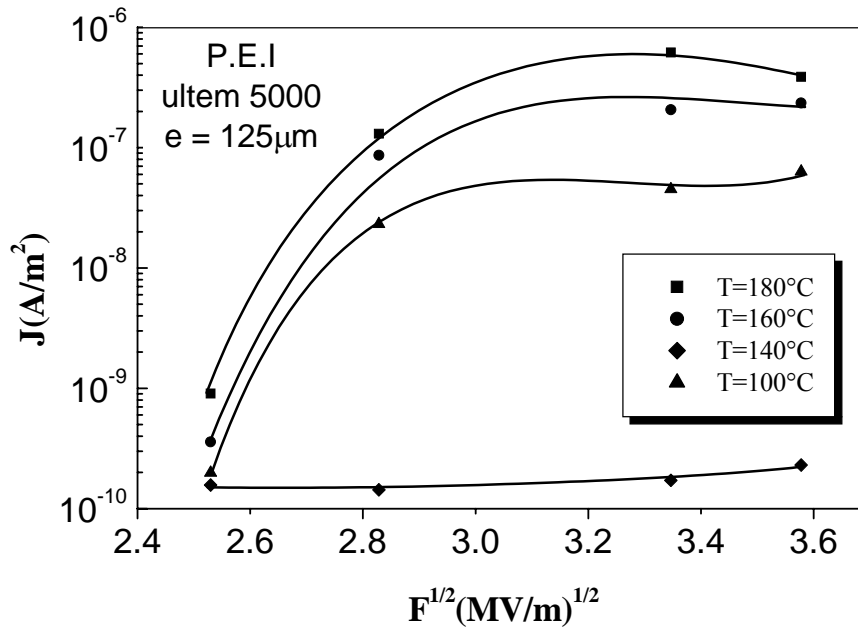
Ainsi, sur l'ensemble des résultats obtenus pour différentes températures, la valeur moyenne du facteur  $n$  est comprise entre 0.9 et 2.8.

### **II.3. Caractéristique densité de courant–racine carrée du champ électrique**

Dans le cas d'un mécanisme de type Poole Frenkel le courant a pour expression :

$$j = j_0 \exp\left(\frac{\beta (F)^{1/2}}{kT}\right) \quad (72)$$

Le tracé des  $\log(j) = f(F^{1/2})$  permet d'obtenir des droites de pentes proportionnelles à  $\beta$  pour chaque température dans la figure IV-20.



**Figure IV-20** : Densité courant en fonction de la racine carrée du champ

Les courants ne présentent pas de linéarité dans toute la gamme de champ à l'exception de 100°C. En effet, on constate une augmentation brusque du courant entre 6.4 et 8 MV/m puis une augmentation plus lente à partir de cette valeur de champ. Dans la gamme des champs supérieurs à 8MV/m, les valeurs du rapport  $\frac{\beta}{\beta_s}$  ont été calculées à partir des pentes et reportées dans le tableau IV.5.

**Tableau IV.5**

T(°K)	373	413	433	453
Pente (K <sup>-1</sup> ) (F >8 MV/m )	2.5.10 <sup>-4</sup>	5.8.10 <sup>-4</sup>	6.0.10 <sup>-4</sup>	7.4.10 <sup>-4</sup>
$\beta$ (10 <sup>-24</sup> MKSA)	2.9	7.6	8.2	10.6
$\beta/\beta_s$	0.8	2.1	2.2	2.9
$\beta/\beta_{PF}$	0.4	1.05	1.1	1.45

Toutefois, le rapport de  $\frac{\beta}{\beta_s}$  nous indique un probable effet Schottky pour des températures inférieures à 140°C ( $\frac{\beta}{\beta_s}$  tend vers 1).

Par ailleurs, la valeur de  $\beta$  obtenue à 100 °C est comparable à celle trouvée par Truong [45] à la température de 70°C qui vaut  $2.04 \cdot 10^{-24}$ , et par Lim [43] qui trouve un  $\beta$  égal à  $2.07 \cdot 10^{-24}$  pour une température de 100°C. Pour les températures comprises entre 100°C et 160°C, le rapport  $\beta/\beta_{PF}$  sera proche de l'unité. Dans cette région, le mécanisme prédominant est l'effet Poole Frenkel qui se produit dans le volume du matériau. Ce qui n'exclue pas l'injection de type Schottky apparente à 100°C. Enfin, pour des températures supérieures à 160°C le rapport  $\beta/\beta_{PF}$  est supérieur à 1 ce qui indique la manifestation d'autres mécanismes.

### III. CONCLUSION

A l'interface métal-isolant, les courants sont induits par l'injection des porteurs de charge de l'électrode vers l'isolant, lorsque le champ est abaissé sous l'effet combiné du champ appliqué et celui due à la force image. Les valeurs des coefficients calculés se sont avérées proches des coefficients caractéristiques de l'effet Schottky pour une température égale à 100 °C. Dans le volume, l'effet Poole Frenkel semble se manifester pour des températures comprises entre 140°C et 160 °C puisque le rapport  $\beta/\beta_{PF}$  tend vers 1. Pour des champs supérieures à 8MV/m et à des températures supérieures à 140°C, ce sont les ions qui gèrent la conduction. Les valeurs des distances intersites obtenues sont comprises entre 28 Å et 144 Å pour des températures supérieures à 140 °C. En effet, les mesures effectuées à l'état vitreux ont montré, par l'étude du régime permanent suivant le tracé des droites d'Arrhenius, une augmentation brusque du courant à partir de 140°C. Aux températures supérieures à 140°C, les valeurs des énergies d'activation sont de l'ordre de 0.7eV et sont comparables à celles données dans la littérature pour cet échantillon. Enfin, pour des températures inférieures à 140 °C, la variation des courants permanents avec la température est plus importante. Cela nous a permis de déceler l'existence d'une température particulière, inférieure à  $T_g$  et pour laquelle l'évolution du courant permanent semble être affectée. En effet, l'étude des caractéristiques de  $Log(J)-Log(F)$  a montré l'apparition d'un phénomène de charge d'espace à partir de 140°C. Par ailleurs, les résultats établis suite à l'étude du régime transitoire sont en bon accord avec les conclusions faites lors de l'étude du régime permanent.

## CONCLUSION GENERALE

Nous avons tenté dans le présent travail de déterminer la nature des mécanismes qui régissent le transport des charges responsables de la conduction dans le polyétherimide. Pour cela, des mesures de courant de charge et de décharge électrique ont été effectuées sur des films de ULTEM 5000 de 125  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, pour des champs électriques variant de 6.4 à 12.8 MV/m.

Plusieurs modèles de conduction ont été testés.

A l'issue de cette étude nous avons pu faire les remarques suivantes :

Le courant permanent augmente avec la température et le champ électrique.

A l'interface métal isolant, le courant de type Schottky apparaît à une température bien déterminée.

A l'intérieur du matériau, dans la gamme des températures supérieures à 140°C et pour des champs supérieurs à 8MV/m, plusieurs effets se sont manifestés en même temps, à savoir, un mécanisme de conduction de type Poole Frenkel et un courant de conduction de type ionique. Toute fois, l'estimation de l'écart entre les courbes expérimentales et les courbes théoriques dans le cas du modèle de courant de type ionique était moins important. Nous dirons donc que ce dernier reste le plus probable dans cette gamme de température.

La variation des courbes courant-tension, a révélé l'existence d'un courant due à une charge d'espace qui pourrait être d'origine ionique.

Enfin, nous avons remarqué que le régime permanent est caractérisé par une dépendance avec la température divisée suivant deux régions :

La première pour des températures inférieures à 140°C et la seconde pour des températures supérieures à 140°C, cela a permis de conclure de l'existence d'une température égale à 140°C, qui semble modifier la variation du courant permanent, bien que celle-ci soit éloignée de la température de transition vitreuse.

Concernant le régime transitoire, l'étude des courants en fonction du temps a permis de révéler l'apparition d'un phénomène de charge d'espace pour des températures supérieures à 140°C, puisque les courants de charge et de décharge dans

cette gamme de température ne sont plus superposables, ce qui rejoint les résultats établis lors de l'étude du régime permanent.

En perspective, il serait intéressant de poursuivre ce travail par une étude aux voisinages de la température critique et de pouvoir caractériser nos matériaux par d'autres techniques. D'autre part, la simulation numérique des courants transitoires de charge et de décharge à partir d'un modèle, permet d'apporter des renseignements intéressants sur le comportement de ces matériaux.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1]. J. Wiley  
Physics of semi conductor devices, p.364, New. York, (1969);
- [2]. R. H. Fowler et L. Nordheim  
Proc.R.Soc. ; A119, 173, (1928);
- [3]. R. Coelho  
Propriétés diélectriques des matériaux isolants, édition Hermes, (1994);
- [4]. A. Toureille  
Thèse de Doctorat d'état, UMP, Languedoc, Montpellier (1974);
- [5]. A. Rose  
Phys.Rev., vol.125, N°.4, p1177-1191, (1962);
- [6]. R. J. Muller  
Solid state Electronics, 6, 25, (1963);
- [7]. J. Goldewski et J. Kalinowski  
J.Appl.Phys.vol.28, p.24-38, (1989);
- [8]. M. A. Lampert.  
*Volume controlled current injection insulators*, Rep. progression in physics,  
p.27-329, (1964);
- [9]. H.P.D. Lanyon  
Phys.Rev, 30, N°1, p.27-329, (1964);
- [10]. N. F. Mott  
Phil.Mag., 19, 835, (1969);
- [11]. Y. Segui  
Thèse de Doctorat d'état, UPS, Toulouse, (1974);
- [12]. H. Seki  
Phys.Rev.54, B2, 4877, (1970);
- [13]. G. Simmons  
Phys.Rev.155, 657, (1967);
- [14]. P. Mark et T. E. Hartman  
J.Appl.Phys.39, 2163, (1968);

- [15]. J. R. Yeagan et H. I. Taylor  
J.Appl.Phys.; 39, 5600, (1968);
- [16]. J. Frenkel  
Phys.Rev.54, 647, (1938);
- [17]. R. M. Hill  
Phil. Mag., 23, 509, (1971);
- [18]. M. Saidi  
Thèse de Doctorat d'état, USTHB,(1996);
- [19]. T. J. Lewis, D. M. Taylor,  
J. Appl. Phys.; vol. 4, p.1346-1357, (1971);
- [20]. J. J. O'Dwyer  
The theory of electrical conduction and breakdown in solid dielectrics.  
Clarendon press. Oxford.(1973);
- [21]. D. R. Lamb  
Electrical conduction, Mechanisms in thin insulating film, p.15, Methuen's  
Monographs on physical subjects, (1965);
- [22]. M. J. Dignam  
Oxides and oxides films, p.91, JVDiggle.ed., M.Dekker inc.(1972);
- [23]. C. Bean, J. C. Fisher, D. A. Wermileyer  
Phys.Rev.101, 501, (1956);
- [24]. T. Myamoto et Shibayama  
J.Appl.Phys., N°.12, vol.44, (1973);
- [25]. H. J. Wintle  
J.Non-crist.solide, 15, p.471-486, (1974);
- [26]. P. Debye  
Polar molecules chemical, Catalog Company, New-York, (1929);
- [27]. V. V. Daniel  
Dielectric relaxation, Academic press, London, chap6, (1967);
- [28]. J. Curie  
Annales de chimie physique 8, p.203, (1889);

- [29]. H. J. Wintle  
IEEE trans. Electr. Insul., EI-25, 27, (1990);
- [30]. A. Many et g. Rakavy  
Phys.Rev, 126, (1962);
- [31]. R. Coelho  
Revue de physique appliquée, N°.18, p.137, (1983);
- [32]. J. Lowell  
J.Appl.Phys., vol.23, p.205-21, (1990);
- [33]. T. Tchangai  
Thèse de Doctorat d'état, UPS, Toulouse, (1988);
- [34]. M.Saidi  
Thèse de magistère USTHB (1985) ;
- [35]. Les résines ultem polyetherimide, brochure de General Electric plastics,  
(1998);
- [36]. H. Zaidi  
Techniques du vide, UTHB, (polycopié), Alger, (1990);
- [37]. Encyclopedia of polymer science and technology, (1986);
- [38]. I. Merdas  
Séminaire, CDM Evry, (2000) ;
- [39]. M. Mudarra  
J.Appl.Phys., N°.8, vol.88, p.4807-12, (2000);
- [40]. Les polymères thermostables, la recherche, N°.226, vol.21, (1990)
- [41]. D. Benzerouk,  
Thèse de magistère USTHB (1996);
- [42]. H. Benalla  
Thèse de Doctorat d'ingénieur, INP, Toulouse, (1984);
- [43]. Suh-KS, J. H. Ham et K. J. Lim  
J.Appl.Phys., N°.11, vol.80, p.6333-6335, (1996);
- [44]. F. W. Smith et al  
J.Electronic material, N°.93, vol.16, (1987);

[45]. V. H. Truong

Thèse de Doctorat d'état, UPS, Toulouse, (1999);

[46]. G. Sawa et al

Jap.J.Appl.Phys., 19, 453, (1983);