

**REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE  
SCIENTIFIQUE  
UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE  
"HOUARI BOUMEDIENE "**

**FACULTE DE PHYSIQUE**



**MEMOIRE**

**Présenté pour l'obtention du diplôme de MAGISTER**

**EN PHYSIQUE**

**Spécialité: Physique des Matériaux**

**Par: M<sup>r</sup> BENAMER Ali**

**Sujet**

**Contribution à l'étude des phénomènes aux interfaces des diélectriques organiques utilisés dans les systèmes électriques.**

**Soutenu publiquement le 10 / 09 / 2012, devant le jury composé de :**

|                                |                         |           |                       |
|--------------------------------|-------------------------|-----------|-----------------------|
| M <sup>me</sup> A. RAHAL       | Professeur              | à l'USTHB | Présidente            |
| M <sup>me</sup> N.SAIDI-AMROUN | Professeur              | à l'USTHB | Directrice de mémoire |
| M <sup>lle</sup> B. ALLILI     | Maitre de conférences/A | à l'USTHB | Examinatrice          |
| M <sup>R</sup> S. BOUAZABIA    | Maitre de conférences/A | à l'USTHB | Examineur             |
| M <sup>lle</sup> S. BERDOUS    | Maitre de conférences/B | à l'USTHB | Invitée               |



## Remerciements

*Le présent mémoire est le fruit du travail réalisé au laboratoire de physique des matériaux au sein de l'équipe diélectrique de la faculté de physique.*

*Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à M<sup>lle</sup>: Sakina BERDOUS, maître de conférences à l'USTHB, pour avoir suivi ce travail.*

*J'exprime aussi mes remerciements à M<sup>me</sup>: Nadia SAIDI-AMROUN professeur à l'USTHB, pour d'avoir accepté de diriger ce travail. Je la remercie, vivement, de la confiance quelle m'a accordée et d'avoir mis à ma disposition ses compétences scientifiques.*

*J'adresse mes remerciements à M<sup>me</sup>: Abba. RAHAL, professeur à l'USTHB, qui m'a fait l'honneur de présider ce jury.*

*Mes remerciements vont aussi à Monsieur S. BOUAZABIA, maître de conférences à l'USTHB pour avoir accepté de faire partie du jury.*

*J'exprime aussi mes remerciements à M<sup>lle</sup> Alili. BAYA maître de conférences à l'USTHB, pour avoir accepté d'examiner ce travail.*

## LISTE DES FIGURES

|                 |            |  |
|-----------------|------------|--|
| <b>Chapitre</b> | <b>I</b>   | <b>MECANISMES DE CONDUCTION ELECTRIQUE</b>   |
| Figure          | I.1        | Diagramme de bande d'un isolant parfait (a) et d'un isolant imparfait (b)  |
| Figure          | I.2        | Configuration des bandes d'énergie à l'interface métal/isolant dans le cas d'une émission Schottky                                     |
| Figure          | I.3        | Configuration des bandes d'énergie à l'interface métal/isolant dans le cas de l'effet tunnel   |
| Figure          | I.4        | les effets Poole-Frenkel et Poole  |
| Figure          | I.5        | Caractéristique courant tension dans le cas CLCE   |
| Figure          | I.6        | Potentiel cristallin avec et sans champ électrique   |
| Figure          | I.7        | Vue schématique du transport des ions (Volume libre)   |
| Figure          | I.8        | Représentation schématique des différents types de polarisation  |
| Figure          | I.9        | Courant transitoire d'absorption   |
| <b>Chapitre</b> | <b>II</b>  | <b>MATERIAU ET DISPOSITIF EXPERIMENTAL</b>   |
| Figure          | II.1       | Formule chimique du PEN  |
| Figure          | II.2       | Schéma synoptique du dispositif expérimental de mesure de courant  |
| Figure          | II.3       | Dimensions des électrodes  |
| Figure          | II.4       | Protocole de mesure de courant à température ambiante  |
| Figure          | II.5       | Schéma du principe de l'analyse enthalpique différentielle   |
| <b>Chapitre</b> | <b>III</b> | <b>RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSIONS</b>  |
| Figure          | III.1      | Evolution du courant de charge au cours du temps, à la température ambiante et pour différentes valeurs du champ électrique appliqué   |
| Figure          | III.2      | Evolution du courant de décharge au cours du temps, à la température ambiante et pour différentes valeurs du champ électrique appliqué |

|                 |           |   |
|-----------------|-----------|---|
| Figure          | III.3     | Evolution des courants de charge et de décharge ou cours du temps à champ électrique $Fa=4Mv/m$   |
| Figure          | III.4     | Evolution des courants de charge et de décharge ou cours du temps à champ électrique $Fa=12Mv/m$  |
| Figure          | III.5     | Courants isochrones à différents instants en fonction du champ électrique   |
| Figure          | III.6     | Evolution du courant de décharge au cours du temps, à la température ambiante et pour différentes valeurs du champ électrique appliqué  |
| Figure          | III.7     | Evolution du courant de charge au cours du temps, à la température ambiante et pour différentes valeurs du champ électrique appliqué  |
| Figure          | III.8     | Courant isochrones à différents instants en fonction du champ électrique  |
| Figure          | III.9     | Evolution des courants de charge et de décharge au cours du temps à champ électrique $Fa=16MV/m$  |
| Figure          | III.10    | Caractérisation I(V) du polyéthylène naphthalate semi-cristallin 25 et 50 $\mu m$   |
| Figure          | III.11    | Evolution du courant de charge au cours du temps, à la température ambiante et pour différentes valeurs du champ électrique appliqué à travers un film PEN : 25 et 50 $\mu m$ |
| Figure          | III.12    | Spectre infra rouge global du PEN entre 500 $cm^{-1}$ et 2000 $cm^{-1}$   |
| Figure          | III.13    | Schéma de la maille cristalline ( $\alpha$ ) du PEN   |
| Figure          | III.14    | Thermogramme du PEN 50 $\mu m$  |
| Figure          | III.15    | Thermogramme du PEN 25 $\mu m$  |
| Figure          | III.16    | Variation de l'indice de perte en fonction de la fréquence, dans le PEN 50 $\mu m$ et à différentes valeurs du champ électrique   |
| Figure          | III.17    | Variation de l'indice de perte, expérimental et théorique, en fonction de la fréquence, dans le PEN 50 $\mu m$ et à différentes valeurs du champ électrique                   |
| Figure          | III.18    | Variation de l'indice de pertes diélectriques en fonction de la fréquence, dans le PEN 25 $\mu m$ et à différentes valeurs du champ électrique                                |
| Figure          | III.19    | Variation de l'indice de perte, expérimental et théorique, en fonction de la fréquence, dans le PEN 25 $\mu m$ et à différentes valeurs du champ électrique                   |
| <b>Chapitre</b> | <b>IV</b> | <b>MODELISATION NUMERIQUE DES COURANTS DE CHARGE</b>  |
| Figure          | IV.1      | Echantillonnage du domaine d'étude  |

- Figure IV.2 Profil du champ électrique : (a)  $A_i = 10^{-6}$  A/m<sup>2</sup>, (b)  $A_i = 10^{-3}$  A/m<sup>2</sup> et (c)  $A_i = 10^0$  A/m<sup>2</sup>
- Figure IV.3 Evolution de la densité de courant : (a)  $A_i = 10^{-6}$  A/m<sup>2</sup>, (b)  $A_i = 10^{-3}$  A/m<sup>2</sup> et (c)  $A_i = 10^0$  A/m<sup>2</sup>
- Figure IV.4 Répartition de la charge d'espace au cours du temps
- Figure IV.5 Profil du champ électrique au cours du temps
- Figure IV.6 Effet de la mobilité sur la densité de courant
- Figure IV.7 Répartition de la charge d'espace au cours du temps
- Figure IV.8 Profil du champ électrique au cours du temps
- Figure IV.9 Evolution de la densité de courant au cours du temps et à différentes valeurs de  $C$

## Liste des symboles

|                      |  |
|----------------------|--|
| $\alpha$             | Facteur de correction compris entre 0 et 1.                                  |
| $\alpha_1$           | Constante d'atténuation de la fonction d'onde électronique du site localisé. |
| $\beta_s$            | Constante de Schottky.   |
| $\beta_{FN}$         | Constante de Fowler-Nordheim.  |
| $\beta_{PF}$         | Constante de Poole-Frenkel.  |
| $\chi$               | Affinité électronique.   |
| $\varepsilon$        | Permittivité diélectrique.   |
| $\varepsilon^*$      | Permittivité complexe.   |
| $\varepsilon_s$      | Permittivité à basse fréquence.  |
| $\varepsilon_\infty$ | Permittivité à haute fréquence.  |
|                      | Hauteur de la barrière de potentiel.   |
|                      | Hauteur de la barrière de potentiel sans le champ électrique.                |
|                      | Abaissement de la hauteur de barrière de potentiel.                          |
|                      | Hauteur de la barrière de potentiel.   |
| $\gamma$             | Facteur numérique de correction.   |
| $\Gamma$             | Fonction eulérienne de deuxième espèce.                                      |
| $\eta$               | Constant.  |
| $\lambda$            | Distance entre deux sites.   |
| $\mu$                | Mobilité des charges d'espace.   |
| $\nu$                | Fréquence entre deux sites.  |
| $\nu_{ph}$           | Fréquence de vibration des phonons qui participent au saut.                  |
| $\theta$             | Rapport des charges d'espace.  |
| $\rho$               | Densité des charges d'espace.  |
| $\sigma$             | Conductivité en courant continu.   |
| $\tau$               | Temps de relaxation des dipôles.   |
| $\omega$             | Pulsation de champ appliqué.   |

|                       |  |
|-----------------------|--|
| $A$                   | Constante de Richardson-Duschmann.                                     |
| $A_s$                 | Coefficient d'injection.   |
| $A(t)$                | Paramètre dépendant de la température.                                 |
| $a$                   | Distance entre deux positions d'équilibre.                             |
| $C_p$                 | Chaleur spécifique à pression constante.                               |
| $C_0$                 | Capacité géométrique de l'échantillon.                                 |
| $C_n$                 | Probabilité de capture.  |
| $D_n$                 | Coefficient de diffusion.  |
| $E_j$                 | Hauteur de la barrière de potentiel.                                   |
| $E_g$                 | Largeur de la bande d'énergie interdite.                               |
| $E_C$                 | Niveau d'énergie de la bande de conduction.                            |
| $E_F$                 | Niveau de fermi.   |
| $e$                   | Charge élémentaire.  |
| $F$                   | Champ électrique.  |
| $F_a$                 | Champ électrique appliqué.   |
| $h$                   | Constante de Planck.   |
| $I$                   | Courant.   |
| $I_a$                 | Courant d'absorption.  |
| $I_r$                 | Courant de résorption.   |
| $I_c(t)$              | Courant de charge.   |
| $I_d(t)$              | Courant de décharge.   |
| $I_p$                 | Courant permanent.   |
| $J$                   | Densité de courant.  |
| $J_\infty$            | Densité de courant stationnaire.                                       |
| $J(t)$                | Densité de courant en fonction du temps.                               |
| $J(\dot{t})_{charge}$ | Courant de charge observé à un temps $t$ après l'application du champ. |
| $K$                   | Constante de Boltzmann.  |

|           |   |
|-----------|---|
| $K(F)$    | Facteur pré exponentiel dépendant du champ électrique.  |
| $m$       | Masse de l'électron.  |
| $m_*$     | Masse effective.  |
| $N(E)$    | Densité d'état d'énergie.   |
| $N_{Ec}$  | Densité d'états énergétiques, par unité d'énergie, au voisinage du bas de la bande de conduction. |
| $N_p$     | La densité des pièges.  |
| $n$       | Concentration des porteurs de charges.  |
| $n_0$     | Concentration initiale de porteurs libres.  |
| $P$       | Pression.   |
| $q$       | Charge élémentaire.   |
| $T$       | Température de l'échantillon.   |
| $T_g$     | Température de transition vitreuse.   |
| $T_c$     | Température de cristallisation.   |
| $T_f$     | Température de fusion.  |
| $T_R$     | Température de référence.   |
| $T_g$     | Température de transition vitreuse.   |
| $t_p$     | Temps de piégeage.  |
| $V$       | Tension ou potentiel électrique.  |
| $V_{tr}$  | Tension de transition.  |
| $V_{TFL}$ | Tension correspond au remplissage de tous les pièges.   |
| $V_i^*$   | Volume critique requis pour le transport des ions.  |
| $V_f$     | Volume libre.   |
| $W$       | Energie de dissociation.  |
| $\chi$    | Variable position.  |

# Sommaire

|  |    |
|--|----|
| <b>INTRODUCTION GENERALE</b> .....   | 2  |
| <b>CHAPITRE I : MECANISMES DE CONDUCTION ELECTRIQUE</b> .....                    | 3  |
| 1 INTRODUCTION.....  | 5  |
| 2 MECANISMES DE CONDUCTION ELECTRIQUE.....                                       | 6  |
| 2-1 Mécanismes de conduction régis par l'interface métal-isolant.....            | 6  |
| 2-1-1 Effet Schottky.....  | 6  |
| 2-1-2 Effet Fowler-Nordheim.....   | 7  |
| 2-2 Mécanismes de conduction régis par le volume .....                           | 8  |
| 2-2-1 Effet Poole-Frenkel.....   | 8  |
| 2-2-2 Conduction électrique par saut.....  | 10 |
| 2-2-3 Courant limité par charge d'espace (CLCE).....                             | 11 |
| 2-2-4 Conduction ionique.....  | 17 |
| 2-2-5 Mécanismes dipolaire.....  | 20 |
| 2-2-5-1 Origine moléculaire de la polarisation.....                              | 20 |
| a Polarisation électronique et ionique.....                                      | 20 |
| b Polarisation dipolaire.....  | 20 |
| c Polarisation inter-faciale (Maxwell-Wagner).....                               | 21 |
| d Polarisation par charge d'espace.....  | 21 |
| 2-2-5-2 Expression des courants de polarisation et de dépolarisation isotherme.. | 22 |
| 2-2-6 Réponse fréquentielle : approximation de HAMON.....                        | 24 |
| 3 CONCLUSION.....  | 26 |
| 4 Bibliographie.....   | 28 |
| <b>CHAPITRE II : MATERIAU ET DISPOSITIF EXPERIMENTAL</b> .....                   | 30 |
| 1 Le matériau de l'étude.....  | 31 |
| 2 Dispositif expérimental.....   | 32 |
| 2-1 Cellule de mesure.....   | 34 |
| 2-2 Circuit d'alimentation et de mesure de courant.....                          | 35 |
| 2-3 Méthode de mesure.....   | 35 |

|       |  |    |
|-------|--|----|
| 3     | Technique expérimentales.....  | 36 |
| 3-1   | L'analyse enthalpique différentielle.....                              | 37 |
| 3-1-1 | Principe de mesure.....  | 37 |
| 3-1-2 | Protocole de mesure.....   | 38 |
| 3-2   | Spectroscopie infra rouge à transformée de Fourier (FTIR).....         | 38 |
| 3-2-1 | Principe.....  | 38 |
| 3-2-2 | Protocole expérimental.....  | 39 |
| 4     | Bibliographie.....   | 40 |
|       | <b>CHAPITRE III: RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSIONS</b> .....      | 42 |
| 1     | Introduction.....  | 43 |
| 2     | Conduction électrique.....   | 43 |
| 2-1   | Etude du régime transitoire.....                                       | 45 |
| 2-1-1 | Effet du champ électrique.....   | 45 |
| 2-1-2 | Effet de l'épaisseur.....  | 48 |
| 3     | Les pertes diélectriques.....  | 57 |
| 3-1   | Effet du champ électrique.....   | 58 |
| 3-2   | Effet de l'épaisseur .....   | 60 |
| 4     | Conclusion.....  | 62 |
| 5     | Bibliographie.....   | 63 |
|       | <b>CHAPITRE VI : MODELISATION NUMERIQUE DES COURANTS DE CHARGE</b> ... | 67 |
| 1     | Introduction.....  | 68 |
| 2     | Modèle physique.....   | 68 |
| 3     | Simulation numérique.....  | 69 |
| 3-1   | Discrétisation du problème.....  | 69 |
| 3-2   | Conditions initiales et conditions aux limites.....                    | 70 |
| 3-3   | Méthode de résolution.....   | 71 |
| 4     | Résultats et discussions.....  | 72 |
| 4-1   | Effet de la densité de porteurs injectés.....                          | 72 |
| 4-2   | Effet de la mobilité.....  | 77 |
| 4-3   | Effet du coefficient d'extraction.....                                 | 78 |

|                                 |    |
|---------------------------------|----|
| 5 Conclusion.....               | 81 |
| 6 Bibliographie.....            | 82 |
| <b>CONCLUSIO GENERALE</b> ..... | 84 |
| <b>ANNEXE</b> .....             | 85 |

# **INTRODUCTION GENERALE**

---

## INTRODUCTION GENERALE

Les matériaux polymères trouvent un champ d'application de plus en plus important dans l'industrie et notamment dans le domaine de l'électronique et du génie électrique, dont le plus utilisé des thermoplastiques dans la fabrication des condensateurs, est le (polyéthylène-2,6-naphtalène dicarboxylate) (PEN) (isolant de classe F), en raison de ses propriétés thermique et mécanique remarquables et de sa facilité de mise en œuvre en film biétiré très mince ( $<0,9\mu\text{m}$ ), autorisant ainsi la miniaturisation des condensateurs.

PEN est d'obtenir un meilleur endroit reconnaissance comme un concurrent de l'une des meilleurs solides diélectriques organiques tels que le PET (polyéthylène téréphtalate). Aujourd'hui, l'enquête associée avec le PEN est complétée par l'étude des films mélangés avec d'autres polymères à haute performance, c'est-à-dire PET et PEI et l'étude de la modification de la structure chimique, principalement triméthylène (PTN) et butylènes (PBN) au lieu de l'éthylène. Afin de faire baisser les prix et, en même temps, maintenir un rendement élevé.

PEN est un film étiré biaxialement orienté avec une grande rigidité, résistance mécanique élevée, à faible retrait thermique et une résistance chimique élevée. C'est précisément l'objectif de son utilisation pour profiter de ces excellentes caractéristiques physiques, thermiques et chimiques.

En plus de leur diélectrique et caractéristiques isolantes.

Le travail présenté dans ce mémoire est une contribution à l'étude de la conduction électrique dans le polyéthylène naphthalate lorsqu'il est soumis à une contrainte électrique. A travers cette étude, nous avons déterminé le rôle que peut avoir l'interface métal/diélectrique dans la génération et la circulation du courant.

Le premier chapitre tentera de passer en revue ce qui peut distinguer, du point de vue de sa conductivité, un isolant réel de l'isolant parfait, ne présentant strictement aucune conduction électrique dans un champ appliqué constant. Ainsi, les différentes théories sur la conduction à l'interface et dans le volume, seront rappelées.

Le second chapitre est consacré à la description, d'une part, de l'échantillon utilisé, et qui nous a été fourni par Dupont de Nemours, et d'autre part, du dispositif et techniques expérimentales utilisés dans la caractérisation de la réponse du PEN aux contraintes qui lui sont appliquées.

Les résultats de mesures des courants, pour des tensions électriques comprises entre 150 et 900 Volts à température ambiante, feront l'objet du troisième chapitre.

## Introduction générale

---

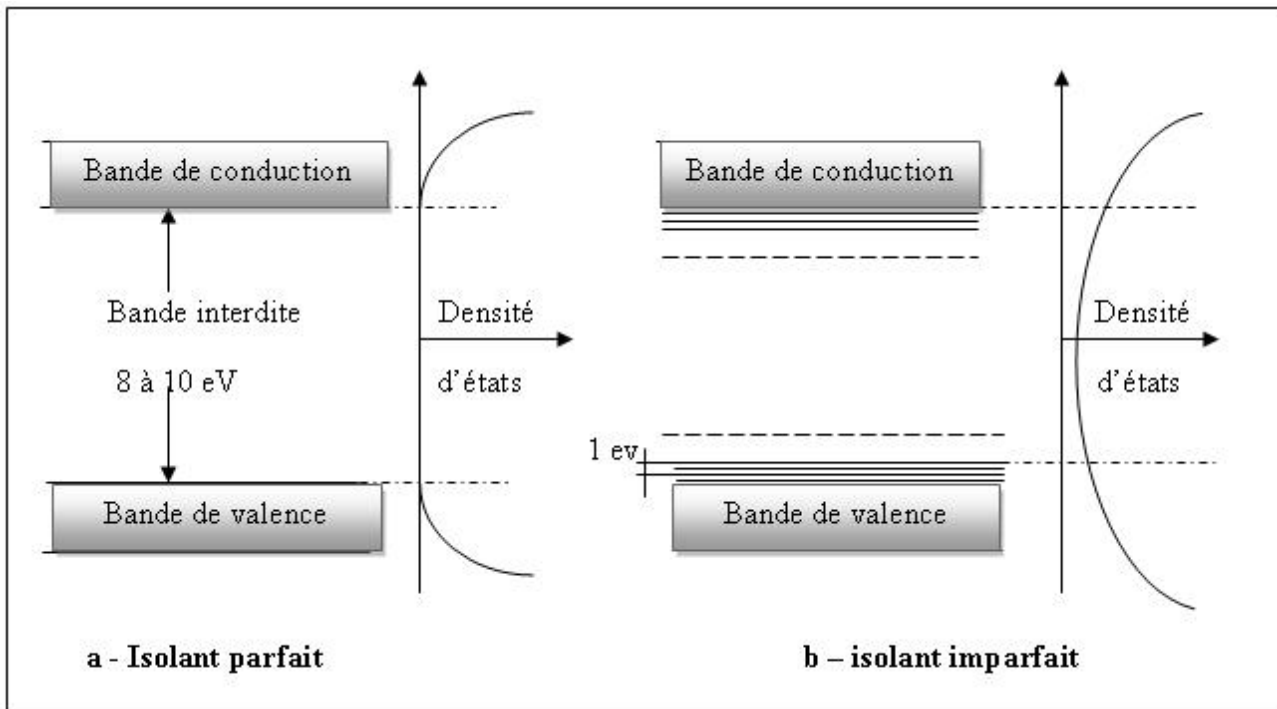
Dans le dernier chapitre un modèle théorique basé sur les phénomènes de transport et d'accumulation de charges au niveau des interfaces (métal/diélectrique) a été proposé. La simulation de ces courants par la résolution numérique des équations qui gouvernent la circulation du courant électrique de charges, a été effectuée en fonction des paramètres tels que: la mobilité, le coefficient d'injection et le coefficient d'extraction. Ce calcul, nous a permis de déduire le profil du champ électrique et la répartition de la charge d'espace dans tout le matériau.

**CHAPITRE I**  
**MECANISMES DE CONDUCTION ELECTRIQUE**

---

## 1. Introduction

Dans une structure amorphe il n'y a pas d'ordre à longue portée ; toutefois, on admet qu'il existe un ordre à très courte portée, permettant ainsi de conserver les concepts de la théorie des bandes. Les états délocalisés des bandes de valence et de conduction se prolongent dans la bande interdite en états de plus en plus localisés appelés « queue de bande ». A cela il faut ajouter, la présence de défauts ou d'impuretés qui contribuent à d'autres états localisés dans la bande interdite. Ces états jouent un rôle primordial dans la conduction électrique des polymères. Le diagramme des densités d'états pour un isolant avec et sans désordre structural, en fonction de l'énergie, est schématisé sur (la figure I.1) [1].



**Figure I. 1:** Diagramme de bandes d'un isolant parfait (a) et d'un isolant réel (b) [1]

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

Dans ce chapitre nous représentons la conductivité des isolants et nous traitons les mécanismes physiques de base qui s'appliquent au transport de charges. Les processus sont largement connus mais ces rappels permettront de mieux comprendre les phénomènes entrant en jeu.

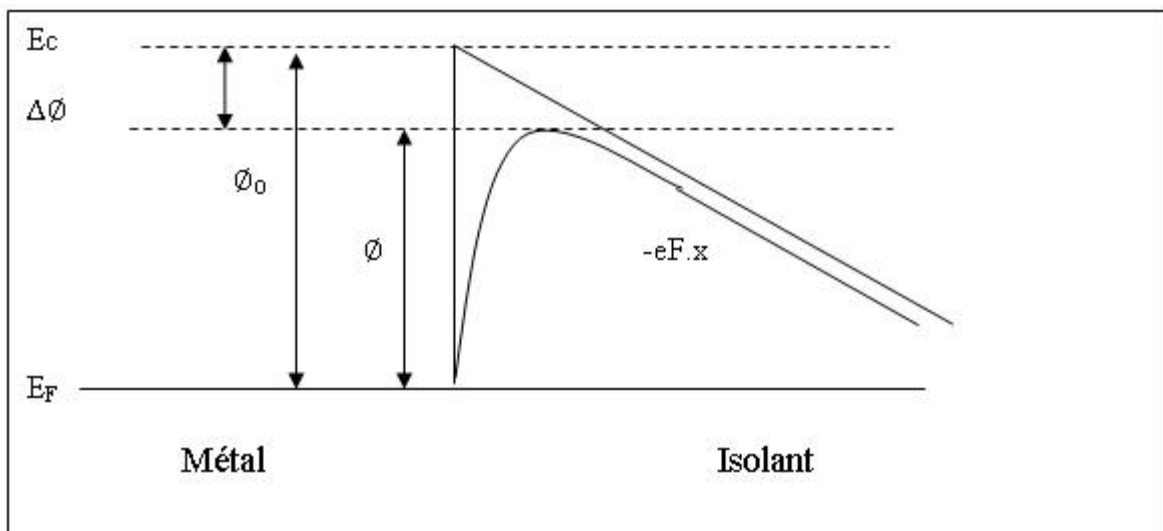
## 2. Mécanismes de conduction électrique

### 2.1 Mécanismes de conduction régis par l'interface métal-isolant

#### 2.1.1 Effet Schottky

C'est l'émission thermo ionique d'un porteur à l'interface métal-isolant sous l'action combinée du champ électrique appliqué et du champ associé à la force image (Figure I. 2). Cette force image que subit l'électron lorsqu'il est extrait du métal à la distance  $x$  de l'interface, donc à la distance  $2x$  de son image dans le métal, vaut :

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



**Figure I. 2:** Configuration des bandes d'énergie à l'interface métal/isolant

dans le cas d'une émission Schottky [2].

l'effet de la force image est d'abaisser de  $\Delta\Phi$ , la hauteur  $\Phi_0$  de la barrière, qui est la différence entre l'énergie de Fermi  $E_F$  du métal et l'affinité électronique  $\chi$  du diélectrique.  $\Delta\Phi$  vaut [2] :

$$\Delta\Phi = \left( \frac{eF}{4\pi\epsilon} \right)^{1/2} \quad (I-2)$$

Avec  $\epsilon_r = \epsilon_0 \epsilon_r$   $\epsilon_r$  : permittivité relative

$$\epsilon_r = \epsilon_0 - \beta_s \sqrt{F} \quad (1 - 3)$$

$$\beta_s = \sqrt{e^3 / 4\pi\epsilon} \quad (1 - 4)$$

Où  $\beta_s$  est la constante de Schottky

Où  $\phi_0$  hauteur entre le niveau de Fermi du métal et la bande de conduction du diélectrique.

L'expression de la densité de courant est simple si l'on suppose que le champ est uniforme dans le matériau, c'est-à-dire que les porteurs de charges injectés dans l'isolant sont évacués sans zone où ils peuvent rester piégés, la densité de courant s'exprime alors par [3]:

$$J = AT^2 \exp\left\{ \frac{-1}{KT} (\phi_0 - \beta_s \sqrt{F}) \right\} \quad (1 - 5)$$

K : la constante de Boltzmann

T : la température de l'échantillon

Avec  $A = 4\pi me(K^2/h^3) = 12 \cdot 10^5 A/(m.K^2)$  : Constante de Richardson –Duschman

Ce modèle ne donne pas lieu à un régime transitoire et est très dépendant de la température.

## 2.1.2 Effet Fowler-Nordheim

Ce mécanisme traduit le passage des charges à travers la barrière de potentiel selon le mécanisme de l'effet tunnel. Cet effet ne se manifeste que pour des champs très intenses et à basse température, Il est représenté sur la Figure (I. 3) par les voies 2 et 3. La voie 2 correspond à un effet tunnel pur, et le courant obtenu est indépendant de la température. Dans ces conditions, l'expression de la densité de courant est la suivante :

$$J = AF^2 \exp\left\{ \frac{-\beta_{FN}}{F} \right\} \quad (1 - 6)$$

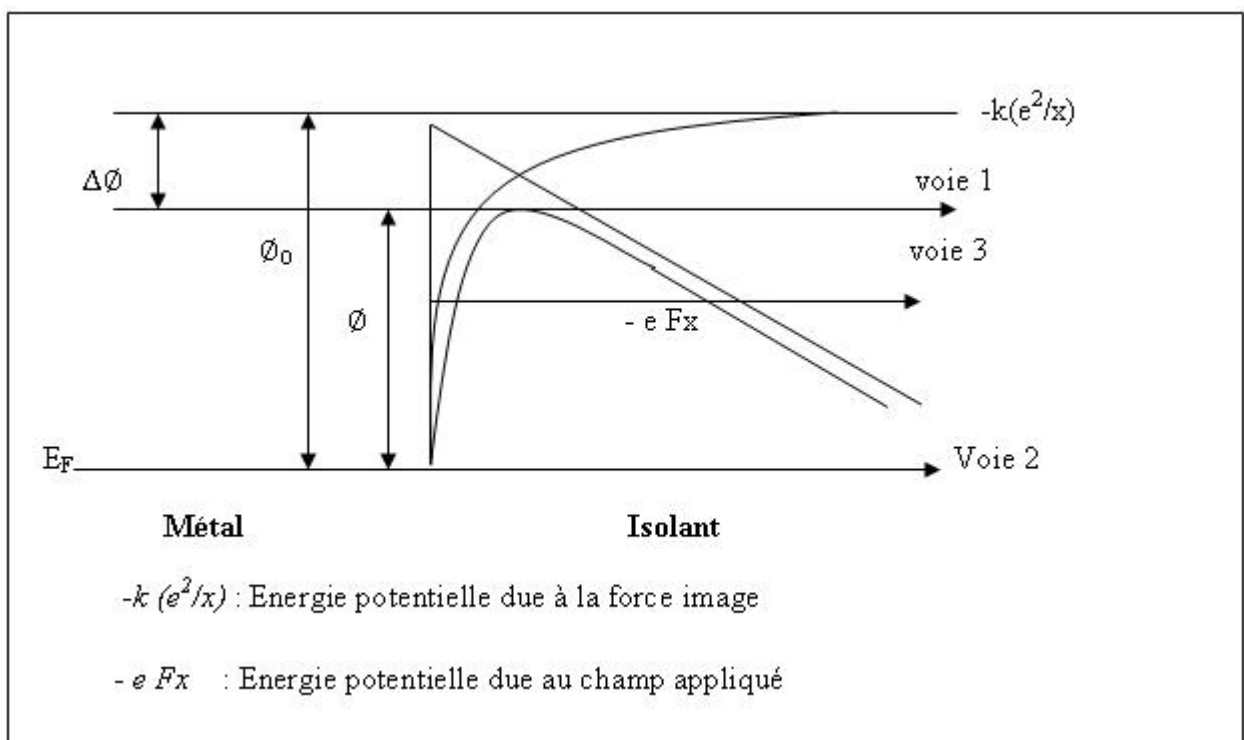
$\beta_{FN}$  : la constante de Fowler-Nordheim

## Mécanismes de conduction électrique

Pour des températures plus élevées, le passage s'effectue à un niveau dont l'énergie est supérieure à l'énergie de Fermi (voie 3): C'est l'effet Fowler-Nordheim assisté thermiquement [4], la densité de courant s'exprime par :

$$J(T) = J(0) \frac{\frac{\pi K T}{d}}{\sin\left(\pi \frac{K T}{d}\right)} \quad (1 - 7)$$

$d$  : épaisseur de l'isolant.



**Figure I. 3:** Configuration des bandes d'énergie à l'interface métal/isolant dans le cas de l'effet tunnel [2]

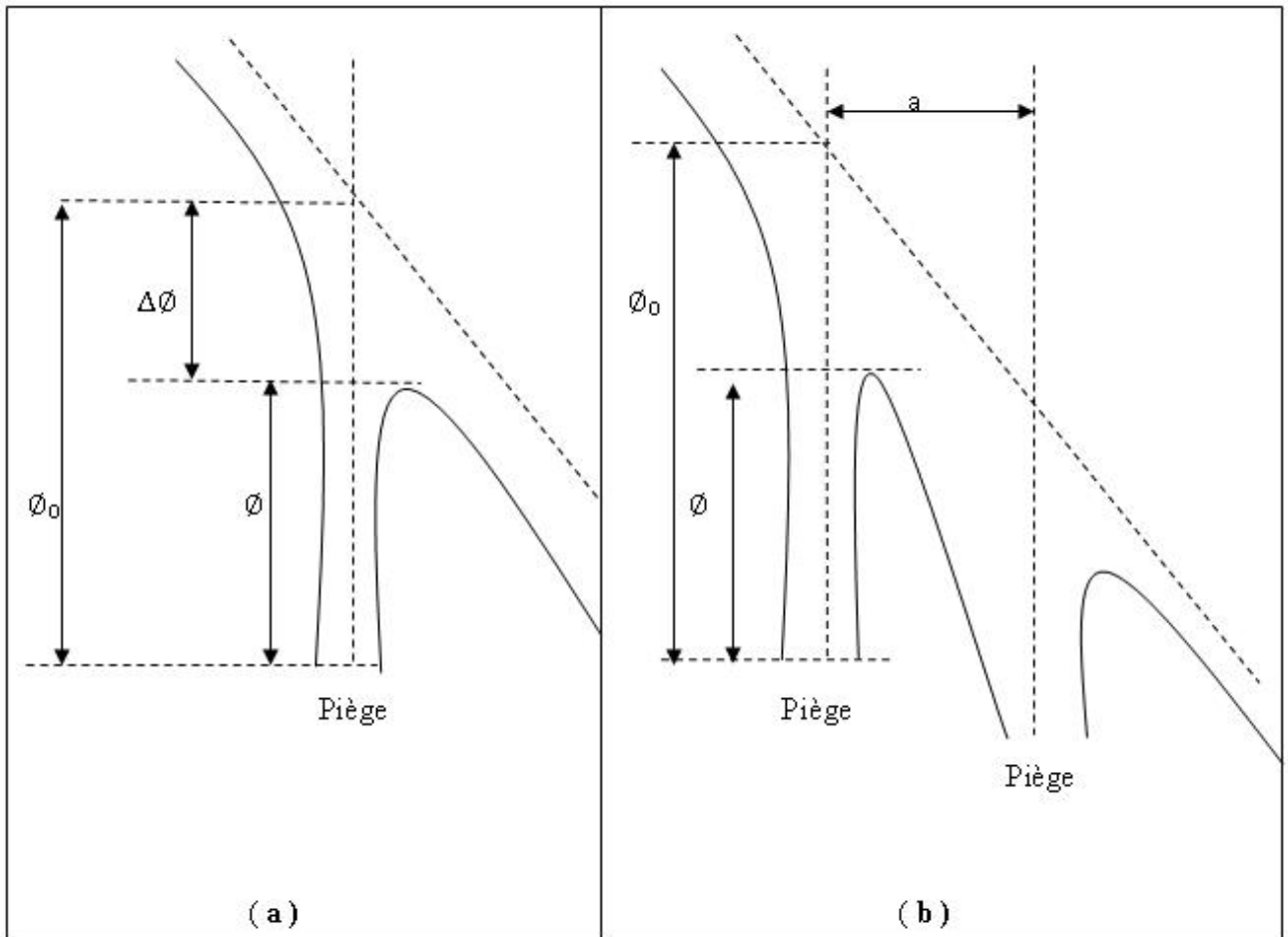
## 2. 2 Mécanismes de conduction régis par le volume

### 2. 2. 1 Effet Poole-Frenkel

Ce phénomène est similaire en nature à l'effet Schottky, mais appliqué au volume du diélectrique. On suppose qu'il existe dans le matériau un certain nombre de sites capables de piéger les porteurs

## Mécanismes de conduction électrique

de charges. Lorsque les porteurs sont capturés, ils peuvent être réémis dans la bande de conduction : effet Poole-Frenkel (figure I.4.a), ou dans un piège voisin effet Poole (figure I.4.b). Pour ce faire, ils doivent vaincre un potentiel coulombien qui les rappelle vers le site d'origine [4, 5].



**Figure I. 4** : Les effets de Poole-Frenkel et de Poole [4]

Si le potentiel du piège est coulombien alors l'énergie potentielle d'un électron à droite du piège, en présence d'un champ, est :

$$V(x) = \phi_0 - eFx - \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon x}\right) \quad (1-8)$$

elle est maximum en :  $x = \sqrt{(e/4\pi\epsilon F)}$  (1-9)

la barrière de potentiel, sous l'effet du champ est abaissée de :

$$= 2 \sqrt{(e^3 F / 4\pi\epsilon)} \quad (1 - 10)$$

et vaut :

$$= \phi_0 - \beta_{PF} F^{1/2} \quad (1 - 11)$$

Où  $\beta_{PF} = 2\beta_s = \sqrt{(e^3 / \pi\epsilon)}$  est la constante de Poole-Frenkel

La densité de courant est donnée par :

$$J = k(F) \exp(-(\phi_0 - \beta_{PF} F^{1/2}) / KT) \quad (1 - 12)$$

Avec :

$k(F) = K_0 F$  pour les matériaux cristallins et semi-cristallins [6].

$k(F) = K_0$  pour les matériaux désordonnés selon Jonscher [7].

### 2. 2. 2 Conduction électrique par saut

Il s'agit d'un transport d'électrons entre états localisés dans la bande interdite du diélectrique. Ces états se trouvent au voisinage du niveau de Fermi qui sépare les niveaux occupés et les niveaux vides. Ce processus peut être prédominant dans les diélectriques et il est d'autant plus important que la densité d'états près du niveau de Fermi est élevée. Mott [8] a exprimé la variation de la conductivité électrique d'un matériau amorphe en fonction de la température sous la forme :

$$\sigma = \sigma_0 \exp \left[ - \left( \frac{B}{T} \right)^{1/4} \right] \quad (1 - 13)$$

$$\sigma_0 = \frac{e^2}{6} v_{ph} \frac{\lambda^2 N_{EC}}{KT} \quad (1 - 14)$$

Où :

$$B = 2 \left( \alpha_1^3 / K N_{E_c} \right) \quad (I - 15)$$

$\nu_{ph}$  : Fréquence de vibration des phonons qui participent au saut.

$\alpha_1$  : Constante d'atténuation de la fonction d'onde électronique du site localisé.

$\lambda$  : Distance entre deux sites.

$N_{E_c}$  : Densité d'états énergétiques, par unité d'énergie, au voisinage du bas de la bande de conduction.

$K$  : Constante de Boltzmann.

Cette relation est valable dans les domaines de température assez faible, pour que tous les porteurs de charge soient supposés sur les sites localisés.

L'effet du champ appliqué [9], dans la théorie de la conduction par saut n'affecte que le terme pré exponentiel de la loi de Mott (équation (I-14)).

### 2. 2. 3 Courant limité par la charge d'espace (CLCE)

Si l'on suppose qu'on a affaire à un isolant solide ne contenant pas de charges libres, un potentiel extérieur appliqué à ses bornes conduit à un champ électrique uniforme dans le volume. Le matériau peut contenir des porteurs de charges dus à des impuretés ou issus de dissociations ioniques. Sous l'action d'un champ électrique, ces porteurs d'origine interne, se déplacent à une vitesse  $V$  sous l'effet du champ électrique selon la loi suivante [10]:

$$V = \mu F \quad (I - 16)$$

Ces charges s'accumulent au niveau de l'électrode de signe opposé et constituent des charges d'espace: ce sont les hétérocharges.

Des charges peuvent également être injectées à partir de l'électrode dans le diélectrique pour des valeurs très élevées du champ, elles sont du même signe que l'électrode qui les a émises: ce sont les homocharges.

## Mécanismes de conduction électrique

---

Dès qu'un porteur détruit localement la neutralité électrique, le champ en un point donné du diélectrique n'est plus égal au champ moyen appliqué [10].

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

$$J(x) = \mu\rho(x)F(x) - D_n \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} + \epsilon_0 \epsilon_r \frac{\partial F(x, t)}{\partial t} \quad (1 - 17)$$

$D_n = \frac{kT\mu}{e}$  : Coefficient de diffusion

$\rho(x)$  et  $F(x)$  sont respectivement la densité de charges des porteurs et le champ électrique à une profondeur  $x$  dans le diélectrique.

Le premier terme de l'équation est un courant de conduction et le seconde est de diffusion, le dernier terme est le courant de déplacement.

$\rho(x)$  et  $F(x)$  sont reliés aussi par la relation de Poisson :

$$\frac{dF(x)}{dx} = \frac{\rho(x)}{\epsilon} \quad (1 - 18)$$

L'expression du courant en négligeant la diffusion est :

$$J(x) = \mu\rho(x)F(x) \quad (1 - 19)$$

Et l'équation de continuité s'écrit dans le cas où:

- Pas de piège
- Pas de recombinaison

$$\frac{\partial J(x)}{\partial x} + \frac{\partial \rho(x)}{\partial t} = 0 \quad (1 - 20)$$

Auxquelles on adjoint les conditions aux limites sur le champ dans le cas de

la polarisation:  $\int_0^d F(x) dx = F_a d \quad (1 - 21)$

la dépolarisation: 
$$\int_0^d F(x) dx = 0 \quad (1 - 22)$$

Une résolution de ces équations conduit aux expressions des courants limités par la charge d'espace en régime permanent, nous mentionnerons que dans leur résolution la mobilité des porteurs est considérée indépendante du champ électrique et que l'étude est limitée au cas d'une injection unipolaire avec contacts ohmiques [11].

Une valeur limitée de la densité de courant (parcours DG (figure I. 5)) pour un isolant ne présentant aucune conduction intrinsèque et ne contenant pas de pièges, est donnée par :

$$J = J_s = \left( \frac{9}{8} \mu \varepsilon \right) \left( \frac{V^2}{d^3} \right) \quad (1 - 23)$$

Cette relation, connue sous le nom de relation de Mott pour le courant limité par la charge d'espace, donne la densité de courant limitée, des porteurs de mobilité  $\mu$ , pouvant passer dans un échantillon de permittivité  $\varepsilon$ , d'épaisseur  $d$  soumis à un champ appliqué  $F_a$ .

Pour un isolant contenant des porteurs de charges internes et des pièges peu profonds (qui capturent facilement les porteurs de charges), on constate que, si le champ est assez faible pour que la concentration des porteurs injectés reste inférieure à la concentration intrinsèque  $n_0$ , la densité de courant (parcours AC (figure I.5)) est donnée par :

$$J = e n_0 \mu F_a \quad (1 - 24)$$

$n_0$  : Concentration initiale de porteurs libres

Et dans le cas contraire, c'est-à-dire lorsque le champ est fort (parcours CE (figure I.5)) on a:

$$J = J_s = \frac{9}{8} \mu \varepsilon \theta \frac{V^2}{d^3} \quad (1 - 25)$$

Où  $\theta$  représente le rapport entre la concentration des porteurs libres et celle des porteurs piégés.

## Mécanismes de conduction électrique

---

A partir d'une tension  $V_{TFL}$  tous les centres pièges sont remplis, le courant augmente brutalement (parcours EG (figure I.5)) et il est à nouveau limité par la charge d'espace des porteurs injectés.

Si les pièges sont distribués en énergie, comme c'est le cas dans les isolants amorphes, les résultats sont modifiés:

- Pour une distribution exponentielle [12].

Après un régime ohmique (parcours AB (figure I.5)), le courant suit le parcours BF exprimé par :

$$J = K \frac{V^{l+1}}{d^{2l+1}} \quad (I - 26)$$

$l$  étant une caractéristique de la distribution et  $K$  une constante de proportionnalité.

- Pour une distribution uniforme des pièges [13].

L'expression du courant est proportionnelle à  $V$ .

$$J = CV \exp \eta V \quad (I - 27)$$

Où  $\eta$  : est une constante dépendant du diélectrique

Nous nous limitons au cas particulier d'un contact ohmique avec une injection unipolaire. Les caractéristiques typiques des courants limités par la charge d'espace et les relations représentant la variation des densités de courant avec la tension appliquée, pour ces différentes caractéristiques, sont classifiées dans le tableau I.1

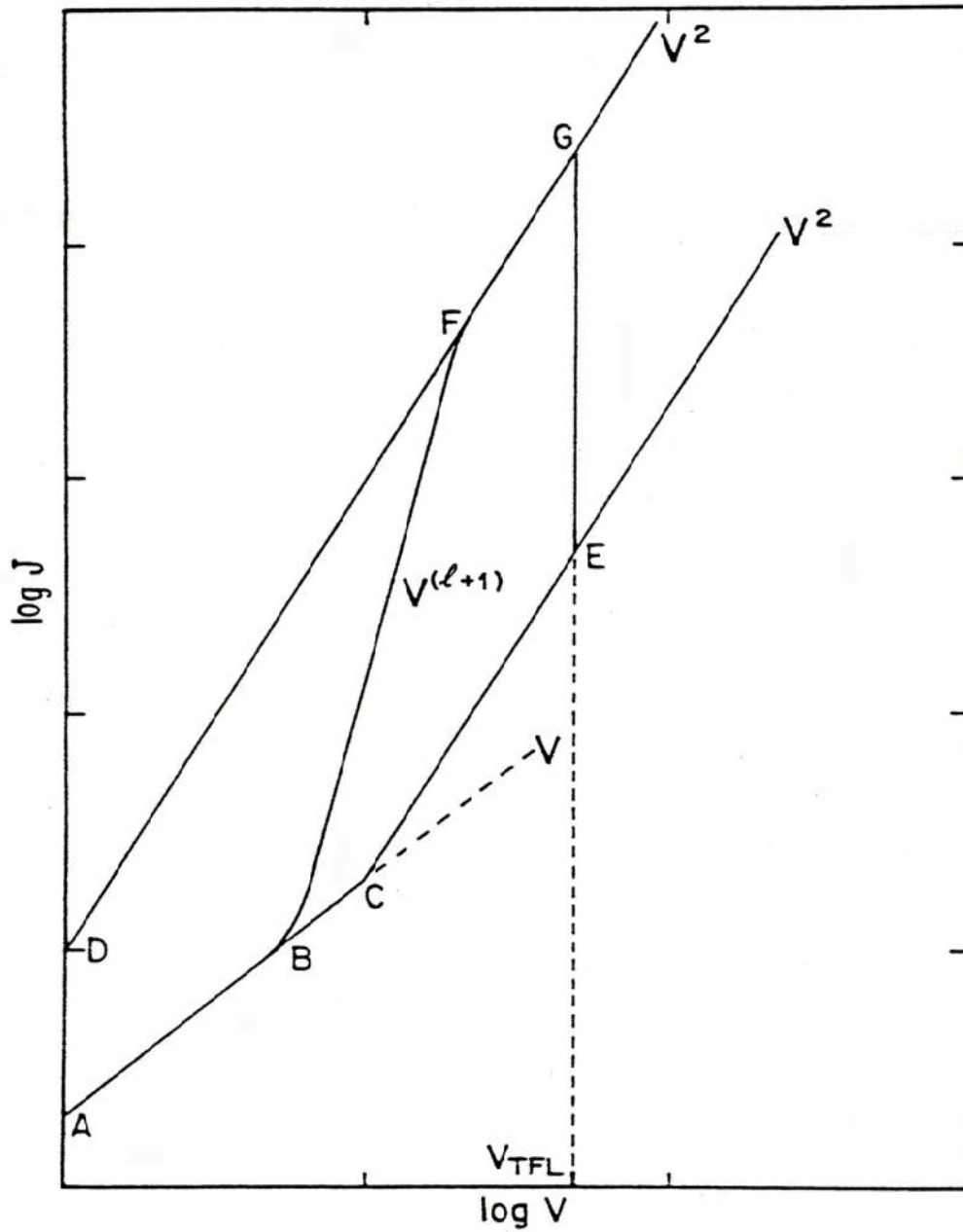


Figure I.5 : Caractéristique courant tension dans le cas CLCE [2]

# Mécanismes de conduction électrique

**Tableau I. 1 :** Expressions des densités de courants limitées par les charges d'espace

|  | sans porteur intrinsèque   | avec porteurs intrinsèques   |   |
|--|--|--|---|
| Diélectrique<br><br>Sans pièges $n_t = 0$                        | $J = \frac{9}{8} \varepsilon \mu \frac{V^2}{d^3}$ courbe AB                        | champ faible<br>$n_0 \gg n$  | champ fort $n_0 \ll n$                            |
|  |  | $J = q \mu n_0 \frac{V}{d}$  | $J = \frac{9}{8} \varepsilon \mu \frac{V^2}{d^3}$ |
| Diélectrique contenant<br>des pièges et des<br>porteurs internes | Distribution discrète  |  |   |
|  | champ faible $n_0 \gg n$   | champ fort $n_0 \ll n$   |   |
|  | $J = q \mu n_0 \frac{V}{d}$ courbe CD  | $J = \frac{9}{8} \varepsilon \mu \frac{V^2}{d^3} \theta$ $\theta = \frac{N_c}{N_t} \exp(-\Phi / kT)$ courbe DE et à<br>$V = V_{TFL} \Rightarrow$ courbe AB   |   |
|  | distribution uniforme  | distribution exponentielle   |   |
|  | $n_t = \frac{N_t}{F_1 - F_2}$ avec $E_1 < E_2 < E_F$<br><br>$J \propto V \exp(cV)$ | $n_t = \frac{N_t}{kT_c} \exp\left(-\frac{E}{kT_c}\right)$ $J = B \frac{V^{(l+1)}}{d^{(2l+1)}}$ pour un champ faible $\Rightarrow$<br>régime ohmique CL puis il<br>suit le parcours LF en $V^{l+1}$ |   |

## 2. 2. 4 Conduction ionique

Il n'était question jusqu'ici que de la conduction électronique, mais il est évident que les ions peuvent contribuer à la conduction des matériaux solides, même si les processus sont moins simples que dans les liquides. C'est le cas dans une moindre mesure de certains polymères, en particulier la famille des polymères à liaisons hydrogène comme les polyamides pour lequel les protons ou même éventuellement d'autres ions participent à la conduction [3]. La conduction ionique dans un diélectrique peut se produire de deux manières différentes [14]: les défauts structuraux dans un cristal ionique sont responsables de la conduction, dans les matériaux non ioniques, la conduction est due aux impuretés.

Pour un matériau cristallin, l'ion se déplace sous l'effet du champ appliqué dans un système de puits de potentiels d'égales profondeurs et répartis uniformément. La hauteur de la barrière de potentiel que doit franchir le porteur est abaissée de :  $\frac{q\lambda F}{2}$  dans le sens du champ et augmente de la même valeur dans le sens contraire (figure I.6).

$q$  : charge ponctuelle.

$\lambda$  : distance entre deux sites

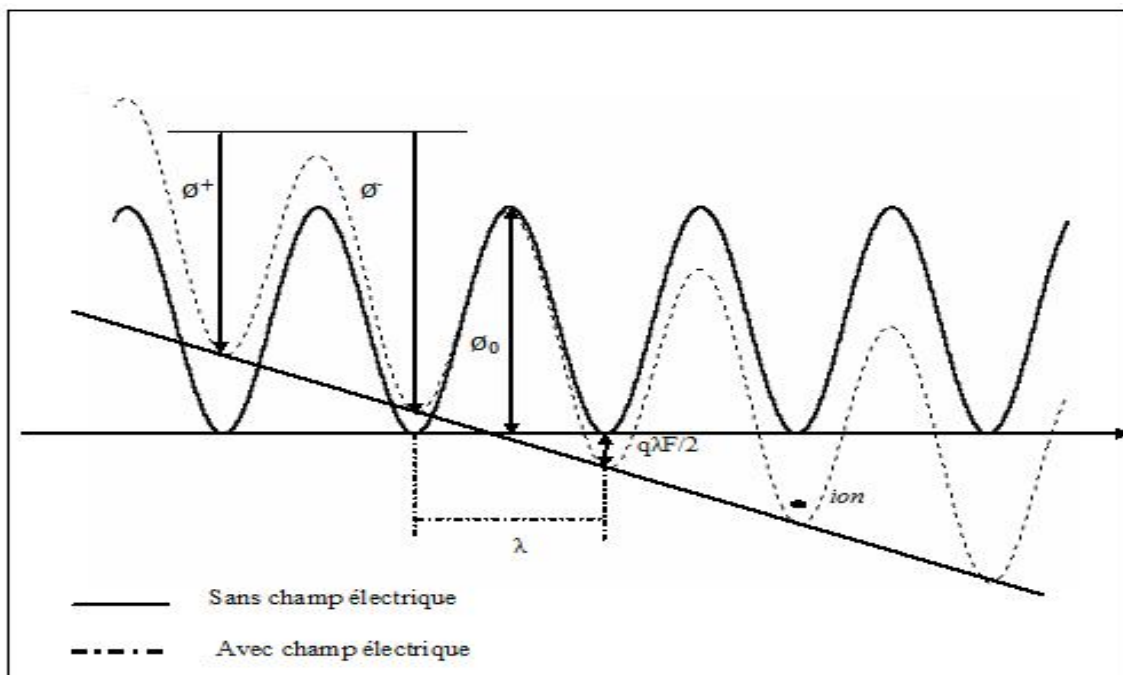


Figure I.6 : Potentiel cristallin avec et sans champ électrique [4].

## Mécanismes de conduction électrique

---

La densité de courant résultante  $J$  est alors la somme d'un courant direct et d'un courant inverse, s'exprimant par :

$$J = 2nq\lambda v \exp\left(\frac{-r_0}{KT}\right) \operatorname{sh}\left(\frac{q\lambda F}{2KT}\right) \quad (1 - 28)$$

Dans l'approximation des champs faibles, la mobilité est donnée par :

$$\mu = \frac{qv\lambda^2}{KT} \exp\left(\frac{-r_0}{KT}\right) \quad (1 - 29)$$

La probabilité de passage d'un site 'i' à un site 'j' est donnée par [15]:

$$J = \exp(-2\alpha \lambda) \exp\left(\frac{E_j - E_i}{KT}\right) \quad (1 - 30)$$

$n$  : Concentration des ions

$v$  : Fréquence de vibration de l'ion

$\lambda$  : Distance entre deux positions d'équilibres

$q$  : Charge d'électrique

Où  $E_i$  et  $E_j$  sont les profondeurs énergétiques des sites 'i' et 'j', et  $\alpha$  est un paramètre décrivant l'interaction entre eux. Il est clair que cette théorie supposant un arrangement régulier des puits de potentiel, ne peut s'appliquer rigoureusement aux matériaux dont la structure est désordonnée. Dans ce cas, il existe des sauts plus difficiles les uns que les autres, car  $v$  et  $\lambda$  ne sont plus constants, il en résulte une accumulation de charges à certains endroits mais une telle charge d'espace n'est pas prise en compte par cette théorie [16].

En réalité, l'ion possède un volume propre, et le courant qui résulte de son déplacement ne s'explique que si l'arrangement des molécules qui l'entourent prend une configuration favorable (figure I.6). Myamoto et al [17] ont élaborés un modèle de transport ionique basé essentiellement sur la notion de volume libre. Dans ce modèle, le déplacement des ions sous l'effet du champ n'est assuré que par des mouvements coopératifs entre ces derniers et les molécules environnantes, c'est-à-dire le volume libre.

L'expression du courant dans ce dernier cas, est :

$$J = (2nqav\alpha) \exp\left\{-\frac{1}{KT}\left(E_j + \frac{w}{2\varepsilon}\right)\frac{\gamma V_i}{V_f}\right\} \operatorname{sh}\left(\frac{q\lambda F}{2KT}\right) \quad (1-31)$$

$\alpha$  : facteur de correction compris entre 0 et 1

$\gamma$  : facteur numérique de correction

$V_i^*$  : volume critique requis pour le transport des ions

$V_f$  : volume libre

$E_j$  : hauteur de la barrière de potentiel

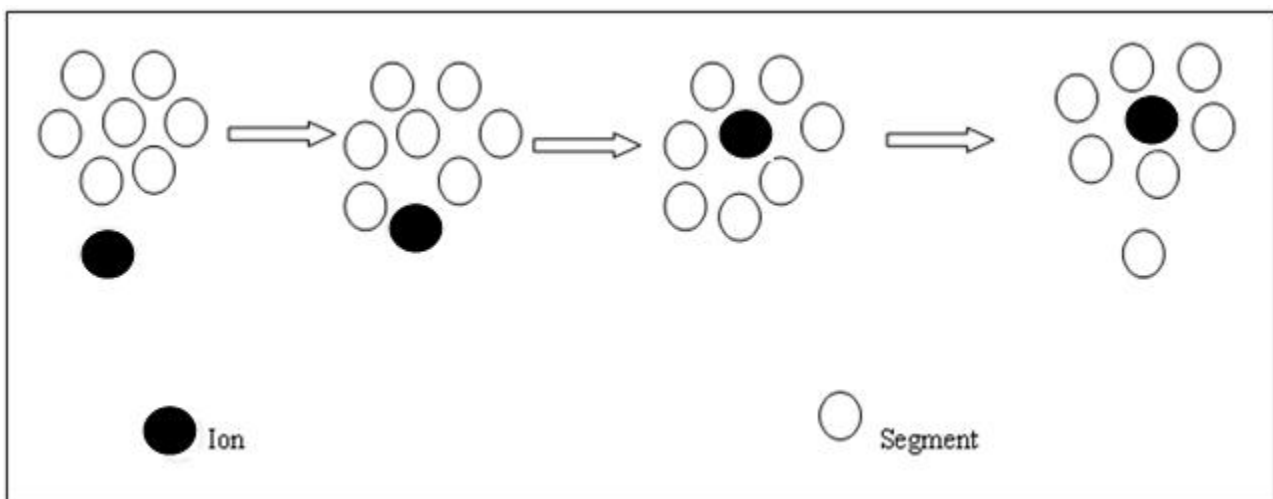
$w$  : énergie de dissociation

$\varepsilon$  : constante diélectrique

$\lambda$  : distance de saut entre deux positions d'équilibre

$K$  : Constante de Boltzmann

Il existe en principe une méthode simple pour déterminer la nature (ionique ou électronique) de la conduction observée. Elle consiste à soumettre le matériau étudié à une pression hydrostatique élevée. En rapprochant les atomes et/ou les chaînes polymériques, une telle pression favorise le recouvrement des orbitales moléculaires, donc la délocalisation des électrons, et par conséquent, la conductivité électronique. Inversement, en diminuant l'espace disponible pour le déplacement des ions, elle tend à diminuer la conduction ionique [3]. L'effet de la pression hydrostatique en liaison avec la nature de la conduction a été discuté par Bui Ai et *al.* [18].



**Figure I.7 :** Vue schématique du transport des ions (Volume libre) [4]

## 2. 2. 5 Mécanismes dipolaires

Il existe deux types de diélectriques :

- Les diélectriques apolaires caractérisés par l'absence de la polarisation intrinsèque, c'est le cas par exemple des matériaux qui possèdent des liaisons parfaitement covalentes, comme la liaison C-C. le modèle de polarisation qui rentre en jeu dans ce cas est la polarisation induite par le champ appliqué.

- les diélectriques polaires sont caractérisés par la présence de dipôles permanents qui, sous l'effet du champ électrique, tendent à s'orienter selon sa direction (La figure I.8.c), d'où une polarisation dipolaire. Un exemple sur le type de la liaison présente dans ce cas d'isolant est C-O ou SiO<sub>2</sub> [11].

### 2.2.5.1 Origine moléculaire de la polarisation

Il faut noter que l'ensemble des phénomènes de polarisation a fait l'objet des toutes premières études classiques sur les diélectriques : Debye [19], Onsager [20], Cole [21], Mossotti [22].

Une polarisation spontanée existe dans les solides pyroélectriques et ferroélectriques. Une polarisation induite apparaît dans tout diélectrique placé dans un champ électrique. Elle peut être due à divers phénomènes moléculaires :

#### a. Polarisation électronique et ionique

(La figure I.8.a) sous l'effet d'un champ électrique extérieur, les orbitales électroniques se déforment avec une cinétique très rapide ( $10^{-15}$  s.) à l'origine de la polarisation électronique. Les déplacements ioniques vont s'effectuer avec une cinétique plus lente ( $10^{-13}$  s.) : ils sont responsables de la polarisation ionique [10].

#### b. Polarisation dipolaire

Dans les diélectriques polaires, en l'absence de champ électrique appliqué, les moments dipolaires permanents ne présentent pas d'orientation particulière, du fait de l'agitation thermique. Lorsqu'un champ électrique est appliqué au diélectrique, les dipôles ont tendance à

s'orienter dans la direction du champ appliqué, donnant naissance à une polarisation appelée polarisation d'orientation [20].

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

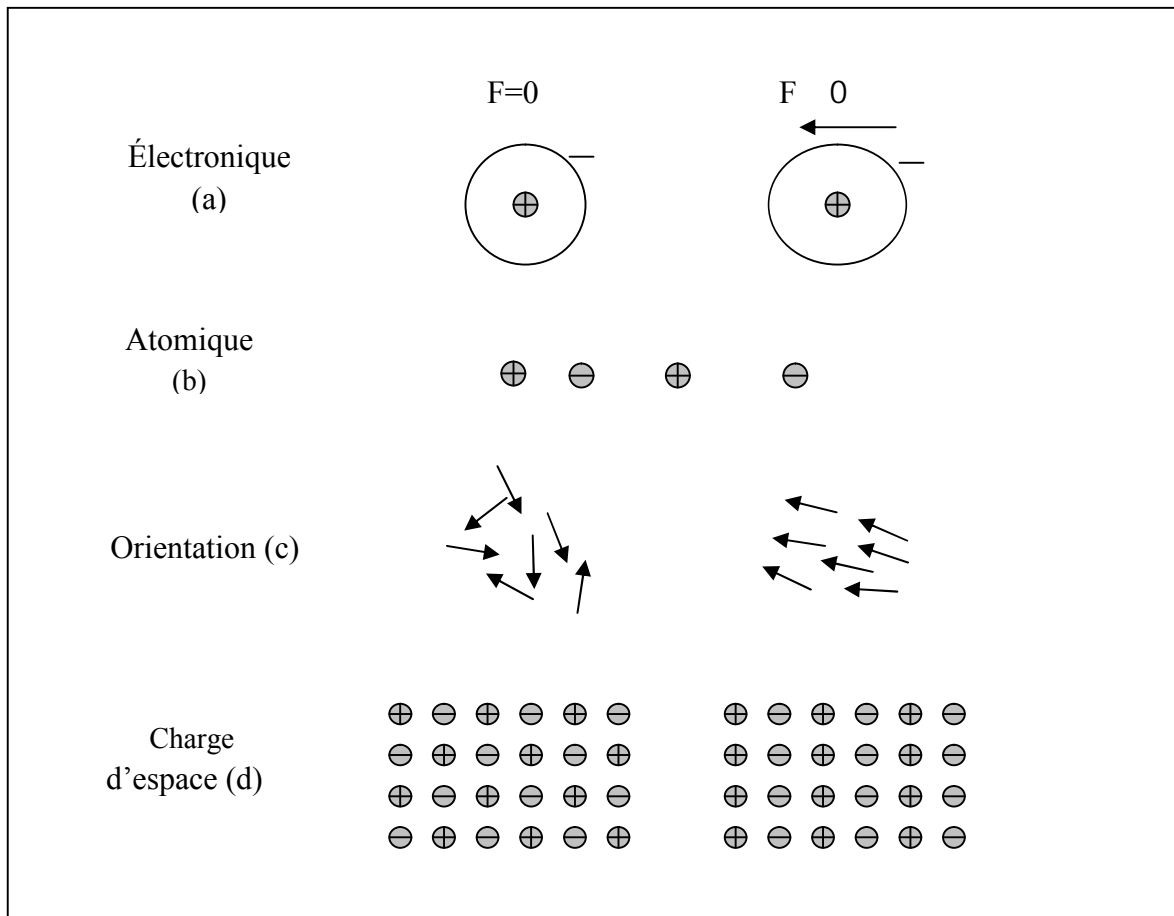
Ce type de polarisation intervient dans les diélectriques hétérogènes (ex : les polymères). Il provient de l'accumulation de charges aux interfaces des différentes phases constituant le matériau (centres d'impuretés ou de dislocations, interfaces entre des zones amorphes ou cristallines). L'application d'un champ électrique fait apparaître aux interfaces une accumulation localisée de charges électriques qui induit une polarisation dite inter-faciale [16].

### d. Polarisation par les charges d'espace

(La figure I.8.d) Cette notion est liée au concept de « dipôle macroscopique » [23, 24]. Si l'on considère un isolant d'épaisseur  $d$  pourvu d'électrodes, contenant autant de pièges que de charges libres (en l'absence d'injection), lors de l'application d'un champ électrique extérieur, les porteurs libres vont migrer vers les électrodes de signe opposé, et donner naissance à une polarisation moyenne :

$$p = \frac{1}{d} \int_0^d x\rho(x)dx \quad (I - 34)$$

où  $\rho(x)$  désigne la densité volumique de charges à l'équilibre à la profondeur  $x$  dans le matériau. La répartition de  $\rho(x)$  est fonction de la distribution et de la grandeur des pièges dans le matériau, ce qui traduit au niveau microscopique l'effet macroscopique Maxwell-Wagner. Les interfaces existantes dans l'isolant (défauts, impuretés, zone de transition cristalline/amorphe [25, 26]) représentent des centres de pièges qui stockent les porteurs de charges entraînés par le champ électrique appliqué. Le champ électrique crée par la polarisation de charges et sa répartition dans l'isolant va donc dépendre à tout moment de la charge présente dans l'isolant de la fraction de charge piégée, de son signe et de l'endroit où les pièges sont situés.



**Figure I.8 :** Représentation schématique des différents types de polarisations [10]

## 2. 2. 5.2 Expression des courants de polarisation et de dépolarisation isotherme

Debye [19] a montré que pour une distribution en concentration homogène  $N$  de dipôles ponctuels permanents de moment dipolaire  $\mu$ , la permittivité complexe s'écrit en fonction de la pulsation  $\omega$  :

$$\varepsilon (\omega) = \varepsilon_{\infty} + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}}{1 + i\omega\tau} \quad (I - 35)$$

Où  $\varepsilon_{\infty}$  et  $\varepsilon_s$  sont respectivement les permittivités du matériau en hautes et basses fréquences et  $\tau$  est le temps de relaxation des dipôles. Le modèle de Debye considère l'échantillon comme électriquement homogène et non chargé ( $\rho = 0$  dans toute l'épaisseur). Il assimile cet échantillon à un circuit série linéaire.

## Mécanismes de conduction électrique

---

En effectuant une transformée de Fourier sur l'équation précédente (I-35), on obtient l'évolution temporelle de la permittivité :

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_{\infty} + (\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}) \left[ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right] \quad (1-36)$$

De même, le courant transitoire  $J(t)$  est la dérivée de la charge :

$$Q = CV \quad (1-37)$$

Où  $C = C_0 \times \left(\frac{\varepsilon_t}{\varepsilon_{\infty}}\right)$ ,  $C_0$  étant la capacité géométrique de l'échantillon. On a donc, en utilisant l'expression de  $\varepsilon(t)$  (I-35) on obtient celle du courant transitoire.

$$J(t) = \frac{C_0 V}{\varepsilon_0 \tau} (\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (1-38)$$

Où  $V$  est la tension appliquée.

Il a été vérifié que les diagrammes de permittivité complexe:  $\varepsilon''(\varepsilon')$  obtenues expérimentalement ne coïncident jamais avec le demi-cercle centré sur l'axe  $\varepsilon'$  prévue par la loi de Debye, il en résulte que la forme donnée par l'équation (I-35) n'est pas une représentation valable de la permittivité complexe des isolants réels et par conséquent, un déclin exponentiel du courant n'est pas réaliste.

En considérant que le temps de relaxation n'est pas unique mais distribué entre deux limites  $\tau_1$  et  $\tau_2$  selon une loi normalisée  $f(\tau)$ , le courant transitoire se met sous la forme:

$$J(t) = \left(\frac{C_0 V}{\varepsilon_0}\right) (\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}) \int_{\tau_1}^{\tau_2} f(\tau) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) d\tau/\tau \quad (1-39)$$

et en choisissant une fonction  $J(\tau)$  de la forme  $a/\tau$  où le coefficient de normalisation  $a$  vaut  $[\ln(\frac{\tau_1}{\tau_2})]^{-1}$ , le courant transitoire s'écrit :

$$J(t) = a \left(\frac{C_0 V}{\varepsilon_0}\right) (\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}) \left[ \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) - \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) \right] / t \quad (1-40)$$

Pour toutes les valeurs de  $t$  telles que  $\tau_1 < t < \tau_2$ , la relation (I.39) redonne la loi de Curie-Von Schweidler avec  $n=1$ .

Une autre approche a été proposée par Cole et Cole [27] en partant de la formule empirique suivante de la permittivité :

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_{\infty} + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}}{1 + i\omega\tau} \quad (I-41)$$

Le courant transitoire correspondant à la relation (I-42) se présente, en coordonnées doubles logarithmiques (figure 1.9), sous la forme d'une courbe  $I(t)$  continue, asymptotique à une droite de pente  $(-1 + \alpha)$  pour des temps courts ( $t \ll \tau$ ) et à une droite de pente  $(-1 - \alpha)$  pour des temps longs ( $t \gg \tau$ ) avec un raccordement doux et une pente égale à  $(-1)$  à ( $t = \tau$ ).

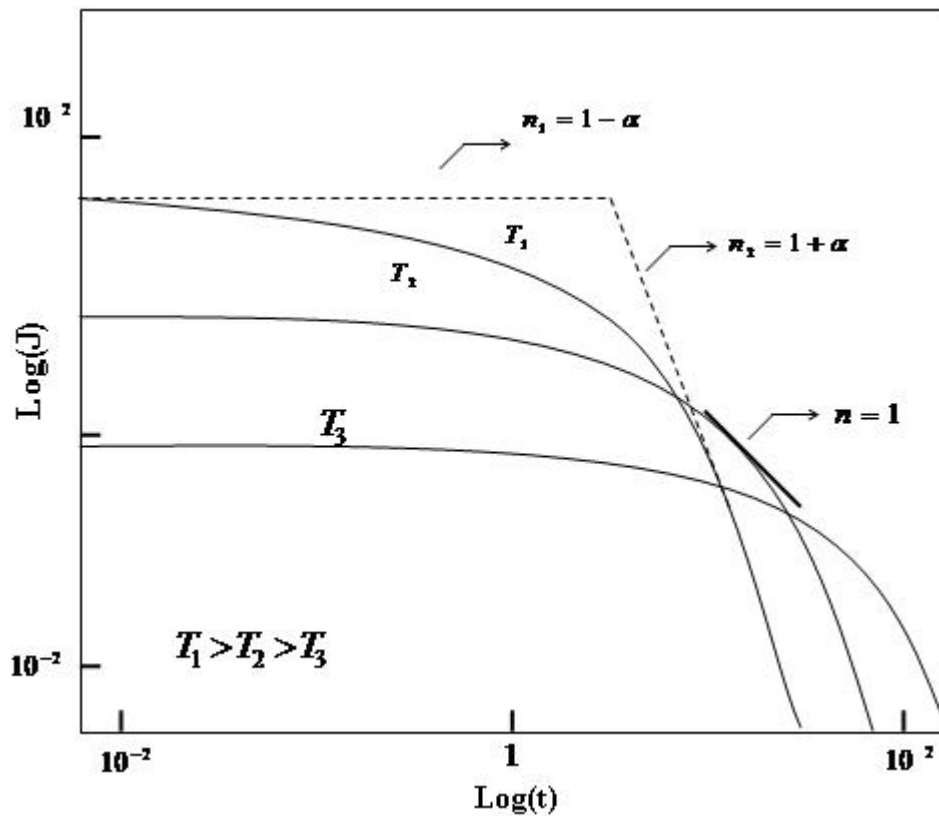


Figure I.9 : Courant transitoire d'absorption [4]

### 2. 2. 6 Réponse fréquentielle : approximation de HAMON

Lorsqu'un matériau diélectrique est soumis à un champ alternatif sinusoïdal de pulsation  $\omega$ , la permittivité relative complexe de ce diélectrique est donnée par la relation:

$$\varepsilon_r - \frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0} = \varepsilon_{r\infty} + \frac{1}{C_0V_0} \int_0^{\infty} i(t) \exp(-j\omega t) dt \quad (1-42)$$

Où  $\varepsilon_r$  est la permittivité complexe relative,  $\sigma$  la conductivité en courant continu,  $\varepsilon_{r\infty}$  la permittivité relative à très basse fréquence et  $i(t)$  le courant de charge ou de décharge.

Dans le cas où les résultats expérimentaux montrent une dépendance de la forme:  $i(t) = C_0V_0At^{-n}$ , où  $A$  et  $n$  sont des constantes dépendant du matériau considéré, Williams [28] a calculé les parties réelles et imaginaires en introduisant une fonction Eulérienne  $\Gamma$  de la première espèce [29]:

$$\varepsilon_r'(\omega) - \varepsilon_{r\infty} = \omega^{n-1}A\Gamma(1-n)\sin\left(\frac{n\pi}{2}\right) \quad \text{pour } 0 < n < 1 \quad (1-43)$$

$$\varepsilon_r''(\omega) - \frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0} = \omega^{n-1}A\Gamma(1-n)\cos\left(\frac{n\pi}{2}\right) \quad \text{pour } 0 < n < 2 \quad (1-44)$$

La méthode proposée par Hamon consiste d'une part à remplacer  $A$  dans l'équation (I-46), à partir de l'expression de  $i(t)$ , on obtient :

$$\varepsilon_r''(\omega) - \frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0} = \frac{i(t)}{\omega C_0V_0} \left( \frac{\Gamma(1-n)\cos\left(\frac{n\pi}{2}\right)}{\omega t^{-n}} \right) \quad (1-45)$$

et d'autre part, d'écrire :

$$\varepsilon_r''(\omega) + \frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0} = \frac{i(t)}{C_0V_0\omega} \quad (1-46)$$

Pour un instant  $t$  donné :

$$\omega t = \left( \Gamma(1-n)\cos\left(\frac{n\pi}{2}\right) \right)^{-1/n} \quad (1-47)$$

en faisant l'approximation que le deuxième membre de cette égalité vaut 0,63 pour des valeurs de  $n$  comprises entre 0,3 et 1,2 ce qui permet d'obtenir à partir de la courbe des courants de charge ou de décharge, la valeur  $\varepsilon_r''(\omega)$ :

$$\varepsilon_r''(\omega) + \frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0} = \frac{i(t)}{C_0V_0\omega} \quad \text{avec } t = \frac{0.63}{\omega} = \frac{0.1}{f} \quad (1-48)$$

Où  $f = 2\pi\omega$ .

La précision de l'approximation de Hamon a été évaluée par Williams [28], en considérant une distribution du temps de relaxation de type Cole et Cole [27] et un courant d'absorption de la forme  $i(t) = C_0 V_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)^\alpha$  avec  $0 < \alpha < 1$ . L'erreur calculée est de l'ordre de 5% .

### 3. CONCLUSION

L'étude de la conduction électrique dans les matériaux isolants qui s'effectue le plus souvent en mesurant les courants circulant à travers un diélectrique a pour but de fournir des réponses, tout au moins des éléments de réponse sur la nature, l'origine, la concentration des porteurs de charge et sur le mécanisme de transport. L'étude de ces phénomènes fait intervenir les notions de mobilité, d'énergie d'activation, des temps de relaxation distribués ou discrets, de profondeur des pièges et de leur distribution.

Parmi les principaux paramètres dont on dispose pour résoudre ce problème : le champ électrique et l'épaisseur. A l'aide de ces paramètres on peut obtenir les caractéristiques  $I(t)$ ,  $I(V)$ ,  $I(F)$  afin de trouver le mécanisme de transport le plus probable.

## 4. Bibliographie

- [1] C. Laurent, «Diélectriques solides et charge d'espace,» *Techniques de l'Ingénieur, Pack Génie électrique*, vol. D 2 305, pp. 1-13, 1999.
- [2] R. Coelho et B. Aladenize, Propriétés diélectriques des matériaux isolants, Paris: Edition Hermès, 1993.
- [3] J. J.O'Dwyer, the theory of electrical conduction and breakdown in solid dielectrics, Univ, Oxford, 1973.
- [4] N. A. Saidi, «contribution à l'étude de la conduction électrique dans le polyéthylène basse densité, effet de la pression hydrostatique,» *thèse de Magistère, USTHB*, 1991.
- [5] H. Adachi, Y. Shibata, S. Ono et J. phys.d, *Appel.phys*, vol. 4, p. , 1971.
- [6] Y. segui, «Contribution à l'étude des mécanismes de conduction dans les films minces de polymère. Application à lapassivation des composants à semi-conducteurs,» *Thèse de Doctorat d'état, université Paul Sabatier*, 1974.
- [7] A. K. Jonscher, *thin solid films*, vol. 1, p. 213, 1967.
- [8] N. F. MOT et P. Mag, «Conduction in non-crystalline materials .III. Localized states in pseudogap and near extremities of conduction and valence bands,» vol. 19, p. 835, 1969.
- [9] Z. Amalou, «comportement électrique du polyéthylène téréphtalate,» *thèse de Magister, USTHB*, 1998.
- [10] H. Oubouchou, «Contribution à l'étude de la conduction électrique dans les isolants solides,» *Mémoire de Magister. USTHB*, 2006.
- [11] S. Berdous, «Contribution à l'étude de la conduction électrique dans le polyéthylène téréphtalate PET en fonction du champ électrique et de la température,» *Mémoire de Magister, USTHB*, 2004.
- [12] A. Rose, *Rev. Space –charge –limited currents in solids*, vol. 97, pp. 1538-1544, 1955.
- [13] A. Toureille, «Les phénomènes de conduction à champ électrique élevé dans les hauts polymères,» *Thèse de Doctorat d'état, Académie de Montpellier*, 1974.
- [14] M. Saidi, «Etude des phénomènes de conduction dans les polymères sous effet du champ électrique de la température et de la pression,» *Thèse de Doctorat d'état. USTHB*, 1996.

## Bibliographie

---

- [15] S. Le Roy, P. Segu, G. Teyssedre et c. Laurent, «Description of bipolar charge transport in polyethylene using a fluid model with a constant mobility: model prediction,» *J. Phys. D: App*, vol. 37, pp. 298-305, 2004.
- [16] A. Beldjilali, «Contribution à l'Etude de la Conduction Electrique dans les Polymères en fonction du Champ Electrique et de la Température, en Présence de Pièges,» *Mémoire de Magister*, p. , 2009.
- [17] T. Myamoto et K. Shibayama, *J. Appl. Phys*, vol. 44, n° 112, 1973.
- [18] B. Ai et al, «Pressure and temperature dependence of the dielectric properties of polyethylene used in submarine telephone cable,» *J. Appl. Phys*, pp. 52, 525, 1981.
- [19] P. Debye, «polar molecules,» *Chemical Catalog Company, New-York* , p. 22, 1929.
- [20] L. Onsager, *J. Amer. Chem. SOC*, vol. 58, p. 22, 1936.
- [21] K. S. COLE et R. H. COLE, *J.Chem. Phys*, vol. 9, p. 341, 1941.
- [22] P. E.MOSSOTI, *Bibl. Univ. Modena*, vol. 6, p. 193, 1847.
- [23] J. Matallana, «Etude des propriétés de transport et de charge d'espace d'un nouveau matériau à base de polyéthylène pour l'isolation des câbles haute tension à courant continu,» *Thèse de Doctorat de 'Univetsité Montpellier II*, 2001.
- [24] N. Didon, «Dynamique de développement des charges d'espace dans les isolants synthétiques sous champ électrique et gradient de température,» *Thèse de Doctorat de l'Université Montpellier II*, 2004.
- [25] M. Ieda, «Electrical Conduction and Carrier Traps in Polymeric Materials Electrical Insulation,» *IEEE Transactions* , vol. 19, pp. 162-178, 1984.
- [26] S. Serra, E. Tosatti, S. Iarlori, S. Scandolo, G. Santoro et M. Albertini, «Interchain states and the negative electron affinity of polyethylene,» *presented at Electrical Insulation and Dielectric Phenomena. Annual Report*, 1998.
- [27] K. S. Cole et R. H. Cole, *J. Chem. Phys*, vol. 10, p. 98, 1942.
- [28] G. Williams, N. G. Mac Crum et B. E. Read, «Anelastic and dielectric effects in polymeric solids,» *John Wiley and Son editor*, 1967.
- [29] N. Saidi Amroun, «Contribution à l'étude de la conduction électrique dans le polyéthylène téréphtalate, le polyéthylène basse densité, et le polyamide en fonction du champ électrique, de la température, et de la pression,» *Thèse de doctorat. USTHB*, 2001.

## Bibliographie

---

- [30] J. W. S. Hearles, *J.Text. Inst*, vol. 44, pp. 155-176, 1953.
- [31] C. J. F. Bottcher et P. Bordewijk, *Theory of Electric Polarization, Amsterdam : Elsevier*, vol. 2, 1978.
- [32] R. H. Walden, *J. Appl. Phys*, vol. 43, n° 1 1972, pp. 1178-86, 3.
- [33] H. J. Wintle, *J. Non. Crist. Solids*, vol. 15, pp. 471-486, 1974.
- [34] J. Curie, *Annales de chimie physique*, vol. 18, p. 203, 1889.

## **CHAPITRE II**

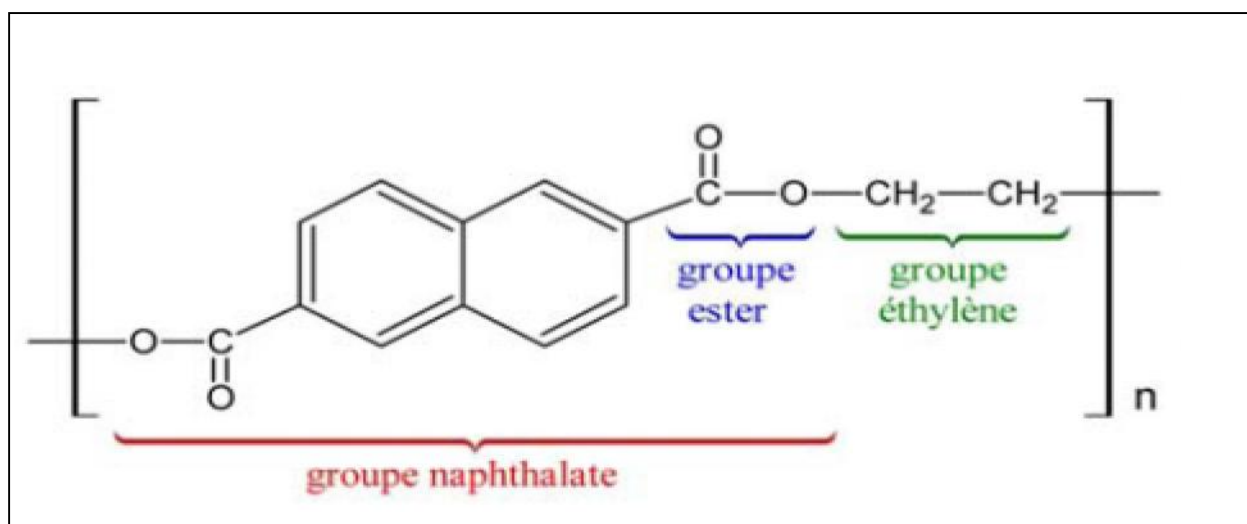
### **MATERIAU ET DISPOSITIF EXPERIMENTAL**

---

### 1. Le Matériau de l'étude

Le matériau utilisé dans le cadre de cette étude est le Poly(éthylène naphthalène -2,6- dicarboxylate) (PEN), appelé encore le polyéthylène naphthalate. Ce matériau possède des propriétés physiques intéressantes qui lui ont valu son essor dans les domaines de l'électronique et de l'électrotechnique (fabrication des condensateurs, par exemple) ainsi que dans le domaine de l'audiovisuel. Grâce à son excellente stabilité dimensionnelle même sous forme de film très mince, le PEN s'utilise comme support d'enregistrement magnétique et comme barrière de diffusion. Il est également utilisé comme produit support flexible pour cellule solaire, et encore comme fibre participant aux renforts des pneus [1, 2, 3, 4, 5, 6, 7].

Ce polyester thermoplastique de haute performance est obtenu par la polycondensation de l'acide naphthalénique 2,6 dicarboxylique et de l'éthylène glycol [8, 9]. La structure chimique du PEN est représentée sur la Figure II.1.



**Figure II.1 :** Formule chimique du PEN

Les principales caractéristiques physiques de nos échantillons PEN sont résumées dans le tableau suivant :

## Matériau et dispositif expérimental

**Tableau II.1** : Principales caractéristiques physiques du PEN [10]

| Caractéristiques physiques   | Valeurs                        |
|--|--------------------------------|
| Masse volumique ( $\rho$ )   | 1.36 ( $g/cm^3$ )              |
| Température de fusion ( $T_f$ )  | 267 ( $^{\circ}C$ )            |
| Température de transition vitreuse ( $T_g$ )   | 127 ( $^{\circ}C$ )            |
| Permittivité relative ( $\epsilon_r$ )<br>[ $-40^{\circ}C \leq T \leq 200^{\circ}C$ ] à<br>( $60Hz \leq f \leq 1kHz$ ) | 2.9 $\leq \epsilon_r \leq$ 3.0 |
| Résistivité électrique à 25 $^{\circ}C$ ( $\zeta$ )  | $10^{18}$ ( $\Omega.cm$ )      |
| Module de Young ( $MPa$ )  | 500                            |
| Tension de claquage (kV) pour $50\mu m$  | 15                             |

### 2. Dispositif expérimental

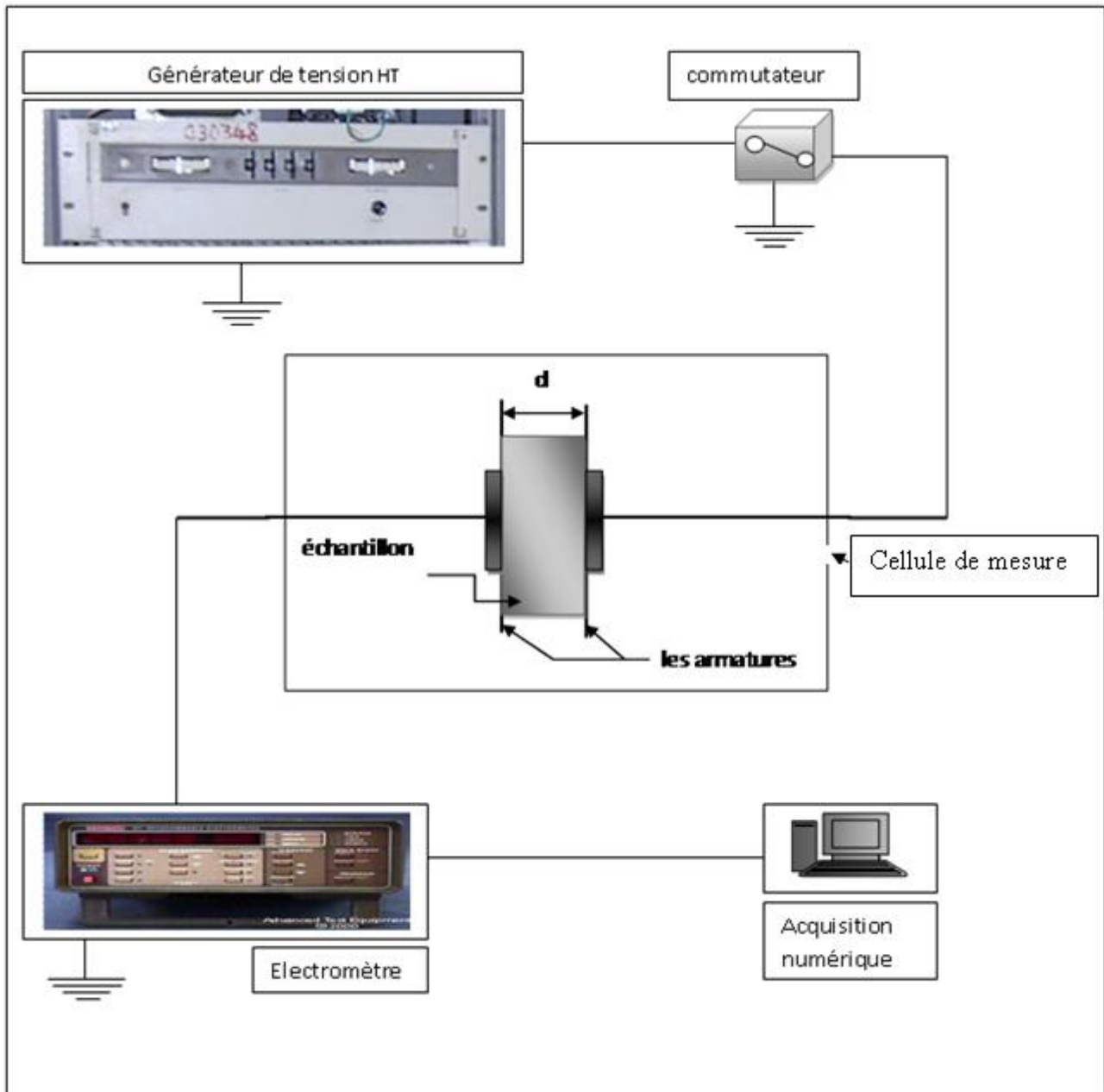
Les mesures de courant de conduction, dans les isolants en général et les polymères en particulier, nécessitent une attention particulière. En particulier, dans le temps d'établissement du régime permanent. En effet, si dans le cas d'un conducteur, l'application d'un échelon de tension conduit à un courant instantané, dans un isolant le courant présente un régime transitoire de quelques secondes à plusieurs jours avant d'atteindre une valeur stable. Ces mesures de courants, à température ambiante en fonction de la température et du champ électrique, ont été effectuées au niveau de l'équipe de diélectriques de la Faculté de Physique de l'USTHB. Les films de PEN ont été fournis par Dupont de Nemours (Luxembourg) Laboratoire de Génie Electrique de l'Université Paul Sabatier de Toulouse.

Le circuit de mesure expérimental utilisé dans toutes nos expériences est représenté en figure II.2, il est composé essentiellement :

- d'un circuit d'alimentation électrique et de mesure de courant,

## Matériau et dispositif expérimental

- d'une cellule de mesure,



**Figure II. 2** : Schéma synoptique du dispositif expérimental de la mesure du courant

## 2.1 Cellule de mesure

La cellule de mesure, représentée par la photographie N°1, est une boîte isolante contenant des armatures métalliques, formant un condensateur simple. L'échantillon est placé entre les électrodes. Elles sont circulaires de diamètre 5.08 cm, comme le montre la figure II.3.

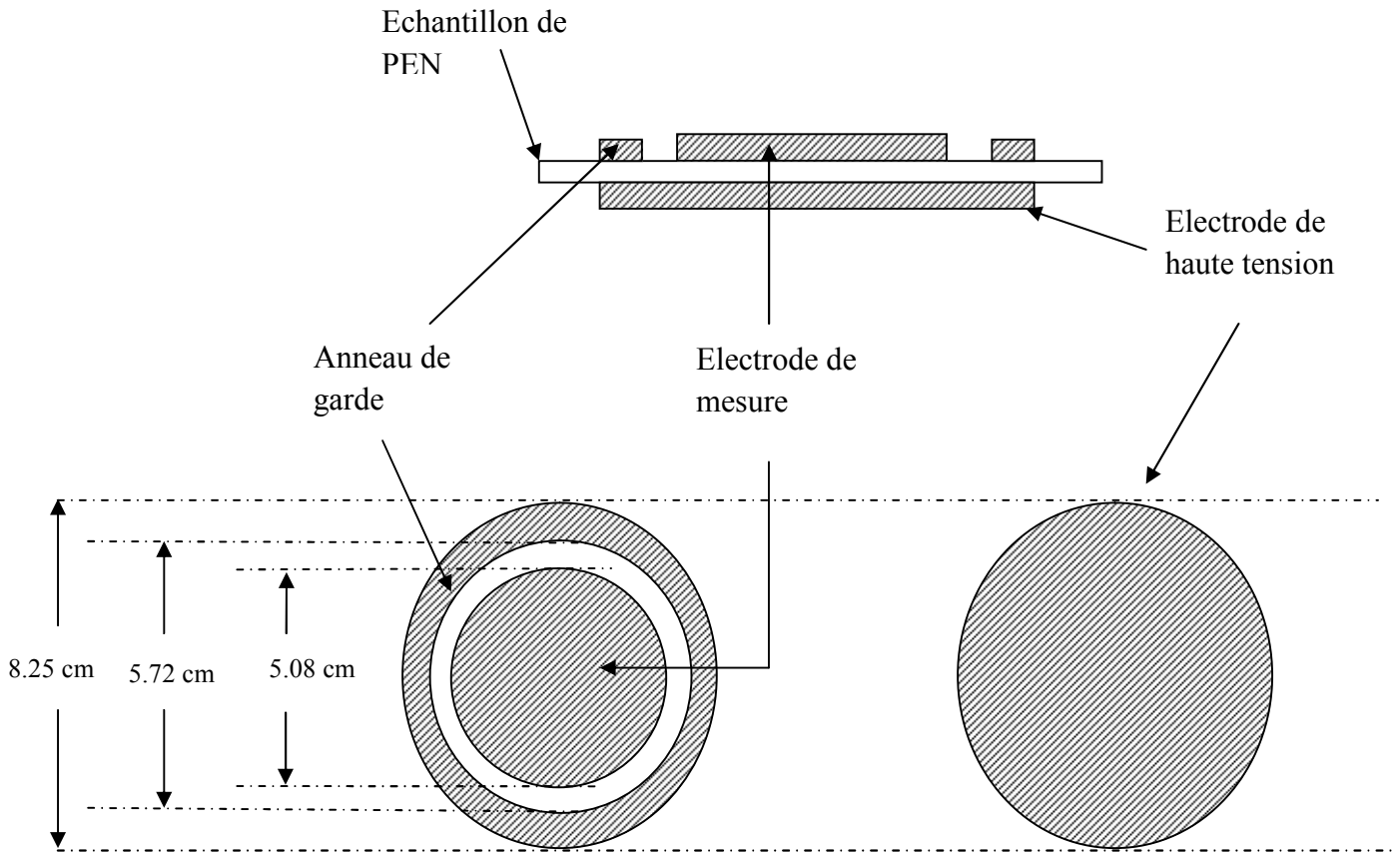


Figure II.3 : Dimensions des électrodes



Photographie N° 1: Photographie de la cellule de mesure

### 2. 2 Circuit d'alimentation et de mesure de courant

Il est constitué d'une source de tension stabilisée (HP 6525 A DC) délivrant une tension continue pouvant atteindre une valeur maximale de 4000 V. Les opérations de polarisation et de dépolarisation du matériau s'effectuent grâce à un commutateur relié à cette source.

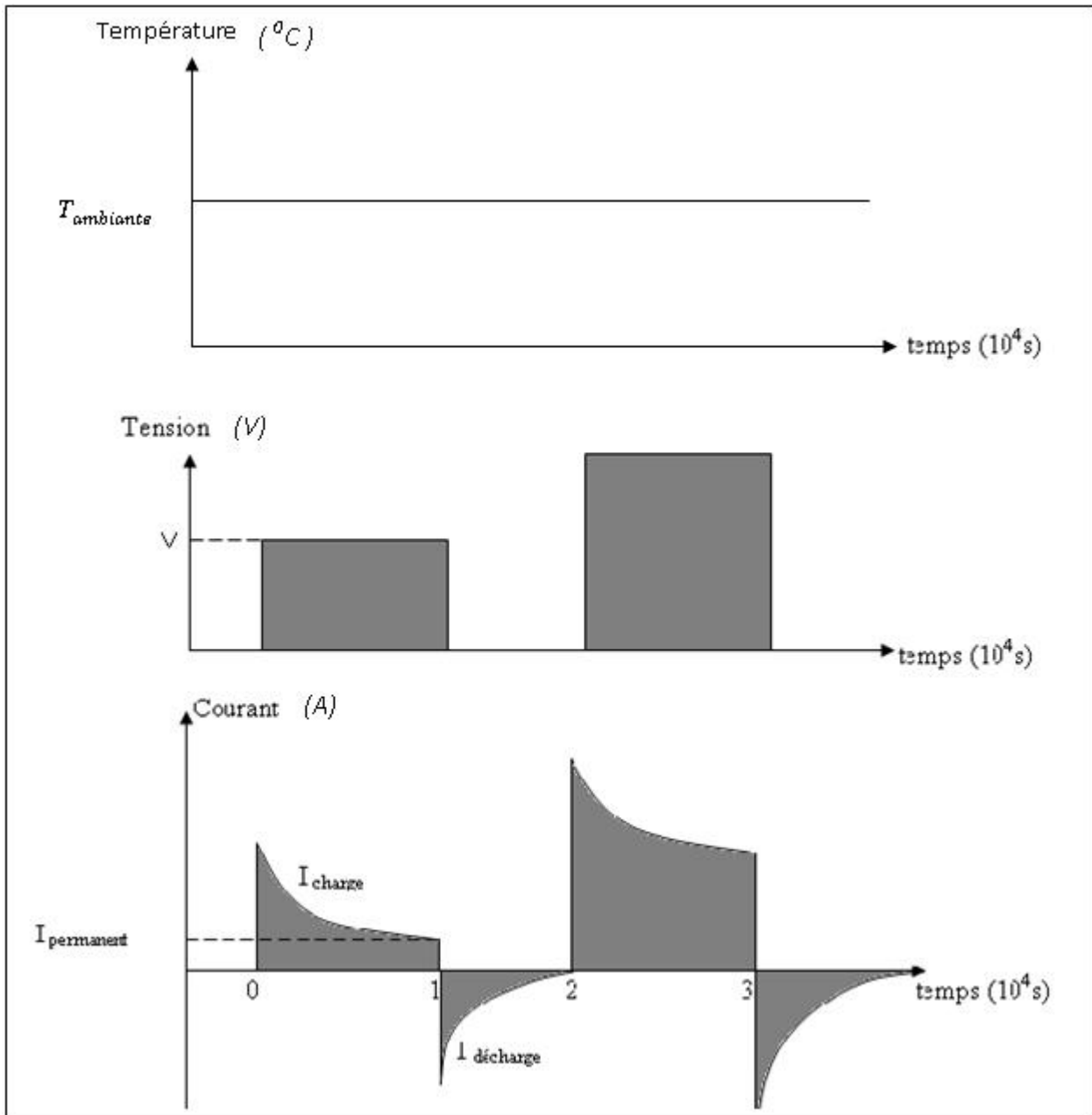
Le courant qui circule à travers le matériau, est mesuré à l'aide d'un électromètre programmable (Keithley 617) pouvant détecter des courants de l'ordre de  $10^{-15}$  Ampères.

Une carte d'interface GPIB placée entre l'électromètre et un microordinateur à l'aide d'un BUS IEEE 488, permet la lecture des courants à des instants de l'ordre d'une seconde, un programme de pilotage sous visual-basic a été réalisé pour prélever les courants à des intervalles de temps réguliers.

### 2. 3 Méthode de mesure

Avant chaque mesure de courant, les échantillons placés entre deux électrodes métalliques, sont court-circuités pendant plusieurs heures à la température ambiante pour éliminer les charges résiduelles contenues dans le matériau.

Une tension de polarisation constante est appliquée à l'échantillon et le courant de charge est mesuré pendant trois heures. L'application d'un échelon de tension à l'échantillon fait apparaître un courant décroissant dans le temps jusqu'à atteindre une valeur de courant quasi constante (figure II.4).



**Figure II. 4 :** Protocole de mesure de courant à la température ambiante

### 3. Techniques expérimentales

Depuis plusieurs années, des efforts considérables ont été effectués pour mettre au point des techniques de caractérisation des polymères et de leurs propriétés. Ces dernières sont la réponse, à l'échelle macroscopique, des mouvements intervenant à l'échelle moléculaire, impliquant toute ou une partie de la molécule.

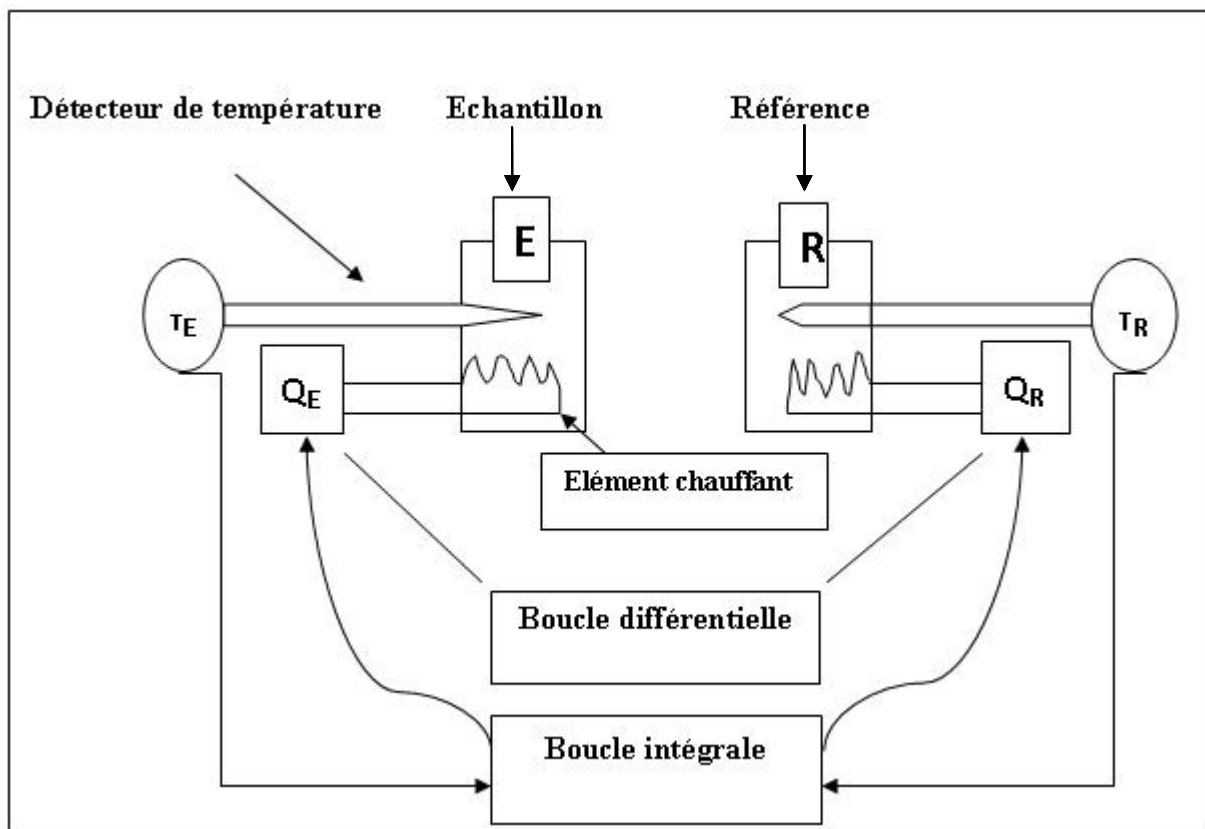
### 3. 1 L'analyse enthalpique différentielle

L'Analyse Enthalpique Différentielle (AED) ou Differential Scanning Calorimetry (DSC), est une technique qui permet de détecter les effets thermiques qui se produisent lors d'un changement d'état physique ou d'une transition d'une phase à une autre dans le matériau. En effet, lors de ces changements, le matériau absorbe ou dégage de la chaleur. L'appareil enregistre ces changements de chaleur.

#### 3. 1. 1 Principe de la mesure

C'est une technique utilisée pour étudier le polymère lorsqu'il est soumis à une variation de température au cours du temps. Lors de cette analyse le thermogramme enregistré correspond à la variation  $\frac{dH}{dT}$ , c'est-à-dire à celle de la chaleur spécifique à pression constante  $C_p$ , avec la température.

Nous avons schématisé le principe de cette technique sur la figure II.5. Le système est constitué de deux boucles de contrôle de chauffe. La boucle intégrale permet d'assurer une augmentation linéaire de la température de référence  $T_R$  et de l'échantillon  $T_E$  en fonction du temps. La boucle différentielle, permet d'ajuster la puissance de chauffe de l'échantillon de telle sorte qu'à chaque instant la température  $T_E$  soit égale à la température  $T_R$ , en compensant les effets endothermiques, exothermiques ou athermiques mis en jeu lors des transitions de phases. Dans les conditions normales d'utilisation ( $P= 1 \text{ atm}$ ) la compensation de la puissance calorifique  $\frac{dH}{dT}$  est mesurée en fonction de la température.



**Figure II. 5:** Schéma du principe de l'analyse enthalpique différentielle

### 3. 1. 2 Protocole de mesure :

L'appareil utilisé dans notre étude est (DSC Q10 TA instruments). La gamme de températures étudiée s'étale de 30 °C à 300 °C, balayée à la vitesse de 10°C/mn sous atmosphère inerte qui est dans notre cas l'Azote.

Au départ, la cellule est calibrée avec de l'indium pur. Avant de les placer dans la cellule, les échantillons de PEN, ayant une masse de 10mg sont scallés dans des capsules en Aluminium.

### 3. 2 Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR)

#### 3. 2. 1 Principe

Le matériau est soumis à un rayonnement électromagnétique dont la longueur d'onde excitatrice appartient au domaine de l'infrarouge,  $2,5 \times 10^{-6} \text{ m} < \lambda < 15 \times 10^{-6} \text{ m}$ , il s'agit de la longueur d'onde du sélénium.

## Matériau et dispositif expérimental

---

En spectroscopie infrarouge, une radiation qui a la même fréquence qu'un mode de vibration sera absorbée, la molécule passe d'un niveau d'énergie stable à un autre niveau. Les règles de sélection de la spectroscopie font qu'il doit y avoir un changement dans le moment dipolaire de la molécule pour que la vibration soit active en infrarouge.

### 3. 2. 2 Protocole expérimental

Le spectre IR global de l'échantillon est enregistré sur un spectromètre de type PERKIN-ELMER (SPECTRUM ONE), dans la région spectrale située entre 500 et 4000  $\text{cm}^{-1}$  (le sous domaine le plus utilisé en analyse des polymères), avec une résolution de 2  $\text{cm}^{-1}$ . Le temps nécessaire pour l'enregistrement est de l'ordre de 1 minute (20 scan).

Il est à noter que les caractérisations des matériaux de l'étude ont été effectuées par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier au niveau de l'équipe couches minces de la Faculté de Physique de l'U.S.T.H.B.

## 4. Bibliographie

- [1] P. J. Cygan et J. P. Zheng, «Thermal Treatment of Polyethylene-2,6-naphthalate (PEN) Film and its Influence on the Morphology and Dielectric Strength,» *Annu. Rep. Conf. Electr. Insul. Dielectr. Phenom.* 630-635. (1993).
- [2] H. Kato, «Biaxially Oriented PEN Films,» *Industrial Materials*, vol. 41, n° 16, pp. 31-36, 1993.
- [3] C. Heffelfinger et K. Knox, «The Science and Technology of Polymer Films,» *Vol II, Chap.14. Sweeting, ed., Wiley-Interscience, New York*, 1971.
- [4] G. Feyder, «A New Material System for Film Chip Capacitors,» *In 16th European Capacitor and Resistor Technology Symposium CARTS-Europe, Bruges '92*, pp. 59-64, 1992.
- [5] I. Clelland et R. A. Price, «New Dielectrics in SMT Metalized Film, Multilayer Capacitors,» *In 16th European Capacitor and Resistor Technology Symposium CARTS-Europe '92*, pp. 21-31, 1992.
- [6] P. J. Cygan et T. R. Jow, «The Investigation of 6  $\mu\text{m}$  Biaxially Oriented Polyethylene-2,6-naphthalate as a Possible Dielectric for Pulse Power Capacitors,» *U.S. Army Research Laboratory. Ft. Monmouth*, vol. 908, pp. 21-31, 1992.
- [7] S. Yasufuku, «Application of Poly (ethylene naphthalate) Films to Electrical and Audio-Visual uses in,» *Japan. IEEE Elec. Insul. Mag*, vol. 12, n° 16, pp. 8-14, 1996.
- [8] M. Vesely et Z. Zamorsky, «Mixed and Polycondensates Based on Terephthalic acid, 2,6-naphthalene dicarboxylic acid and Ethylene Glycol,» *Plaste und Kautschuk*, vol. 10, pp. 146-149, 1993.
- [9] E. Krause, «Comportement Electrique et Physico Chimique des Films de Poly (éthylène-2,6-naphthalène dicarboxylate) Soumis à des Contraintes Electriques et Thermiques,» *Thèse PhD*,

## Bibliographie

---

N°. 2288, *Université Paul. Sabatier, Toulouse*, 1996.

- [10] N. BELKAHLA, «Contribution à la caractérisation électrique de la structure Au/PEN/Au en fonction du champ électrique et de la température : Courants finaux,» *Thèse Magister* , 2008.

## **CHAPITRE III**

# **RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSIONS**

---

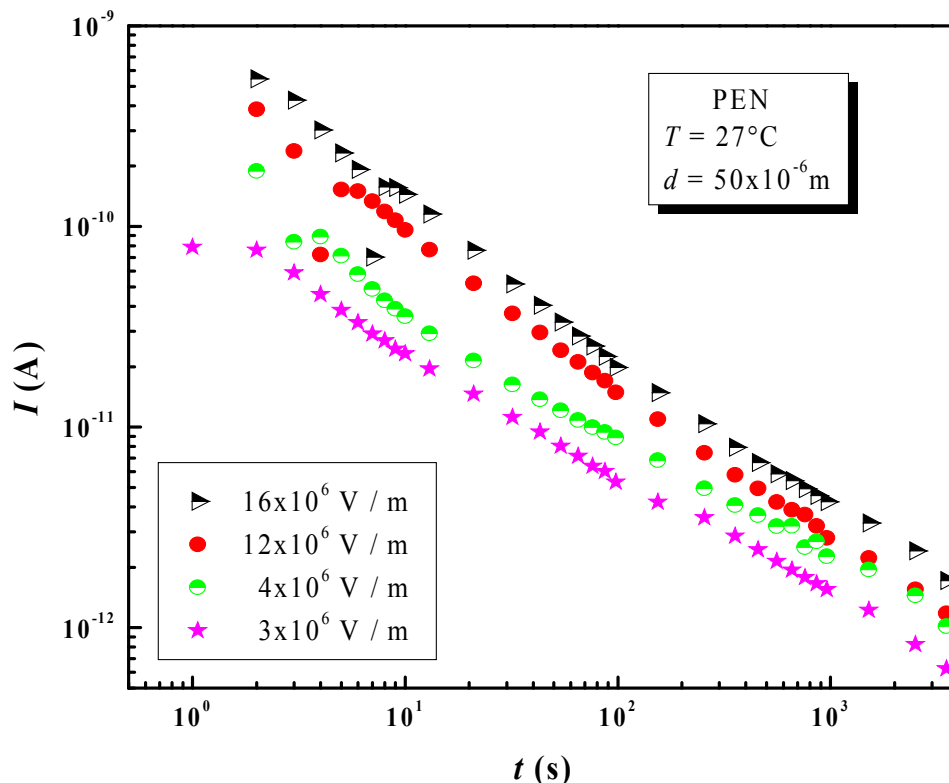
## 1. Introduction

Dans cette partie, nous exposons et analysons les résultats expérimentaux, dans le but de comprendre la réponse du polyéthylène naphthalate (PEN) à une contrainte électrique en fonction des paramètres tels que : le champ électrique et l'épaisseur du matériau.

Les mesures de courants de charge et de décharge sont faites, à température ambiante, pour des champs électriques faible et moyen correspondant à des tensions comprises entre 150 et 900V.

## 2. Conduction électrique

La représentation des caractéristiques  $I(t)$ , obtenues lors de la charge à travers un film de PEN de  $50\mu\text{m}$  d'épaisseur, à température ambiante et à des valeurs croissantes du champ électrique, est donnée sur la figure III.1.



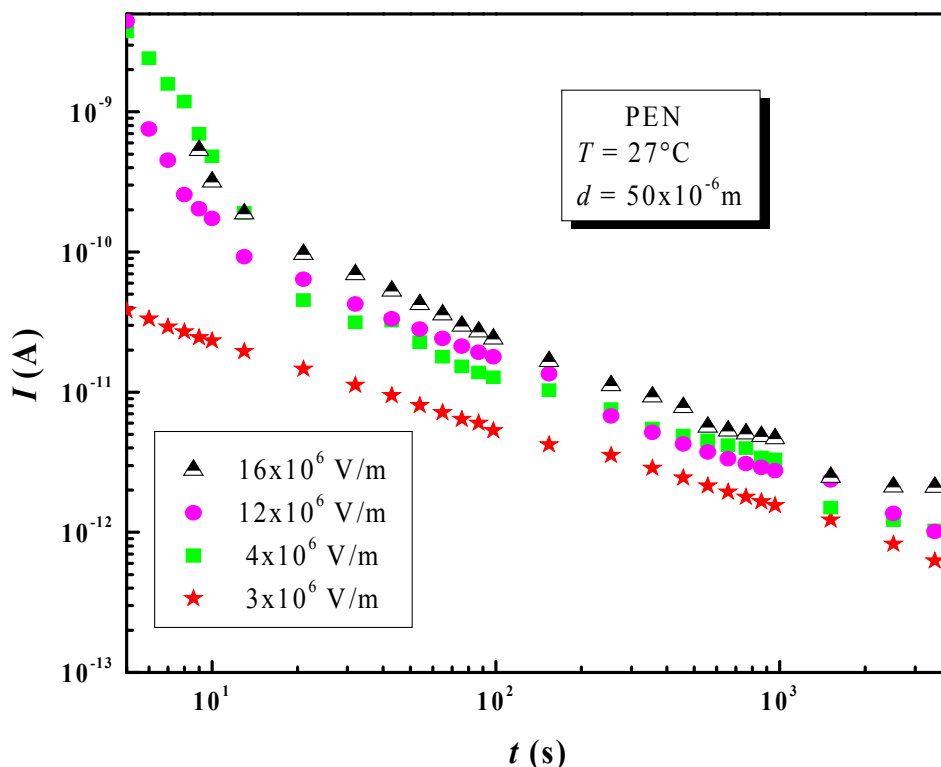
**Figure III. 1:** Evolution du courant de charge au cours du temps à la température ambiante et pour différentes valeurs du champ électrique appliqué

## Résultats expérimentaux et discussions

On remarque à partir de cette figure qu'à l'état vitreux ( $T \ll T_g$ ), l'allure du courant ne présente pas un régime permanent. En effet, au cours de la polarisation, le courant de charge décroît de façon monotone en fonction du temps et le courant augmente à mesure que le champ électrique augmente.

Cette réponse est similaire à celle déjà signalée par plusieurs auteurs sur différents échantillons, à différentes épaisseurs, à savoir, le polypropylène (PP) [1, 2], le polyéthylène (PE) [3, 4], le polyéthylène basse densité (PEBD) [4, 5], le polychlorure de vinyle (PVC) [6], le polyéthylène téréphthalate (PET) [7] et le polyvinilidène fluoride (PVDF) [8].

L'évolution au cours du temps des courants de décharge, illustrée par la figure III. 2, indique encore une décroissance régulière du courant en fonction du temps.



**Figure III. 2:** Evolution du courant de décharge au cours du temps à température ambiante et pour différentes valeurs du champ électrique appliqué

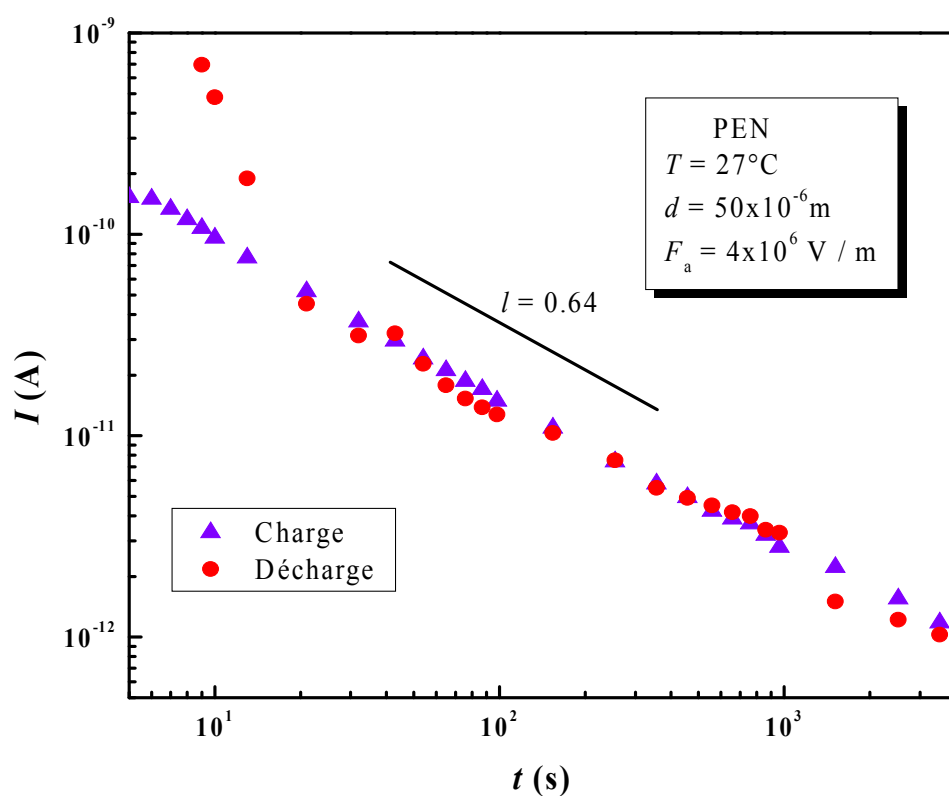
## Résultats expérimentaux et discussions

Ces différentes observations sur la variation des courants de charge et de décharge nous conduit à étudier le comportement des porteurs de charge en régime transitoire.

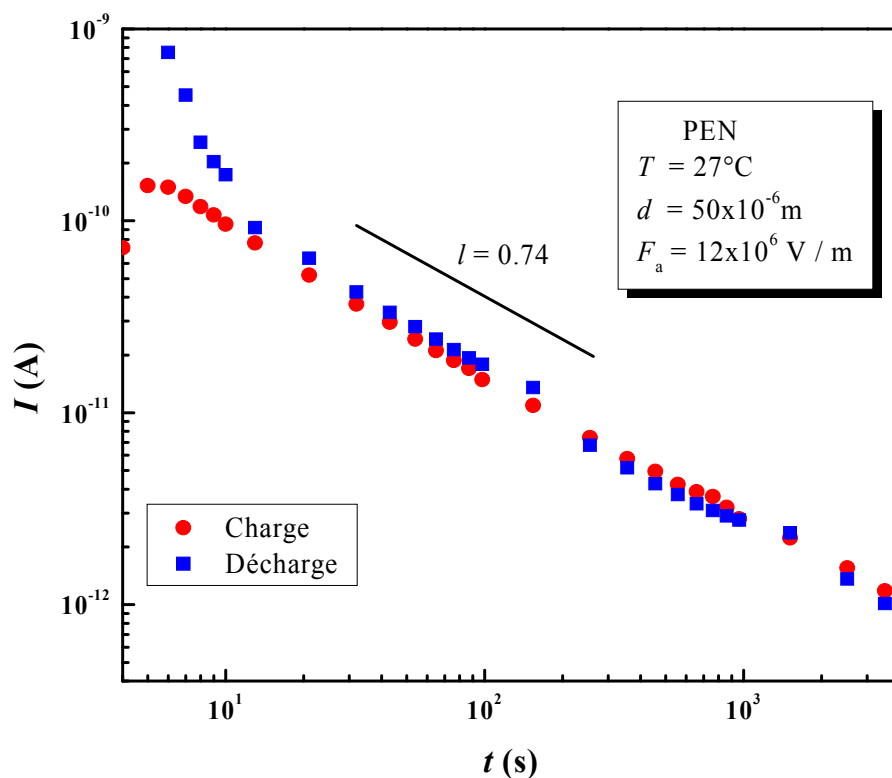
### 2. 1 Etude du régime transitoire

#### 2. 1. 1 Effet du champ électrique

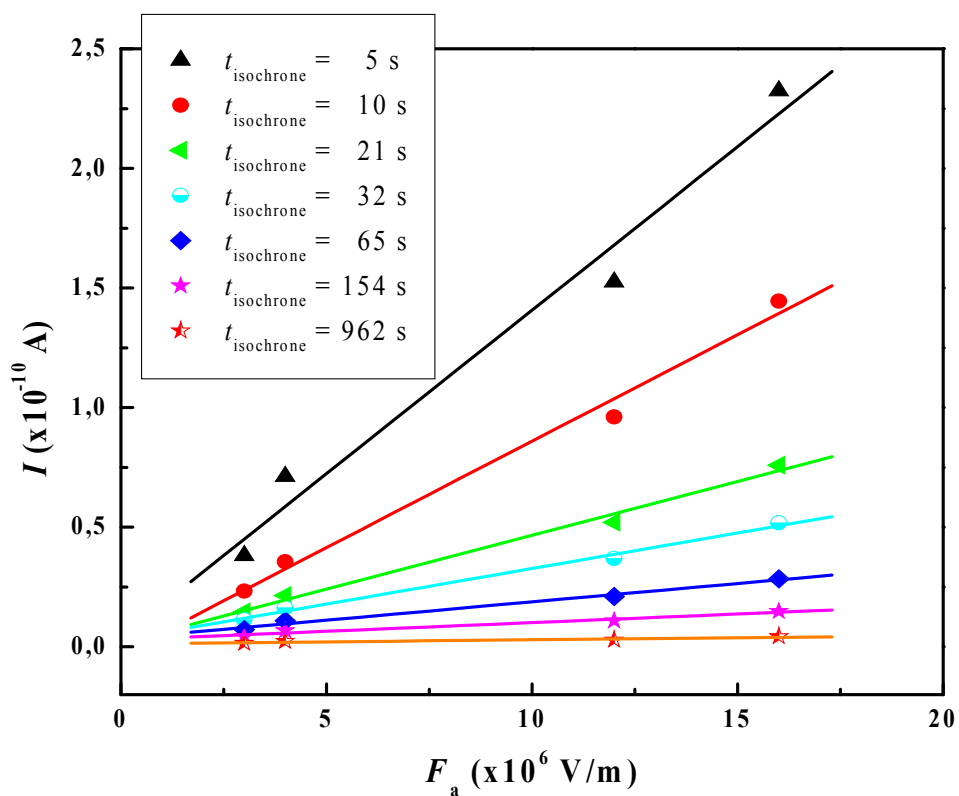
A l'état vitreux et sur toute la gamme de temps, les courbes représentées sur les figures III.3 et III.4, mettent en évidence un recouvrement entre les courants de charge et de décharge à 4 et 12MV/m. Ces courants sont par conséquent dus à un mécanisme dipolaire [9, 10, 7, 11], comme le confirme la figure III.5 qui montre une bonne linéarité des courants isochrones, relevés à différents instants allant de 5 secondes à 16 minutes, en fonction du champ électrique appliqué.



**Figure III. 3:** Evolution des courants de charge et de décharge au cours du temps à champ électrique  $F_a = 4\text{MV/m}$



**Figure III. 4:** Evolution des courants de charge et de décharge au cours du temps à champ électrique  $F_a = 12\text{MV/m}$



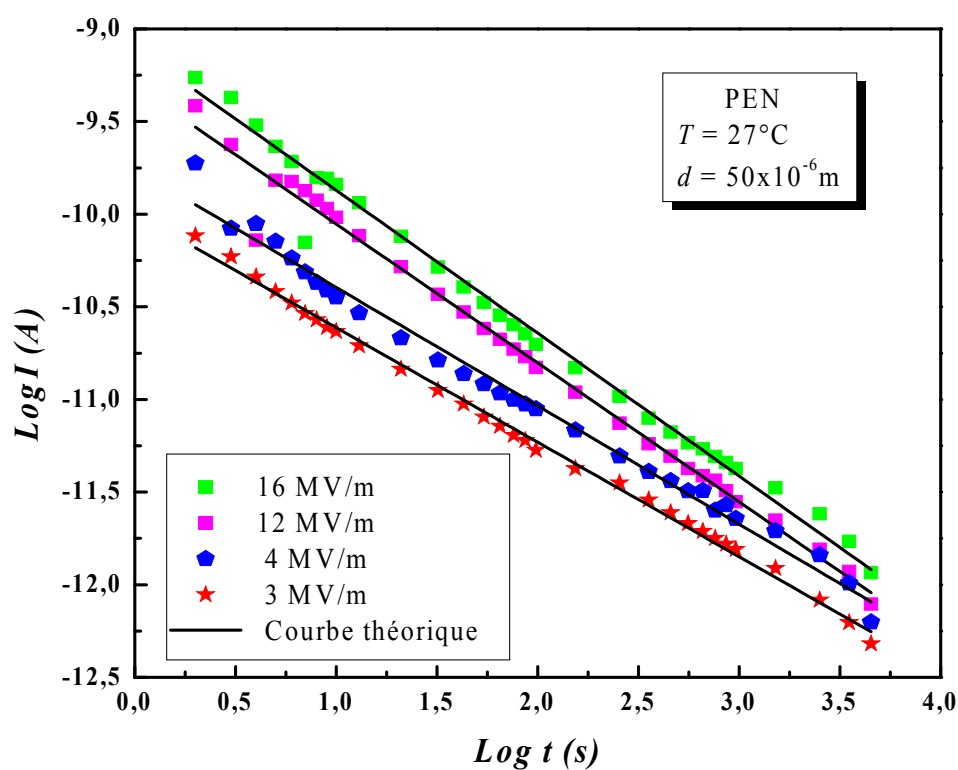
**Figure III. 5:** Courants isochrones à différents instants en fonction du champ électrique appliqué.

## Résultats expérimentaux et discussions

Dans ces conditions, les courants obéissent à la loi de Curie-Von Schweidler:  $I \propto At^{-l}$ , comme le montre la figure III.6, où  $l = 0.64$  pour  $F_a = 4$  MV/m et  $l = 0.74$  pour

$F_a = 12$  MV/m.

Les paramètres  $A$  et  $l$  obtenus après ajustement de la loi de Curie avec les courants de charge, sont indiqués dans le tableau III.1.



**Figure III.6 :** Evolution du courant de charge en représentation log-log à la température ambiante et pour différentes valeurs du champ électrique appliqué

**Tableau III. 1:** Paramètres d'ajustement de la loi de Curie

|                                   |         |         |         |         |
|-----------------------------------|---------|---------|---------|---------|
| $F_a(\times 10^6 \text{ V/m})$    | 16      | 12      | 4       | 3       |
| $A(\times 10^{-10})$              | 7.94    | 4.97    | 1.75    | 1.01    |
| $l$                               | 0.77    | 0.75    | 0.64    | 0.62    |
| <i>Coefficient de corrélation</i> | 0.98716 | 0.98873 | 0.98932 | 0.99714 |

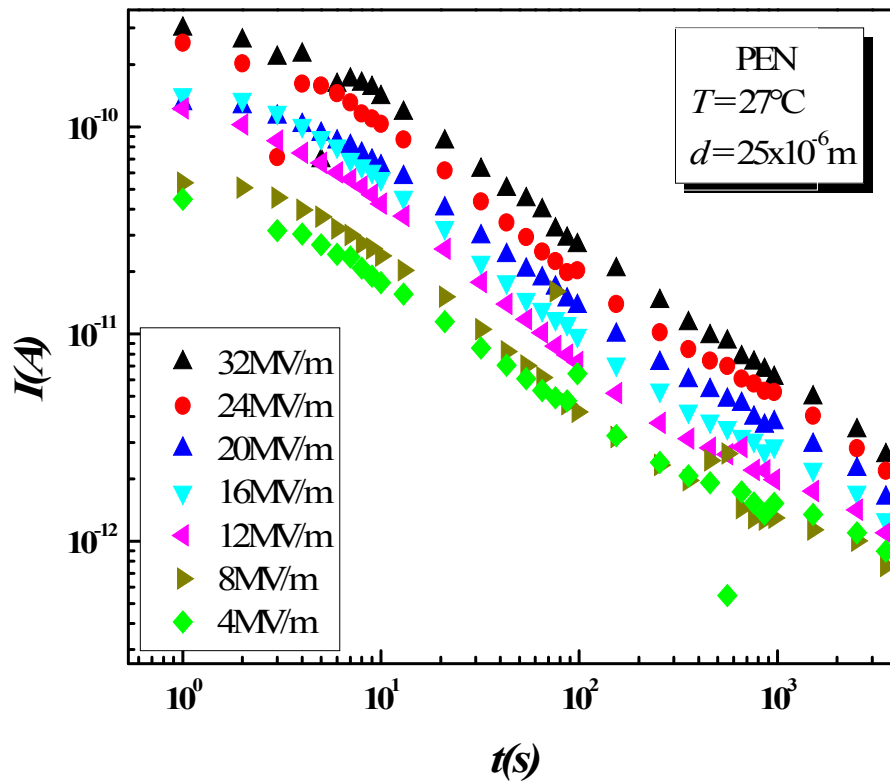
En résumé, lorsqu'on applique un champ électrique constant, à la température ambiante, à un polymère les unités polarisables, qui existent ou qui prennent naissance, vont subir différents mouvements [12, 13, 14, 15, 16, 17, 18, 19, 20, 21]. La polarisation induite s'établit presque instantanément. Elle est suivie de la polarisation dipolaire: ce sont les groupements latéraux de faible encombrement qui relaxent les premiers, puis interviennent les entités polarisables plus volumineuses et enfin la chaîne principale qui se meut sous l'action du champ.

L'annulation du champ électrique et la mise en court-circuit de l'échantillon, se traduit par un phénomène de dépolarisation. La polarisation induite s'éteint immédiatement, les dipôles se réorientent au hasard, le matériau retrouve son état initial [22].

L'absence du phénomène de conduction, à la température ambiante, traduit le fait que le mouvement de charges libres, qui conduit généralement à la formation des charges d'espace, ne prend pas naissance dans le matériau. Dans ces conditions, l'état de la nature du contact (métal/diélectrique) ne joue pas un rôle important dans la réponse électrique du PEN.

### 2. 1. 2 Effet de l'épaisseur

La figure III. 7 représente l'évolution du courant de charge, en fonction du temps et pour différentes valeurs du champ électrique appliqué, circulant à travers un film de  $25\mu\text{m}$  d'épaisseur.



**Figure III. 7:** Evolution du courant de charge au cours du temps à la température ambiante et pour différentes valeurs du champ électrique appliqué

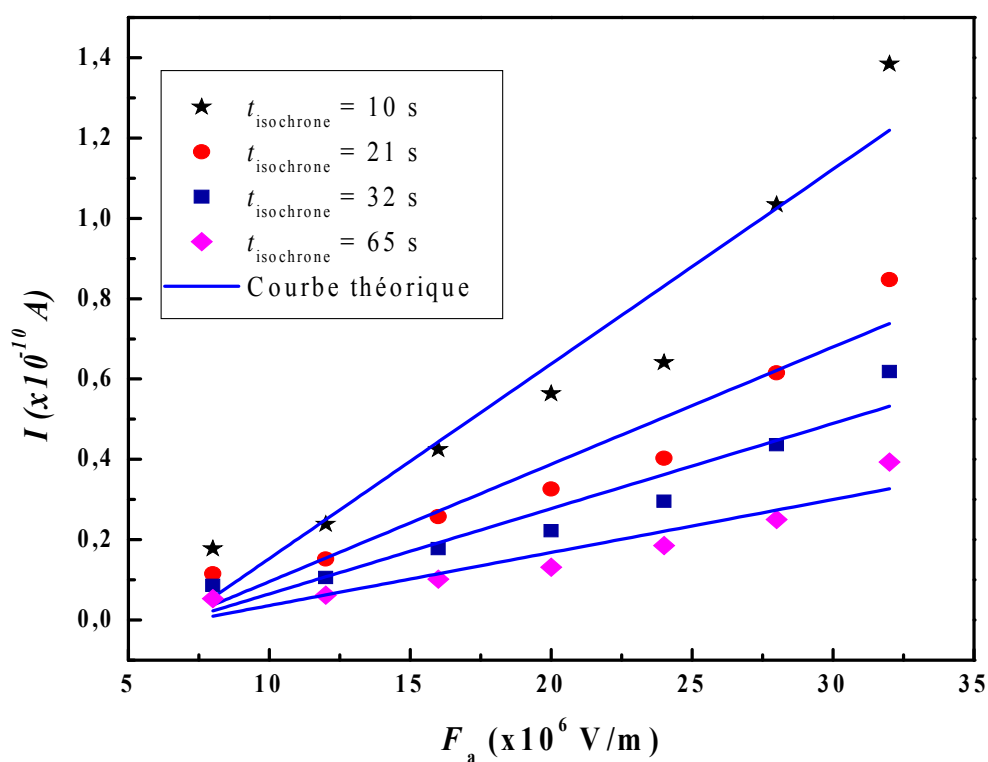
L'allure du courant enregistré sur cet échantillon ressemble à celle déterminée sur le film de  $50\mu\text{m}$  mais avec  $0.60 \leq l \leq 0.66$ , comme l'indique le tableau III.2.

La contribution des mécanismes dipolaires à la circulation du courant, à travers le PEN est illustrée par les figures III.8 et III.9, indiquant, d'une part, la conservation de la nature ohmique du mécanisme de transport et d'autre part, que les courants transitoires après polarisation et dépolarisation sont symétriques. Cette variation du courant de charge a été déterminée par Chavez *et al.* [9] dans ses travaux effectués, sur le polyéthylène naphthalate à  $25\mu\text{m}$ , dans une gamme de champ électrique allant de 12 kV/mm à 132 kV/mm. Dans ce cas, le courant de charge suit la loi de Curie avec  $l \approx 1$ .

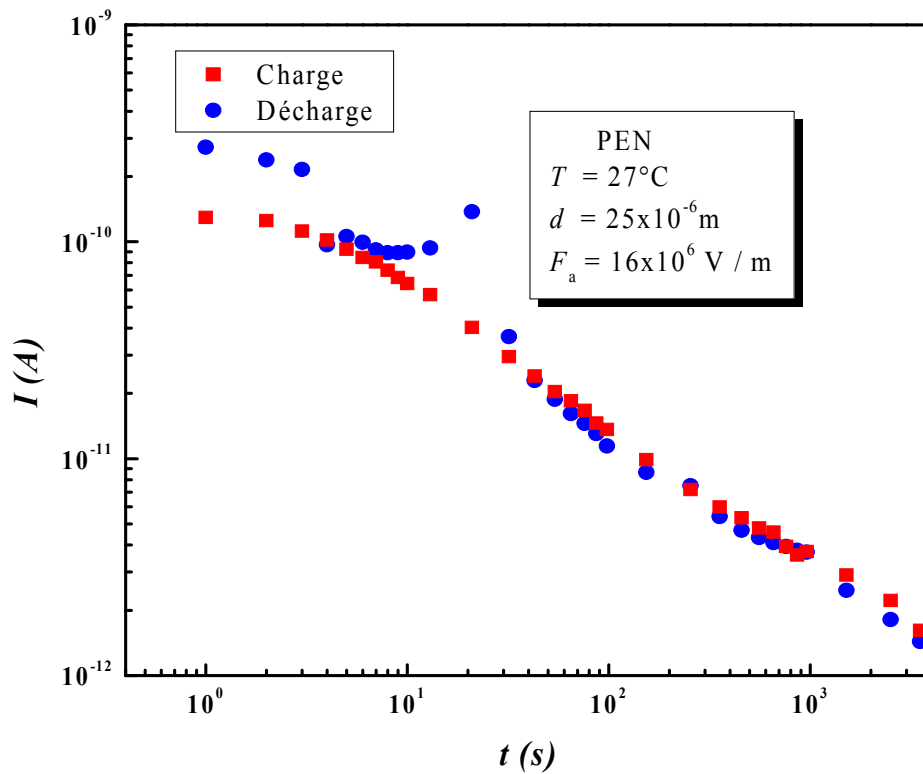
## Résultats expérimentaux et discussions

**Tableau III. 2 :** Paramètres d'ajustement de la loi de Curie

|                            |         |         |         |         |         |         |         |
|----------------------------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| $F_a$ ( $\times 10^6$ V/m) | 32      | 28      | 24      | 20      | 16      | 12      | 8       |
| $A$ ( $\times 10^{-5}$ )   | 8.71    | 7.73    | 6.43    | 6.43    | 5.78    | 4.28    | 4.60    |
| $l$                        | 0.61    | 0.61    | 0.60    | 0.66    | 0.66    | 0.61    | 0.67    |
| Coefficient de corrélation | 0.97067 | 0.97300 | 0.98868 | 0.99081 | 0.99053 | 0.96380 | 0.79655 |

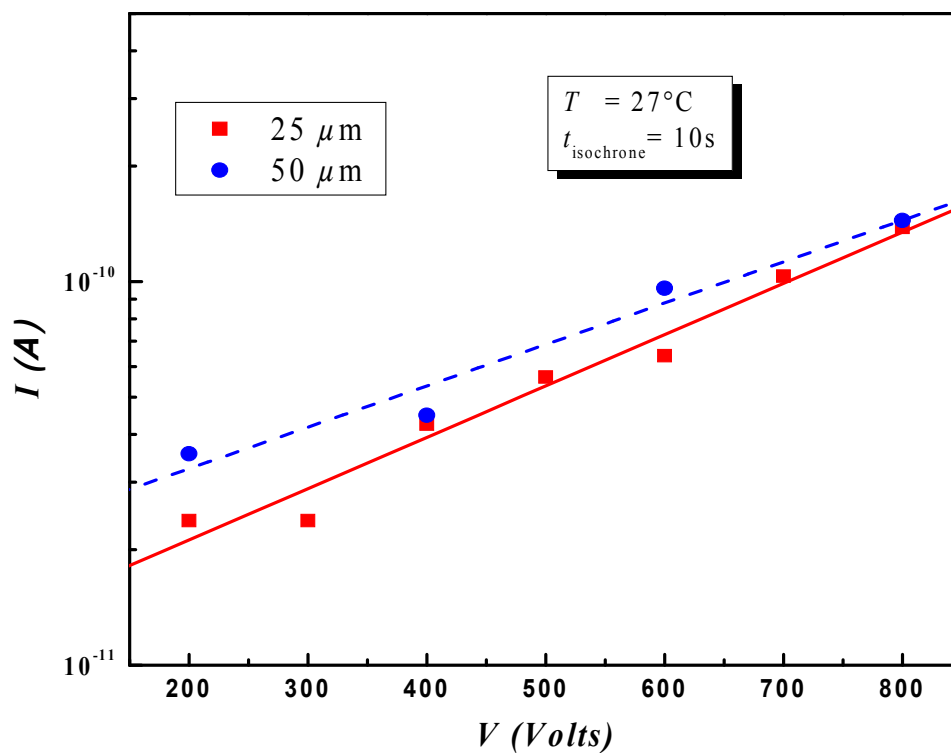


**Figure III. 8 :** Courants isochrones à différents instants en fonction du champ électrique.



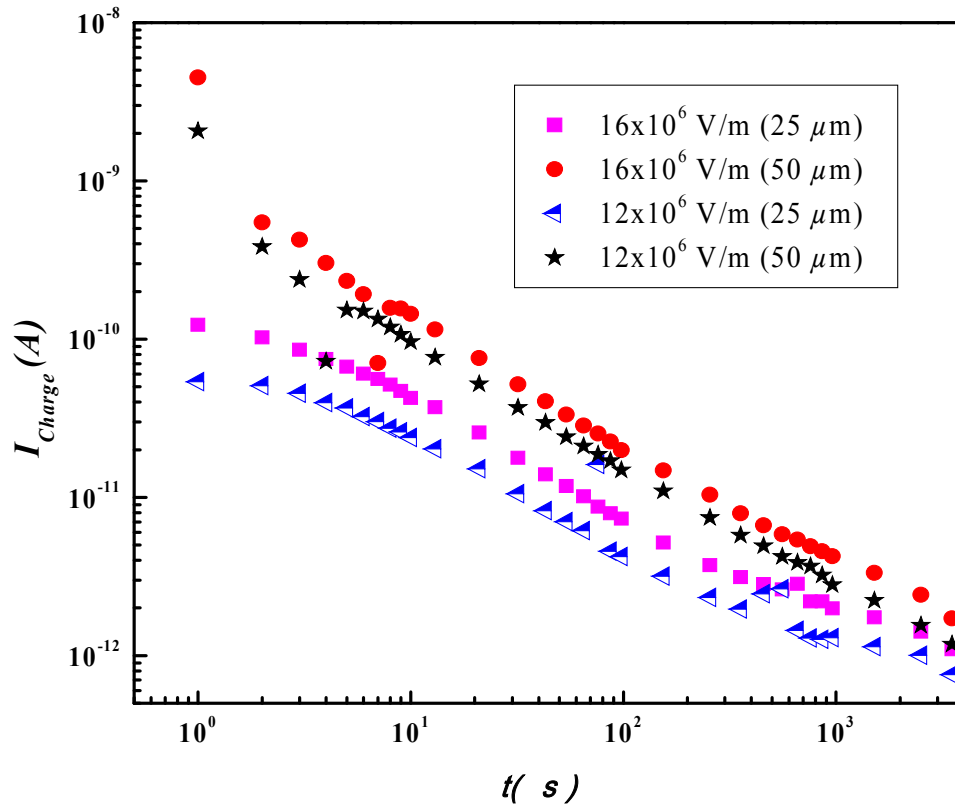
**Figure III. 9:** Evolution des courants de charge et de décharge au cours du temps à champ électrique  $F_a = 16\text{MV/m}$

La courbe, indiquée sur la figure III. 10, donnant la variation du courant isochrone, au bout de 10s, en fonction de la tension appliquée, montre la présence d'un faible écart en courant en fonction de l'épaisseur. Un tel résultat a été trouvé par Chavez [10] aux champs électriques ne dépassant pas les 100 kV/mm. Thielen. [7], dans ses travaux sur l'étude de la conductivité électrique, en régimes transitoire et permanent à travers des films polyesters, tels que le PET et le PEN, en fonction de l'épaisseur de l'échantillon, a indiqué qu'au fur et à mesure que cette dernière augmente, l'intensité du courant est faiblement diminuée.



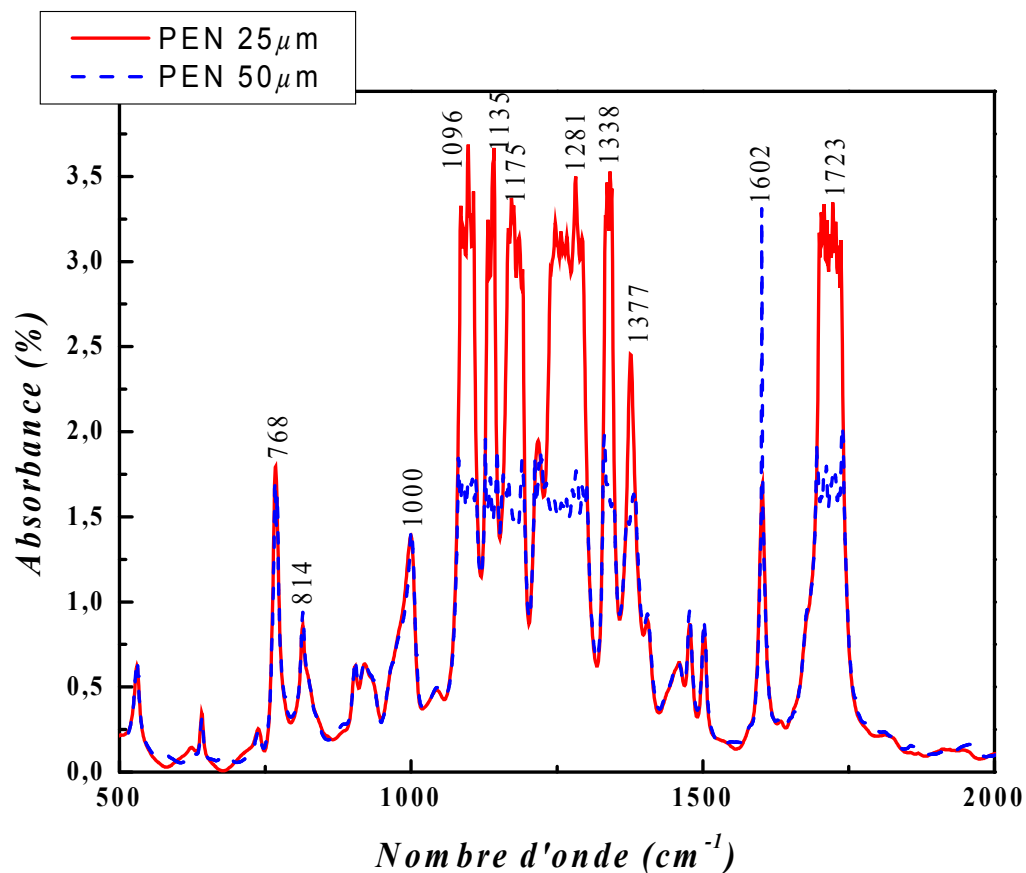
**Figure III. 10:** Caractéristique  $I(V)$  du polyéthylène naphthalate semi-cristallin: 25 $\mu\text{m}$  et 50 $\mu\text{m}$

Or nos résultats expérimentaux donnés par la figure III. 11, qui représente l'évolution du courant de charge enregistrée à travers les deux films PEN à des champs électriques égaux à 16 et 12 MV/m, montrent que l'intensité du courant augmente avec l'épaisseur. Ceci peut être dû à la morphologie du matériau [12, 23, 24]



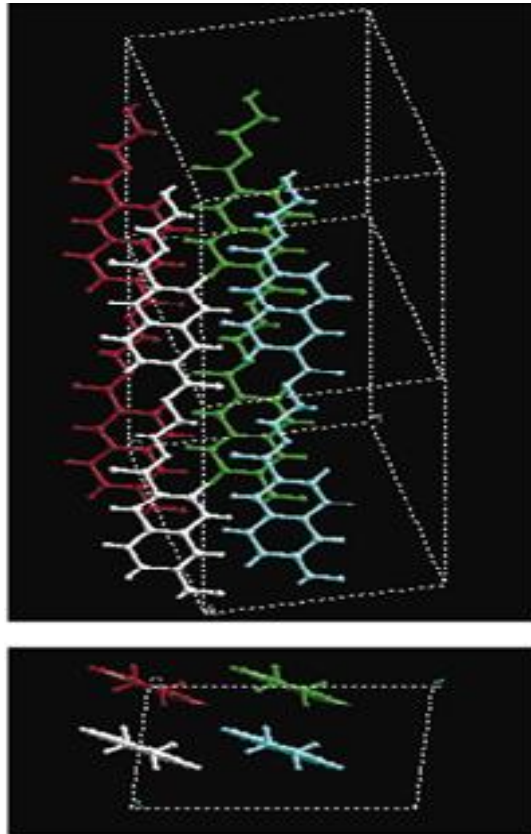
**Figure III. 11:** Evolution du courant de charge au cours du temps à la température ambiante et pour différentes valeurs du champ électrique appliqué à travers un film PEN : 25  $\mu\text{m}$  et 50  $\mu\text{m}$

En effet, bien que les deux échantillons aient la même structure cristalline à l'échelle élémentaire, où les macromolécules du PEN se cristallisent dans le réseau à basses températures ou encore appelé réseau ( $\alpha$ ), déduit à partir de l'identification des différents pics d'absorption FTIR (figure III. 12), les deux films ne présentent pas le même taux de cristallinité. Il est à noter que le réseau basse température, comme le montre la figure III. 12, est une maille triclinique ( $a = 0,651\text{nm}$ ;  $b = 0,575\text{nm}$  et  $c = 1,32\text{nm}$ ;  $\alpha' = 81,33^\circ$ ;  $\beta' = 144^\circ$  et  $\gamma' = 100^\circ$ , sa densité est de  $1,407\text{g/cm}^3$  et une chaîne passe dans chaque cellule unité, parallèlement à l'axe  $c$  [25].



**Figure III.12:** Spectre infra rouge global du PEN entre 500  $\text{cm}^{-1}$  et 2000  $\text{cm}^{-1}$

Ce résultat est vérifié d'une part, à partir de la figure III. 12, qui montre un écart important en amplitude dans les pics d'absorbance entre 25 et 50  $\mu\text{m}$ . D'autre part, à partir de l'analyse enthalpique différentielle (AED), qui indique une différence dans le taux de cristallinité qui atteint les 17%.



**Figure III.13:** Schéma de la maille cristalline ( $\alpha$ ) du PEN

Les valeurs du taux déduites à partir des figures III.14 et III.15, donnant la variation du flux de chaleur en fonction de la température, ont été calculées à partir de la loi suivante:

$$\chi (\%) = 100 \frac{(\Delta H_f + \Delta H_c)}{\Delta H_f^0} \quad (\text{III} - 1)$$

Où:

$\Delta H_f$ : enthalpie de fusion du matériau, dans ce cas, égale à  $41,36 \text{ J.g}^{-1}$

$\Delta H_c$ : enthalpie de cristallisation (pratiquement nulle)

$\Delta H_f^0$ : enthalpie de fusion d'un cristal parfait du PEN, égale à  $103,4 \text{ J.g}^{-1}$  [26].

De telles valeurs sont dues au fait que le PEN de l'étude est un film biétiré. Dans ces conditions, l'étirage conduit à une orientation privilégiée des chaînes et des lamelles cristallines, ce qui augmente la cristallinité du matériau [13, 27, 28].

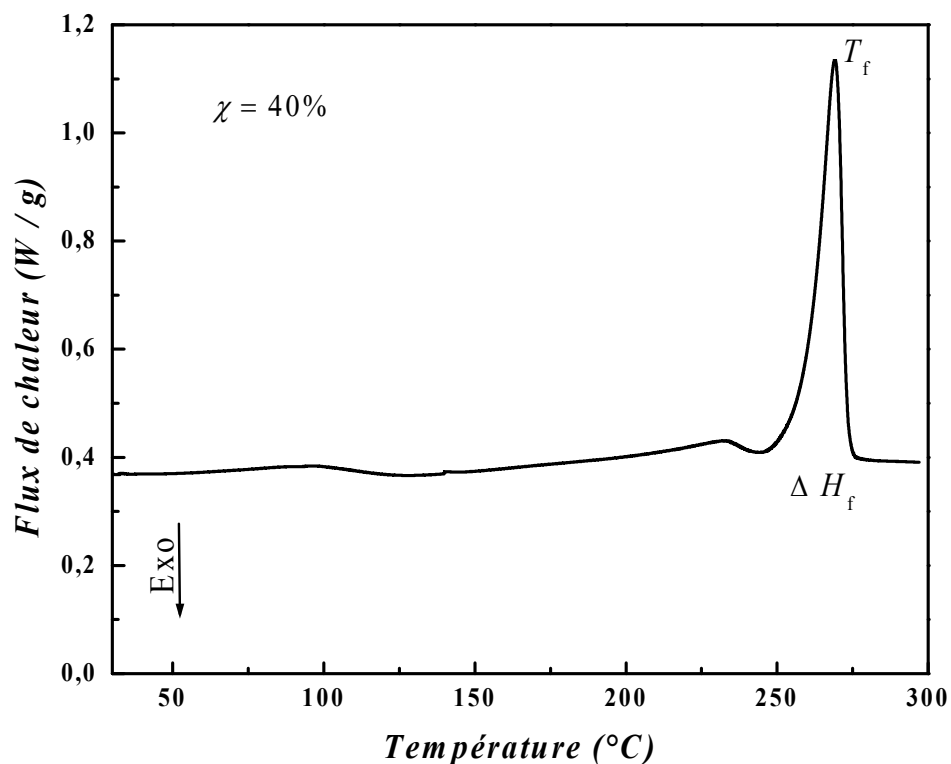


Figure III.14: Thermogramme du PEN 50  $\mu\text{m}$

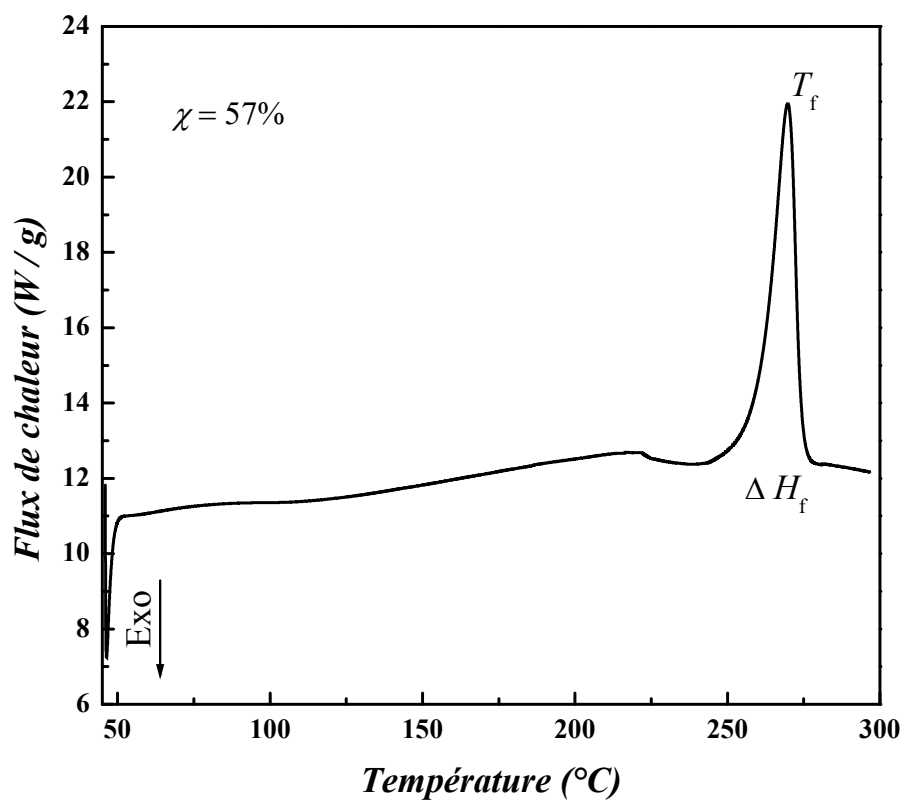
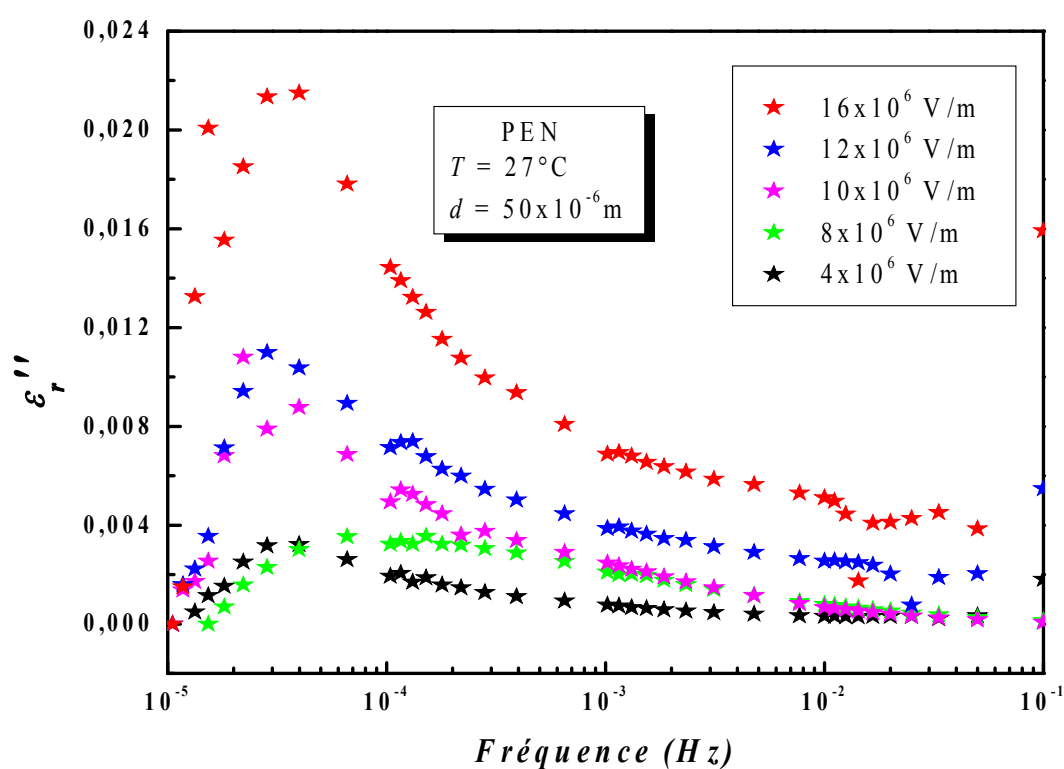


Figure III.15: Thermogramme du PEN avec une épaisseur de 25  $\mu\text{m}$

### 3. Les pertes diélectriques

La réponse fréquentielle, déterminée après application de la transformée de Hamon sur les courants de charge ou de décharge, est étudiée en représentant l'évolution du facteur de dissipation  $\epsilon_r''$  dans une gamme de fréquences allant de  $10^{-5}$  Hz à 1 Hz. La figure III.16 donne la variation fréquentielle du facteur de pertes, à travers le PEN  $50\mu\text{m}$  et à différentes valeurs du champ électrique.



**Figure III.16:** Variation de l'indice de pertes en fonction de la fréquence, dans le PEN  $50\mu\text{m}$  et à différentes valeurs du champ électrique

Différents processus de relaxation ont été mis en évidence, dans le PEN, par stimulation thermomécanique et par des mesures diélectriques [29, 23, 30, 31]. Le premier processus nommé  $\beta$  a été localisé autour de  $-50^{\circ}\text{C}$ , il a été attribué aux mouvements moléculaires non coopératifs de quelques parties de la chaîne principale. Le deuxième processus  $\beta^*$  se manifeste autour de  $65^{\circ}\text{C}$ , il a été attribué selon les travaux de Blundell et *al.* [32], sur les polyesters à cristal liquide et contenant les groupements 2,6 naphthyle, aux mouvements coopératifs des cycles naphthalènes avec les groupements carbonyles avoisinants. D'autre part, Menegotto et *al.* [33] ont montré la présence de deux pics nommés respectivement,  $\beta_1$  et  $\beta_2$ , et ceci dans leurs études effectuées sur le PEN par spectroscopie diélectrique et par la technique des courants stimulés thermiquement. Le premier pic  $\beta_1$ , équivalent au processus  $\beta^*$ , a été associé aux cycles phényle, quant au second, correspondant au processus  $\beta$ , il a été associé aux groupements carbonyles. D'autres travaux [23, 31, 34] portant sur l'étude des phénomènes de relaxation dans le polyéthylène naphthalate avec différentes morphologies ont aussi identifié deux processus existant au dessous de la température de transition vitreuse,  $\beta$  et  $\beta^*$ , associés respectivement, aux mouvements des groupements ester et de quelques mouvements coopératifs des agrégats naphthalènes [35].

Le troisième processus de relaxation nommé  $\alpha$ , situé au voisinage de  $130^{\circ}\text{C}$  dans le PEN constitue la manifestation diélectrique de la transition vitreuse. Il est associé à des mouvements micro brownien des segments de chaîne dus aux réarrangements configurationnels de la chaîne principale dans la phase amorphe [22, 24, 31].

### 3. 1 Effet du champ électrique

On observe, à partir de la figure III. 17 que le pic de pertes se déplace vers les basses fréquences lorsque le champ électrique augmente. De plus l'amplitude du facteur de dissipation augmente au fur et à mesure que le champ électrique augmente. Un tel résultat a été déterminé par Berdous et *al.* [36] dans ses travaux sur l'étude des pertes diélectriques dans le polyéthylène naphthalate à des températures inférieures à  $150^{\circ}\text{C}$ .

L'ajustement de la formule généralisée de Jonscher [37], donnant la composante dissipative  $\varepsilon_r''$  à un facteur près, avec nos résultats expérimentaux, telle que:

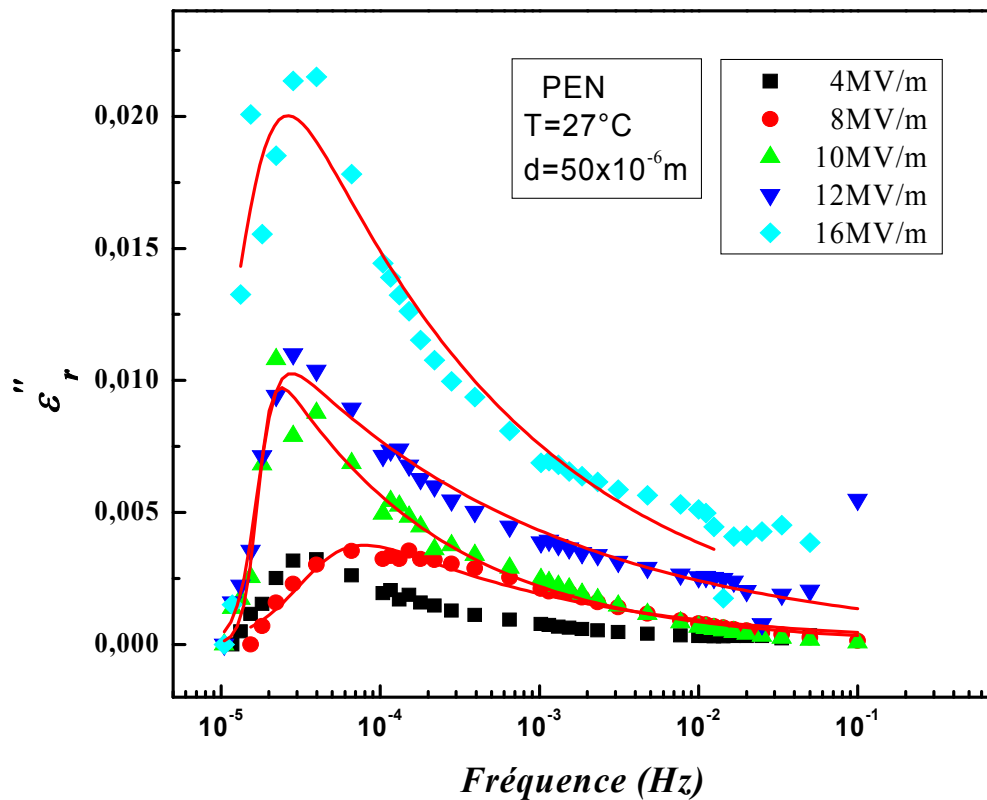
## Résultats expérimentaux et discussions

$$\varepsilon_r'' = A \left[ \left( \frac{\omega}{\omega_{pic}} \right)^{-m} + \left( \frac{\omega}{\omega_{pic}} \right)^{1-n} \right]^{-1} \quad (1-2)$$

Nous a permis d'une part, de reproduire avec un très bon accord la réponse du PEN sur toute la gamme de fréquence étudiée, comme l'indique la figure III.17. d'autre part, nous avons pu estimer les valeurs des paramètres du modèle, en particulier les paramètres de distribution  $m$  et  $n$  qui sont donnés dans le Tableau III. 3.

**Tableau III. 3** : Paramètres d'ajustement de la loi de Jonscher (PEN 50 $\mu$ m)

| Fa (10 <sup>-6</sup> V/m) | 4    | 8    | 10   | 12   | 16   |
|---------------------------|------|------|------|------|------|
| m                         | 0.79 | 0.36 | 0.46 | 0.81 | 0.57 |
| n                         | 0.56 | 0.68 | 0.59 | 0.74 | 0.74 |



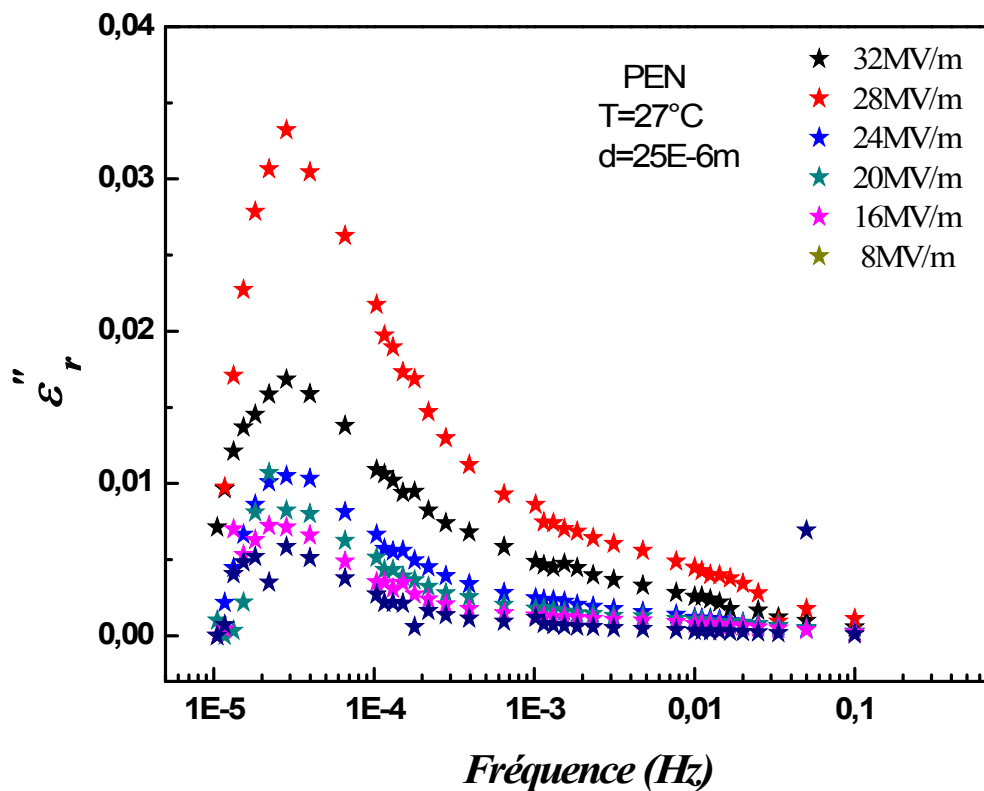
**Figure III.17**: Variation de l'indice de pertes, expérimental et théorique, en fonction de la fréquence, dans le PEN 50 $\mu$ m, à différentes valeurs du champ électrique

### 3.2 Effet de l'épaisseur

La figure III. 18, donnant la variation de l'indice de pertes dans le PEN  $25\mu\text{m}$ , montre que l'épaisseur de l'échantillon n'influe pas sur le sens de déplacement de la position du pic lorsque le champ électrique augmente. Par contre, on remarque une diminution dans l'amplitude des pertes diélectriques. En effet, pour un champ électrique égal à  $16 \times 10^6 \text{ V/m}$ , par exemple, l'amplitude du pic de pertes est de 0.02 dans le cas du PE  $50\mu\text{m}$ , tandis que pour  $25\mu\text{m}$ , le  $\epsilon_r''$  ne dépasse pas une valeur de 0.01.

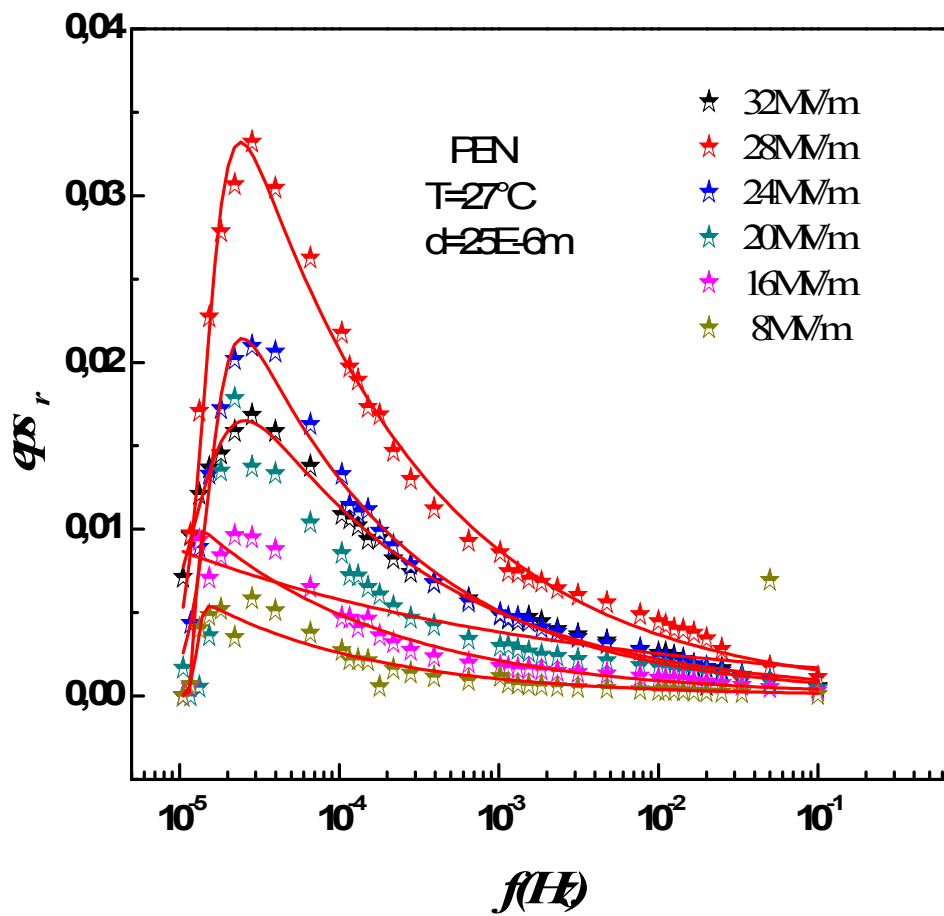
**Tableau III. 4** : Paramètres d'ajustement de la loi de Jonscher (PEN  $25\mu\text{m}$ )

| Fa ( $10^{-6}\text{V/m}$ ) | 4    | 8    | 10   | 12   | 16   |
|----------------------------|------|------|------|------|------|
| m                          | 0.39 | 0.66 | 0.87 | 0.51 | 0.33 |
| n                          | 0.59 | 0.63 | 0.55 | 0.59 | 0.64 |



**Figure III.18:** Variation de l'indice de pertes diélectriques en fonction de la fréquence, dans le PEN  $25\mu\text{m}$  et à différentes valeurs du champ électrique

La encore la loi de Jonsher est en bon accord avec les pics d'absorption expérimentaux, comme l'indique la figure III.19.



**Figure III.19:** Variation de l'indice de perte diélectriques, expérimental et théorique, en fonction de la fréquence, dans le PEN  $25 \mu\text{m}$  et à différentes valeurs du champ électrique

### 4. Conclusion

Les mesures des courants de charge ont montré la non existence du régime permanent dans l'allure temporelle du courant.

La réversibilité que présente les courants de charge et de décharge ainsi que la linéarité avec le champ électrique montrent que le régime transitoire est régi par un mécanisme dipolaire.

L'étude de la réponse électrique du PEN en fonction de l'épaisseur a mis en évidence l'effet de la structure cristalline du matériau sur son comportement.

L'effet du champ électrique sur l'indice de pertes diélectriques a montré que, dans le PEN, ce dernier se déplace vers les basses fréquences. De plus, le PEN 25  $\mu\text{m}$  présente un indice de pertes diélectriques faible par rapport au PEN 50 $\mu\text{m}$ .

Un très bon ajustement de la formule de Jonscher, donnant la composante dissipative  $\varepsilon_r''$ , avec nos résultats expérimentaux, a été déterminé.

### 5. Bibliographie

- [1] D. K. Das-Gupta, «Conduction Mechanisms and High-field Effects in Synthetic Insulating Polymers,» *IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 4, pp. 149-155, 1997.
- [2] D. K. Das-Gupta, «A Study of Absorption Currents in Polypropylene,» *J. Phy. D. Appl. Phys*, vol. 9, pp. 2041-2048, 1997.
- [3] N. Amroun, M. Saidi, M. Bendaoud et T. G. Hoang, «Pressure Effect on Space Charge in Low Density Polyethylene (LDPE),» *Mater. Chemi. Phys*, vol. 33, pp. 168-170, 1993.
- [4] V. Adamec et J. Caladerwood, «On the origin of electrical Conductivity in Polyethylene,» *J. Phys. D*, vol. 14, pp. 1487-1494, 1981.
- [5] D. Das-Gupta et K. Joyner, «A study of absorption currents in low density polyethylene,» *J. Phys. D: Appl Phys*, vol. 11, pp. 955-962, 1978.
- [6] P. J. Atkinson et R. J. Fleming, «*Journal of Physics*,» vol. 6, p. 864, 1988.
- [7] A. Thielen et J. Niezette, «Characterisation of Polyester Films Used in Capacitors. I. Transient and Steady State Current,» *J. Appl. Phys*, vol. 76, pp. 4694-4695, 1994.
- [8] E. R. Neagu et R. M. Neagu, «Analysis of Electric Conduction Mechanisms in Polyethylene Terephthalate,» *Materials letters.*, vol. 43, pp. 364-371, 1998.
- [9] J. F. Chavez et J. J. Martinez, «The High Electric Field in PEN,» *Proceeding of the (2004) IEEE International Conference on Solid Dielectrics. In Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena Annual Report. Washington, D.C.: National Academy of Sciences-National Research Council*, 2004.
- [10] J. F. Chavez, A. Peter, J. J. Martinez-Vega et D. Marty-Dessus, «Charge Accumulation, Conduction Mechanisms and Degradation in High Fields on PEN,» *Proceeding of the (2004) IEEE International Conference on Solid Dielectrics. In Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena Annual Report. Washington, D.C.: National Academy of Sciences-National Research Council*, 2004.
- [11] M. Ishiharada, S. Hayashi et S. Saito, «Electrical Conduction in Poly(ethylene-2,6-naphthalene) Films of Varying Crystallinity,» *Polymer*, vol. 27, pp. 349-352, 1986.
- [12] K. Kojima, Y. Takai et M. Ieda, «Electronic Conduction in Polyethylene Naphthalate at High Electric Field,» *J. Appl. Phys*, vol. 59, pp. 2655-2659, 1986.

## Bibliographie

---

- [13] K. Kojima, Y. Takai et M. Ieda, *Jpn J Appl Phys*, vol. 21, pp. 1025-1027, 1982.
- [14] G. Teysse, D. Mary et C. Laurent, «Analysis of the Luminescence Decay Following Excitation of Polyethylene naphthalate films by an Electric Field,» *J. Phys. D: Appl. Phys*, vol. 31, pp. 267-275, 1998.
- [15] S. Pelissou, «Propriétés Diélectriques du Polyéthylène à Température Elevée,» *Thèse de Ph.D. Université de Montréal*, 1986.
- [16] A. Many et G. Rakavy, «Theory of Transients Currents in Solids. Phys,» *Rev*, vol. 129, p. 1980, 1962.
- [17] R. Goffaux, «Introduction Physique aux Mécanismes de Conduction dans les Matériaux Isolants Solides (Mobilité Electronique). Laboratoire de Recherche Ateliers de Construction Electriques de Charleroi,» *Belgique*, 1965.
- [18] P. Avenas, «Rôle de la Cristallinité dans la Mise en Forme des Polymères,» *Journal de Physique Colloque C2, Supplément au n°6. Tome 39. Page C2-37*, 1978.
- [19] P. Combette et I. Emlout, «Physique des Polymères: Structure, fabrication, emploi. Chapitre IV : Structure des polymères semi-cristallins».
- [20] A. K. Jonscher in ref [9], «,» *Phys. Thin Films*, vol. 11, pp. 205-317, 1980.
- [21] H. J. Wintle, «Absorption Current, Dielectric Constant, and Dielectric Loss by the Tunnelling Mechanism,» *J. Appl. Phys*, vol. 44, p. 2541, 1973.
- [22] N. Amroun. Saidi, «Contribution à l'Etude de la Conduction Electrique dans le Polyéthylène Téréphtalate, le Polyéthylène Basse Densité et le Polyimide, en Fonction du Champ Electrique, de la Température et de la Pression,» *Thèse de Doctorat d'état, usthb*, 2001.
- [23] C. J. Canadas, J. A. Diego, M. Mudarra, J. Belana, R. Diaz-Calleja, M. J. Sanchis et C. Jaimés, «Relaxation Study of Poly (ethylene-2,6-naphthalene dicarboxylate) by T.S.D.C, D.E.A and D.M.A. Polymer.,» vol. 40, pp. 1181-1190, 1999.
- [24] L. Hardy, I. Stevenson, G. Seytre et A. Schönals, «Dielectric and Dynamic Mechanical Relaxation Behaviour of Poly(ethylene 2,6 Naphthalene dicarboxylate),» *I: Amorphous Films. Polymer*, vol. 42, pp. 5679-5687, 2001.
- [25] M. Cakmak, Y. D. Wang et M. Simhambhatla, «Processing Characteristics, Structure Development, and Properties of Uni and Biaxially Stretched Poly (ethylene 2,6 naphthalate) (PEN) Films,» *Polymer Engineering and Science*, vol. 30, pp. 721-733, 1990.
- [26] S. Z. D. Cheng et B. Wunderlich, «Glass Transition and Melting Behavior of Polyethylene-2,6-

## Bibliographie

---

- naphthalene dicarboxylate. *Macromolecules*,» vol. 21, pp. 789-797, 1988.
- [27] N. Saidi.-Amroun, S. Berdous, M. Saidi et M. Bendoud, «Modeling of Transient Currents in Polyethylene terephthalate,» *International Journal of Polymer Anal. Charact* , vol. 12, pp. 359-371, 2007.
- [28] P. Combette et I. Emlout, «Physique des Polymères: Structure, fabrication, emploi. Chapitre IV : Structure des polymères semi-cristallins».
- [29] D. Colombin, N. Zouzou et J. J. Martinez-Vega, «Influence of Morphological and Conformational Changes on the Molecular Mobility in Poly(ethylene naphthalene-2,6-dicarboxylate),» *Macromol. Symp*, vol. 212, pp. 479-484, 2004.
- [30] J. Guastavino, E. Krause et C. Mayoux, «Influence of Aging on Electrical Properties of Polyethylene Naphthalate-2,6-Dicarboxylate Films. IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation,» *1999*, vol. 6, 792-797.
- [31] L. Hardy, I. Stevenson, A. Fritz, G. Boiteux, G. Seytre et A. Schönhals, «Dielectric and Dynamic Mechanical Relaxation Behaviour of Poly(ethylene 2,6 naphthalene dicarboxylate). II: Semicrystalline Oriented Films,» *Polymer* , vol. 44, pp. 4311-4323, 2003.
- [32] D. J. Blundell et K. A. Buckingham, «The b-Loss Process in Liquid Crystal Polyesters Containing 2,6 Naphthyl Groups Polymer,» vol. 26, pp. 1623-1627 , 1985.
- [33] J. Menegotto, P. Demont, A. Bernes et C. Lacabanne, «Combined Dielectric Spectroscopy and Thermally Stimulated Currents Studies of the Secondary Relaxation Process in Amorphous Poly(ethylene terephthalate),» *Journal of Polymer Science-Part-B- Polymer Physics*, vol. 37, n° 124, pp. 3494-3503, 1999.
- [34] S. P. Bravard et R. H. Boyd, «Dielectric Relaxation in Amorphous Poly(ethylene terephthalate) and Poly(ethylene 2,6- naphthalene dicarboxylate) and their Copolymers *Macromolecules*,» vol. 36, pp. 741-748 , 2003.
- [35] A. T. Ezquerro, F. J. Balta-Calleja et H. G. Zachmann, «Dielectric Relaxation of Amorphous Random Copolymers of Poly (ethylene terephthalate) and Poly (ethylene-2,6-naphthalène dicarboxylate),» *Acta Polymer*, vol. 44, pp. 18-24, 1993.
- [36] S. Berdous, N. Saidi-Amroun, M. Saidi et M. Bendaoud, «Correlation Between Morphology and Electrical Response in PEN Polyester Film *International Journal of Polymer,» Anal. Charact* , vol. 15, pp. 1-13 , 2010.
- [37] A. K. Jonscher, «Dielectric Relaxation in Solids, ch.6. Chelsea Dielectric Group Press,» 1983.

## Bibliographie

---

- [38] J. R. Mac Donald, «Electrical Response of Materials Containing Space Charge with Discharge at the Electrodes,» *J. Chem. Phys*, vol. 54, pp. 2026-2050, 1971.
- [39] R. H. Walden, «A Method of the Determination of High-Field Conduction Laws in Insulating Films in the Presence of Charge Trapping,» *J. Appl. Phys*, vol. 43, p. 1178, 1972.
- [40] J. Lindmayer, «Current Transients in Insulators,» *J. Appl. Phys*, vol. 36, p. 196, 1965.
- [41] H. J. H. J. Wintle, «Decay of Excess Charge in Dielectrics Having Shorted Electrodes,» *J. Appl. Phys.*, vol. 42, p. 4724, 1971.
- [42] S. S. Havriliak et S. Negami, «A Complex Plane Representation of Dielectric and Mechanical Relaxation Processes in Some Polymers,» *Polymer. Vol. 8, pp. 161. (1967).*, vol. 8, p. 161, 1967.

**CHAPITRE IV**  
**MODELISATION NUMERIQUE DES COURANTS DE**  
**CHARGE**

---

## 1. Introduction

La modélisation numérique de la réponse électrique des polymères, fut l'objet de plusieurs spéculations en raison des différentes informations que l'on peut tirer à savoir, l'origine du courant, de la charge d'espace formée ainsi que leur évolution au sein du matériau [1, 2, 3, 4, 5, 6, 7] C'est avec cet objectif et dans le but d'une meilleure illustration de l'effet des interfaces sur la génération et le transport des porteurs de charges, on propose dans ce chapitre, un calcul physique permettant de modéliser le courant de charge circulant à travers un polymère solide.

## 2. Modèle physique

Le modèle utilisé suppose l'existence de porteurs de charge positive de mobilité  $\mu$  injectés à partir de l'anode à géométrie plane. Sous l'action d'un champ électrique appliqué constant, un courant de conduction résultant des migrations des porteurs de charge d'une électrode à une autre, donne lieu à un courant de charge total d'expression suivante :

$$J_T(x, t) = J_c(x, t) + \epsilon_r \epsilon_0 \frac{\partial F(x, t)}{\partial t} \quad (\text{IV} - 1)$$

Avec  $\epsilon_r \epsilon_0 \frac{\partial F(x, t)}{\partial t}$  est le terme relatif au courant de déplacement électrique.

$$J_c(x, t) = e\mu n(x, t)F(x, t) - eD \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} \quad (\text{IV} - 2)$$

La mobilité  $\mu$  et le coefficient de diffusion  $D$  sont liés par la relation d'Einstein :

$$D = \frac{\mu KT}{e} \quad (\text{IV} - 3)$$

L'équation de la continuité :

$$\frac{\partial J_c(x, t)}{\partial x} = -e \left| \frac{\partial n(x, t)}{\partial t} \right| \quad (\text{IV} - 4)$$

L'équation de poisson pour la détermination du champ électrique :

$$\frac{\partial}{\partial x} [\epsilon_r \epsilon_0 F(x, t)] = e[n(x, t) - n_0] \quad (IV - 5)$$

La condition de polarisation d'un échantillon d'épaisseur  $d$  est donnée par :

$$\int_0^d F(x, t) dx = F_a d = V_a \quad (IV - 6)$$

L'intégration de l'équation (IV.1), sur toute l'épaisseur  $d$ , donne la densité de courant de conduction totale :

$$J_T(t) = \frac{1}{d} \int_0^d J_c(x, t) dx \quad (IV - 7)$$

### 3. Simulation numérique

La solution des problèmes scientifiques passe par une représentation mathématique des phénomènes mis en jeu, qui sont en général multiples et compliqués. Pour les représenter, on est amené à négliger certains faits et à simplifier certains autres. Même avec ces simplifications, les équations obtenues sont souvent insolubles par les méthodes analytiques connues. Il est alors nécessaire d'avoir recours à des méthodes numériques [8].

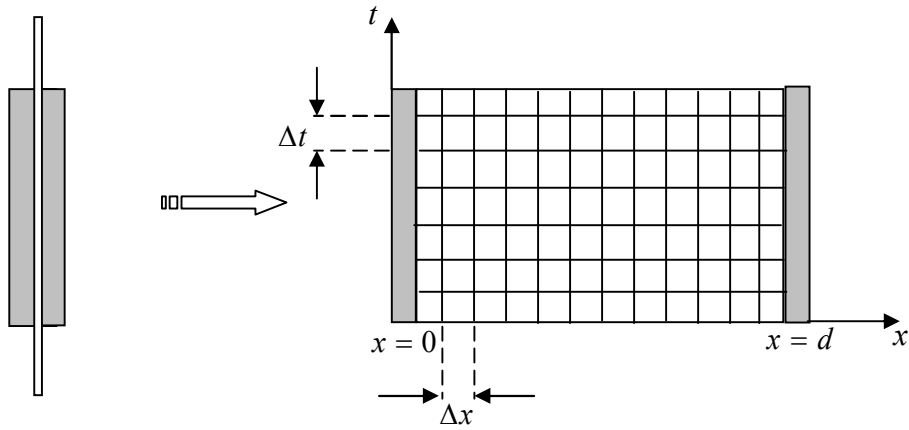
Nous nous intéressons aux méthodes qui permettent la résolution des équations aux dérivées

partielles de premier ordre et à deux variables indépendantes. Pour cela, nous examinerons ce genre

d'équations à l'aide d'un procédé général et classique rencontré dans les problèmes de physique et mathématique, qu'ils soient linéaires ou dépendant du temps.

#### 3.1 Discrétisation du problème

Notre domaine d'étude se compose de deux électrodes: l'anode en  $x = 0$  et la cathode en  $x = d$ , l'échantillon placé entre ces deux électrodes est divisé en  $m$  parties (dans notre cas  $m = 120$ ), dans la direction de l'épaisseur (figure IV.1).



**Figure IV.1** : Echantillonnage du domaine d'étude

### 3-2 Conditions initiales et condition aux limites

La valeur initiale de la concentration des charges libres est telle que

$$n(x, 0) = 0 \quad (\text{IV} - 8)$$

Ce qui signifie que toutes les charges mises en jeu parviennent de l'injection au niveau de l'anode (au niveau de la cathode le contact est supposé ohmique).

Le courant au niveau de l'anode s'écrit, dans le cas d'une injection de type Schottky:

$$J_c(0, t) = A_t \left\{ \exp \left[ \frac{e}{2KT} \sqrt{\frac{eF(0, t)}{\pi \epsilon_r \epsilon_0}} \right] - 1 \right\} \quad (\text{IV} - 9)$$

### 3.3 Méthode de résolution

La programmation numérique fait intervenir les différentes équations de bases citées ci-dessus suivant un algorithme de calcul. Le programme est écrit en langage Matlab sous le logiciel "MATLAB 2009A", dont l'organigramme est donné en Annexe.

Dans le programme, nous commençons par initialiser tous les paramètres du système étudié. En suite on fait appel aux différentes procédures pour effectuer les étapes de résolution numérique.

Pour une première itération  $t = 0$ , et en tenant compte des conditions aux limites données ci-dessus, sur la concentration des porteurs de charge, on peut déduire, la valeur du champ électrique  $F(x, 0)$  à partir des équations (IV – 5) et (IV – 6), et celle de la densité de courant  $J_c(x, 0)$  à partir de l'équation (IV – 2). En utilisant la méthode des trapèzes ou de Simpson pour faire une intégration numérique de l'équation (IV – 7), on aboutit à la valeur de la densité de courant totale à l'instant initial de la polarisation  $t=0$ .

A l'instant  $(t + \Delta t)$ , le calcul de la densité de courant de charge se fait après la détermination des valeurs de la densité de courant de conduction, et du champ électrique. Un développement limité du premier ordre permet d'écrire les équations suivantes :

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

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

Les équations (IV – 4) et (IV – 1) permettent, respectivement, de calculer les dérivées partielles par rapport au temps suivantes :  $\frac{\partial n(x, t)}{\partial t}$ ,  $\frac{\partial F(x, t)}{\partial t}$

Le courant de conduction  $J_c(x, t + \Delta t)$  est alors évalué à partir de l'équation (IV – 2). Ainsi, nous pouvons calculer successivement la densité de charges libres  $\rho_{libre}(x, t)$ , le champ électrique local  $F(x, t)$  et le courant de conduction total  $J_T(t)$ .

## Modélisation numérique des courants de charge

Il est à noter, que pour résoudre le système d'équations (IV.1), (IV.5), (IV.6) et (IV.8), il faut effectuer quelques approximations pour simplifier le problème. Elles consistent à supposer une mobilité  $\mu$  indépendante du champ électrique et à négliger le courant de diffusion [7, 9]. Cette dernière permet en particulier d'abaisser l'ordre des équations aux dérivées partielles qui régissent le système. L'erreur commise en faisant  $D=0$  a été discuté par Lampert et Wright [10] qui ont montré qu'elle devait être négligeable pour des champs moyens ou forts ( $F_a > 10^7 \text{ V/m}$ ).

Les paramètres physiques utilisés dans ces équations, sont classés en trois groupes :

1. Les paramètres liés aux conditions expérimentales : la température,  $T=100 \text{ }^\circ\text{C}$ , l'épaisseur de l'échantillon,  $d = 15\mu\text{m}$  et le champ appliqué  $F_a = 3 \times 10^7 \text{ V/m}$
2. La caractéristique physique du matériau: la constante diélectrique relative  $\epsilon_r = 2.9$ .
3. Les paramètres inconnus qui peuvent être déterminés à partir de la simulation numérique: le coefficient d'injection  $A_i$  et la mobilité  $\mu$ .

### 4. Résultats et discussions

Dans cette étude nous avons tenté de mettre en évidence l'effet des différents paramètres présents dans le modèle, sur le courant de charge, le profil du champ électrique et la distribution de la charge d'espace.

#### 4.1. Effet de la densité de porteurs injectés

L'effet de la densité de porteurs injectés sur le courant de charge est étudié en faisant varier le coefficient d'injection  $A_i$  de  $10^{-6}$  à  $10^0 \text{ A/m}^2$ .

Les valeurs du coefficient d'injection trouvées dans la littérature sont représentées dans le tableau ci-dessous.

**Tableau IV.1:** Valeurs du coefficient d'injection

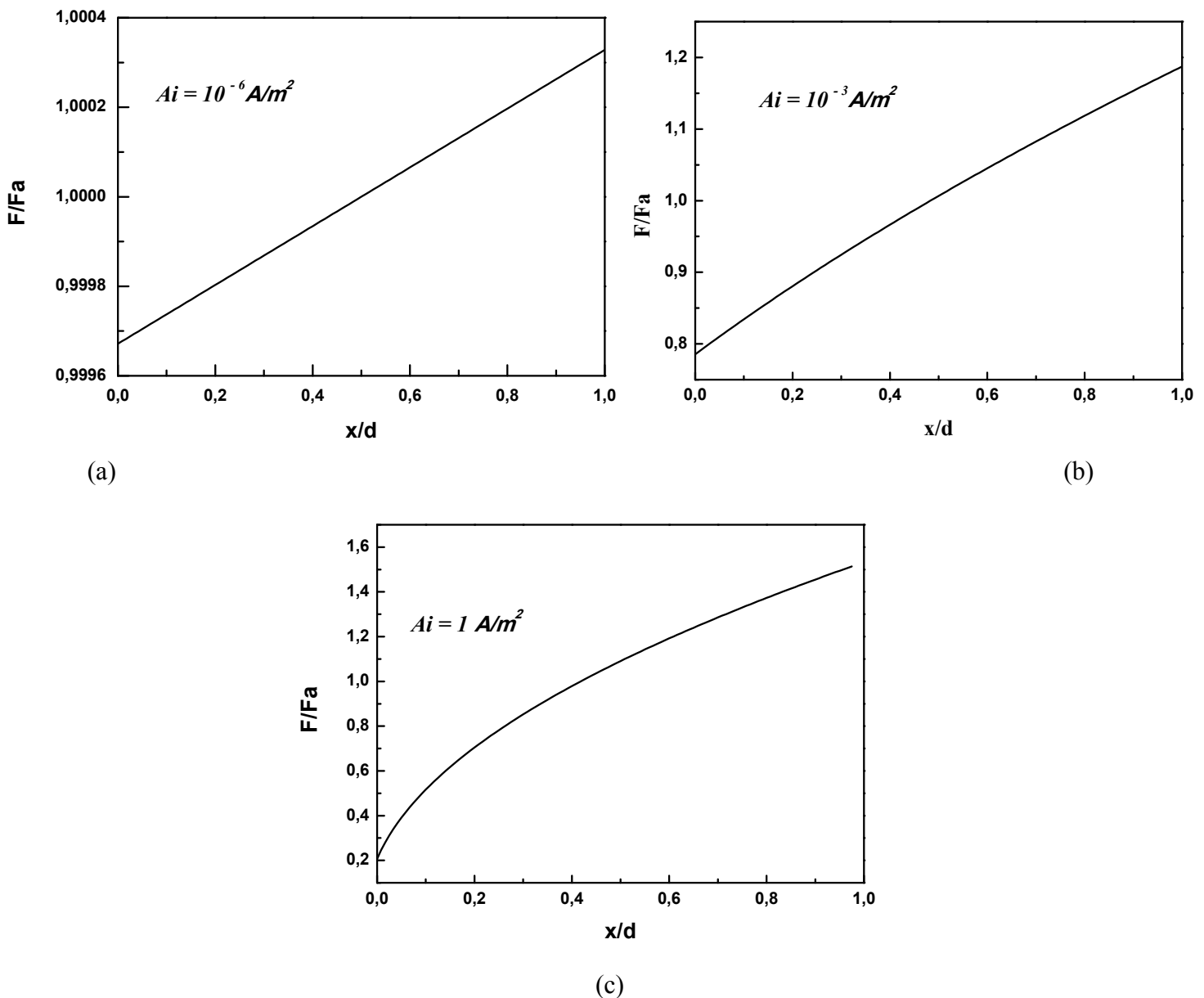
| Matériau | coefficient d'injection $A_i$ ( $\text{A/m}^2$ ) | Littératures      |
|----------|--|-------------------|
| PEBD     | $10^{-3}$ à $10^{-2}$                            | Zebouchi [11]     |
| PVDF     | $10^{-6}$  | Kaneko et al. [2] |

## Modélisation numérique des courants de charge

Les figures IV.2 (a), IV.2(b) et IV.2(c) représentent les profils du champ électrique déterminés pour des valeurs du coefficient d'injection égales, respectivement, à  $10^{-6}$ ,  $10^{-3}$  et  $10^0$  A/m<sup>2</sup>.

La mobilité des porteurs  $\mu$  et le temps d'observation sont égaux à  $10^{-10}$  m<sup>2</sup>/Vs et  $2t_0$ , respectivement, où  $t_0$  est le temps de transit des porteurs de charge, d'origine thermique.

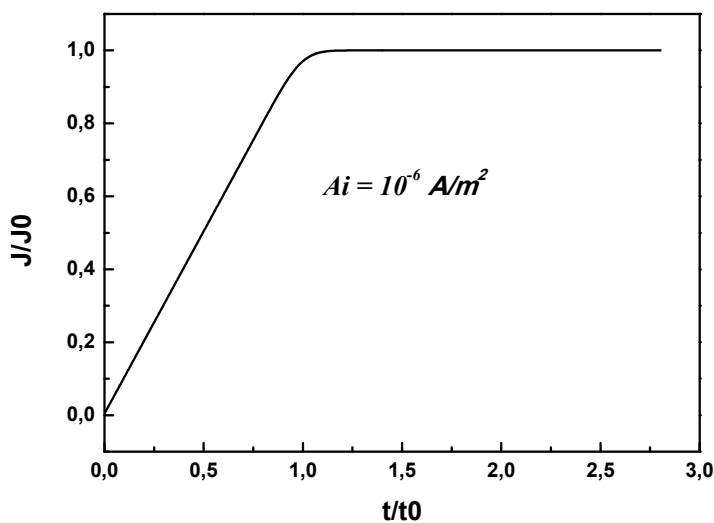
A partir de ces courbes, on remarque lorsque le coefficient d'injection  $A_i$  augmente, le champ électrique à travers le matériau n'est plus uniforme. Il diminue et tend vers zéro au niveau de l'anode, du fait que  $A_i$  croît, la charge d'espace au voisinage de l'interface est importante.



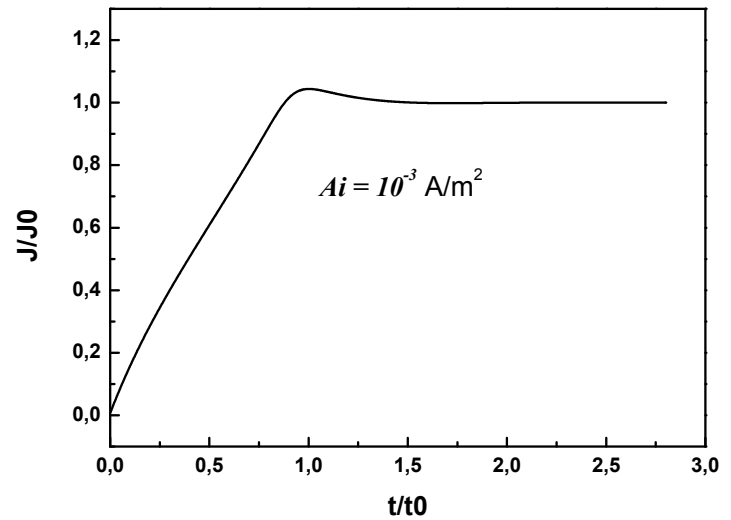
**Figure IV. 2:** Profil du champ électrique pour la valeur du coefficient d'extraction: (a)  $A_i = 10^{-6}$  A/m<sup>2</sup>, (b)  $A_i = 10^{-3}$  A/m<sup>2</sup> et (c)  $A_i = 10^0$  A/m<sup>2</sup>

## Modélisation numérique des courants de charge

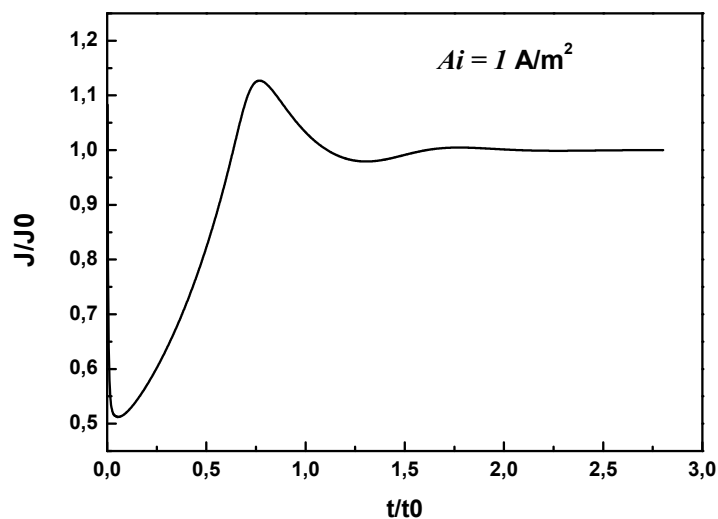
Les variations de la densité de courant total  $J_T$  au cours du temps pour, respectivement,  $A_i=10^{-6} \text{ A/m}^2$ ,  $A_i=10^{-3} \text{ A/m}^2$  et,  $A_i=1 \text{ A/m}^2$  sont représentées sur les figures IV.3 (a), IV.3 (b) et IV.3 (c). A partir de ces trois figures, on remarque que  $A_i=10^{-6} \text{ A/m}^2$ , l'intensité du courant est faible mais lorsque  $A_i=10^{-3} \text{ A/m}^2$  ou  $A_i=10^0 \text{ A/m}^2$ , le courant augmente en amplitude.



(a)



(b)



(c)

**Figure IV.3** : Evolution de la densité de courant pour la valeur du coefficient d'extraction: (a)  $A_i = 10^{-6} \text{ A/m}^2$ , (b)  $A_i = 10^{-3} \text{ A/m}^2$

## Modélisation numérique des courants de charge

---

De plus, l'étude du régime transitoire du courant de conduction dans un polymère limité par la charge d'espace des porteurs injectés, est très intéressante. Elle met en évidence, les faits suivants [12]:

- Existence d'un courant instantané initial d'une valeur légèrement inférieure à la moitié de celle du courant de régime permanent.
- Augmentation progressive du courant jusqu'à une valeur maximale correspondant à une valeur 20% supérieure à celle du courant permanent et observée après un intervalle de temps voisin de 80% du temps de transit des porteurs de charges libres, d'origine thermique.
- Décroissance du courant transitoire jusqu'à la valeur du régime permanent

Il est possible de rendre compte physiquement de l'allure du courant de charge transitoire, en analysant le déplacement du front de la charge d'espace des porteurs injectés dans le matériau. En effet, pour la figure IV.3 (c) et aux premiers instants d'injection, une large fraction du volume du matériau est le siège du champ moyen appliqué et une faible charge d'espace avance dans le matériau. Avec le développement et la progression de la charge d'espace injectée dans l'isolant, le champ électrique à hauteur du front de la charge devient supérieur au champ moyen, provoquant ainsi une augmentation sensible du courant et un temps de déplacement des porteurs  $t_1 = 0.786 t_0$  qui est le temps de transit des porteurs libres injectés. Décroissance du courant transitoire jusqu'à la valeur du régime permanent.

Les figures IV.4 et IV.5 représentent, respectivement, l'évolution de la distribution de la charge d'espace et le profil du champ, au sein du matériau, au cours du temps dans le cas où

$$A_i = 10^{-3} \text{ A/m}^2.$$

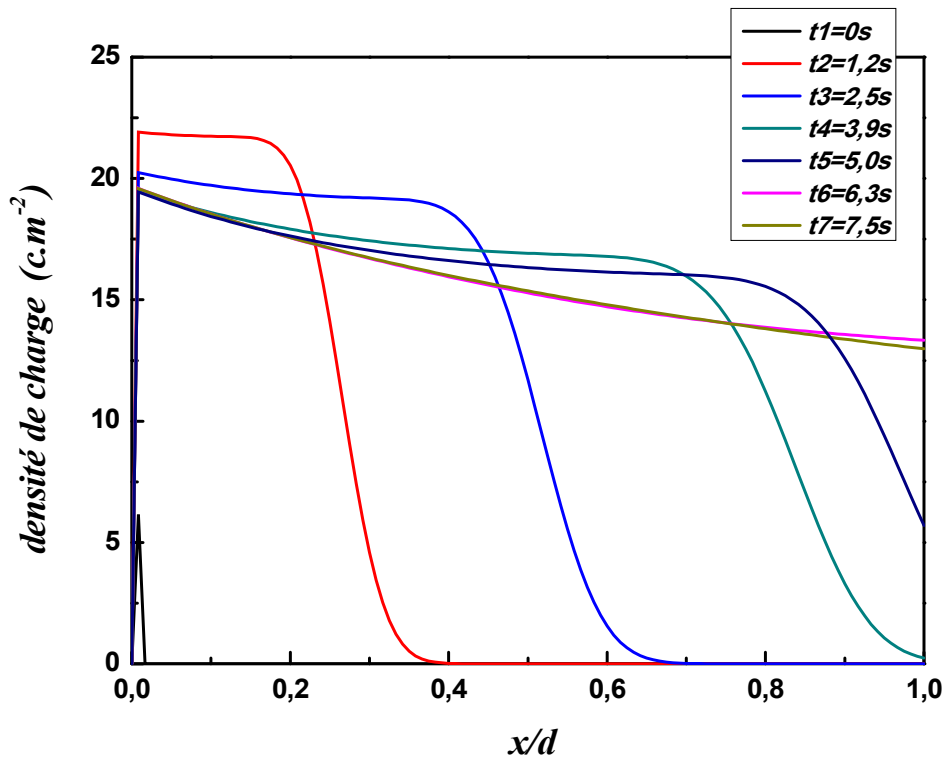


Figure IV.4: Répartition de la charge d'espace au cours du temps

On constate qu'aux premiers instants de polarisation, les charges injectées se trouvent au voisinage de l'électrode émettrice, au fur et à mesure que le temps augmente, la charge d'espace se développe progressivement dans le matériau jusqu'à atteindre l'électrode opposée, à ce moment elle devient uniforme.

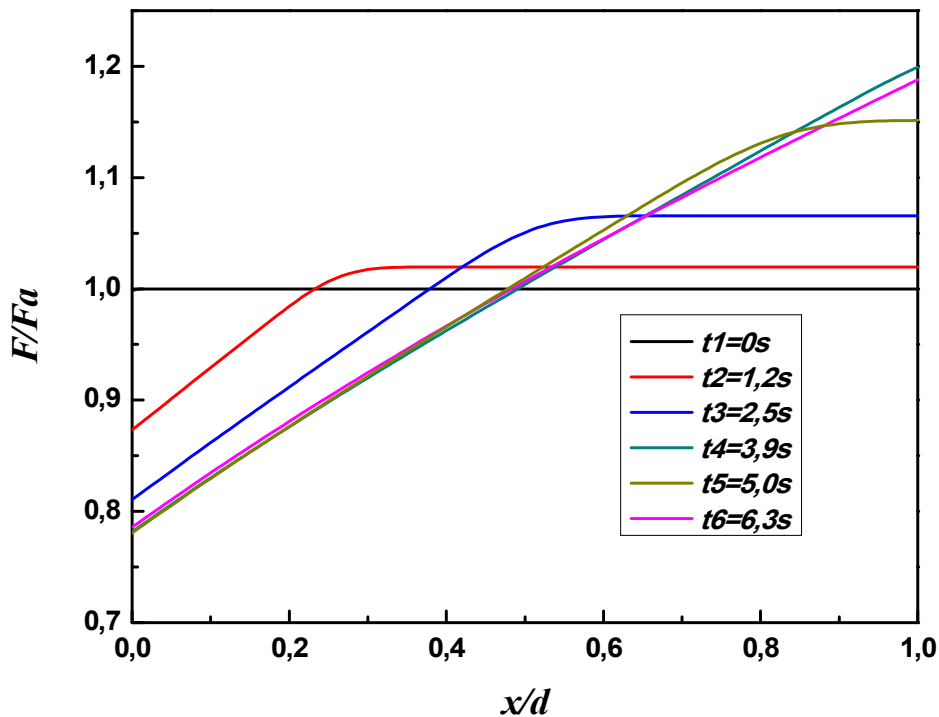


Figure IV.5 : Profil du champ électrique au cours du temps

On remarque que le champ électrique dans le matériau n'est plus uniforme. Compte tenu du fait, que la tension est maintenue constante, on peut s'attendre à une augmentation du champ au niveau de l'électrode opposée.

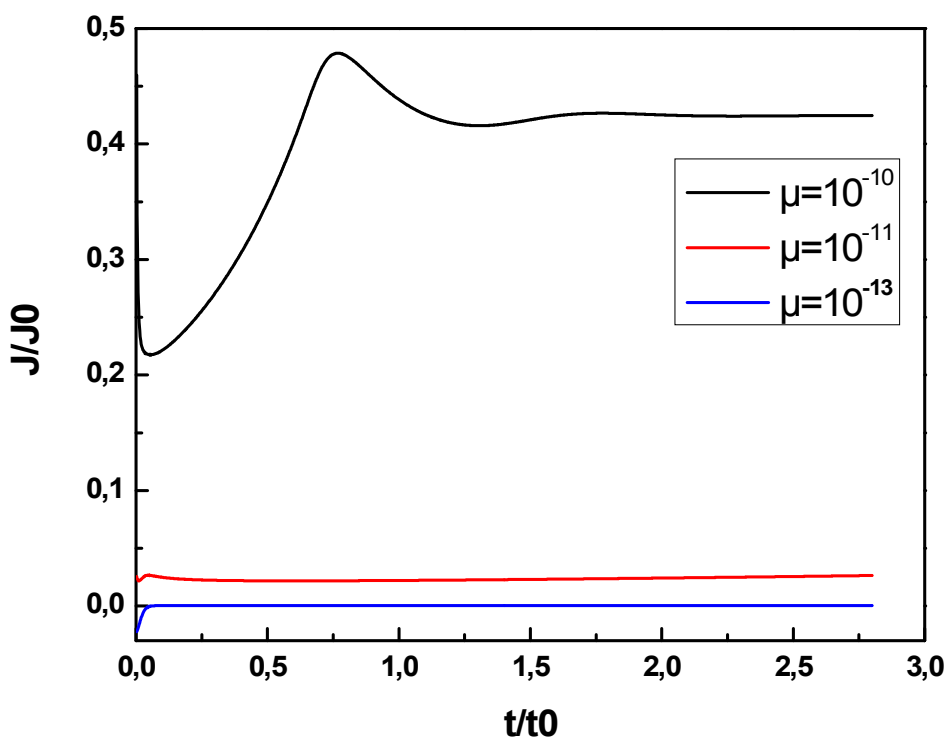
## 4.2 Effet de la mobilité

Nous avons choisi des valeurs de mobilité comprises entre  $10^{-10}$  m<sup>2</sup>/Vs et  $10^{-13}$  m<sup>2</sup>/Vs, en se plaçant dans le cas où  $A_1=1$  A/m<sup>2</sup>. La figure IV.6 montrent l'évolution de la densité de courant au cours du temps.

Les valeurs de la mobilité choisies sont comparables à celles trouvées dans la littérature, comme l'indique le tableau IV.2

**Tableau IV.2:** Valeurs théoriques des mobilités dans les polymères

| Matériau | Mobilité (m <sup>2</sup> .V <sup>-1</sup> .s <sup>-1</sup> ) | Référence |
|----------|--|-----------|
| PVDF     | de $10^{-16}$ à $10^{-12}$                                   | [2, 3]    |
| PEBD     | de $10^{-15}$ à $10^{-14}$                                   | [4]       |



**Figure IV.6 :** Effet de la mobilité sur la densité de courant

A partir de ces courbes on peut déduire les résultats suivants :

- L'observation d'un pic en courant, permet de déterminer le temps de transit des porteurs de charge  $t_1$ , et par suite d'en déduire la mobilité en utilisant l'équation  $t_1 = 0.786 t_0$  où  $t_0 = \frac{d}{F_a \mu}$
- L'absence du pic nous laisse conclure que la valeur de la mobilité des porteurs est soit importante ou faible c'est-à-dire que le temps de déplacement des porteurs injectés est négligeable ou supérieur devant la durée d'observation.

Il n'était question jusqu'ici que d'un contact ohmique au niveau de la cathode, mais il est possible que cette dernière ne permette aucun passage de porteurs. Dans ce cas, on définit un coefficient appelé coefficient d'extraction  $C$  caractérisant la nature du contact.

Dans ces conditions l'équation (IV-2) devient égale à

$$J_c(x, t) = e \mu n(x, t) C F(x, t) - e D \frac{\partial n(x, t)}{\partial x} \quad \text{avec } 0 \leq C \leq 1 \quad (\text{IV} - 12)$$

### 4.3 Effet du coefficient d'extraction

Dans le cas où  $C = 0$  (contact bloquant), les figures IV.7 et IV.8 donnant, respectivement, les variations de la distribution de la densité de charge et du profil du champ, dans le cas où

$A_i = 10^{-3} \text{ A/m}^2$  et  $\mu = 10^{-10} \text{ m}^2 \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ , montrent une accumulation des charges libres au niveau de la cathode qui est traduite par la présence d'une forte densité de charge au niveau de cette électrode. Cette augmentation de la charge induit une croissance du champ électrique local au voisinage de la cathode.

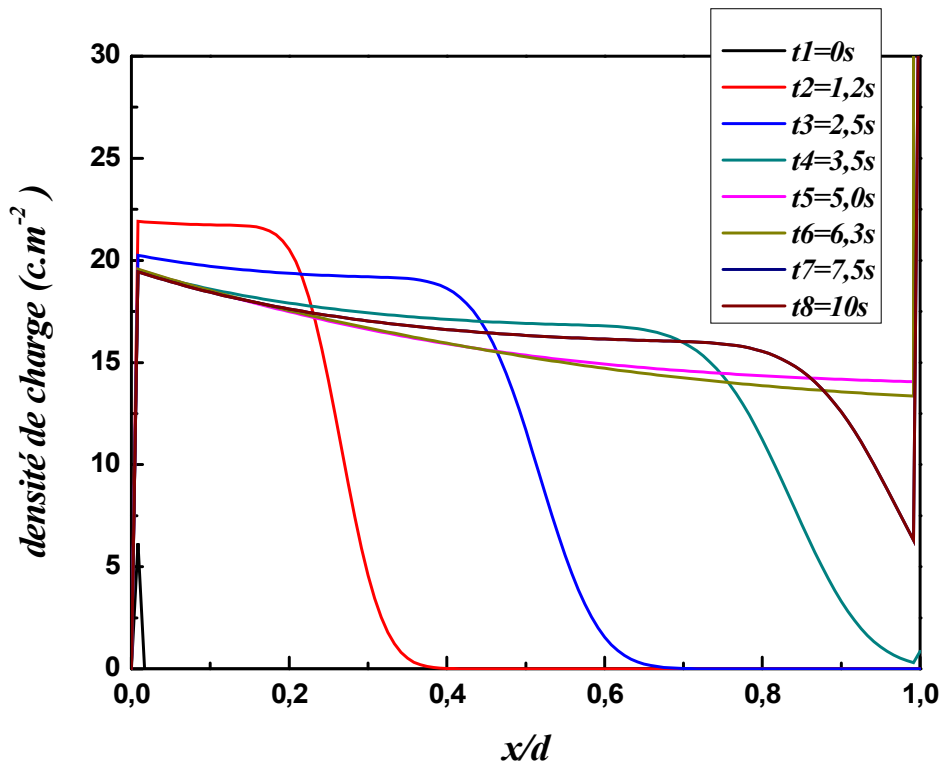


Figure IV.7: Répartition de la charge d'espace au cours du temps

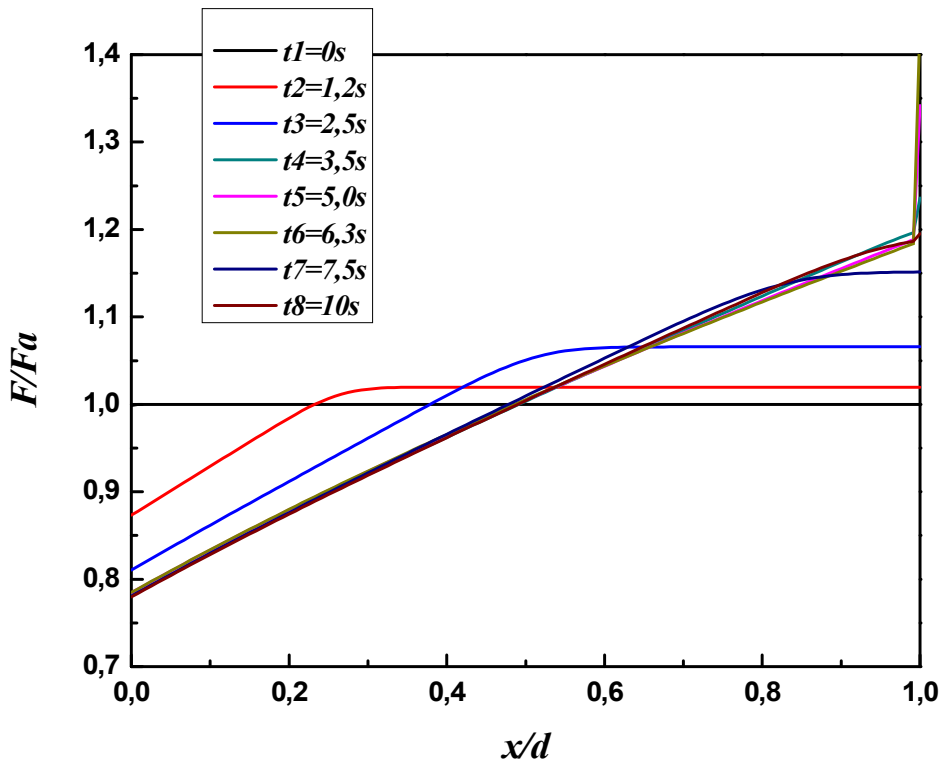
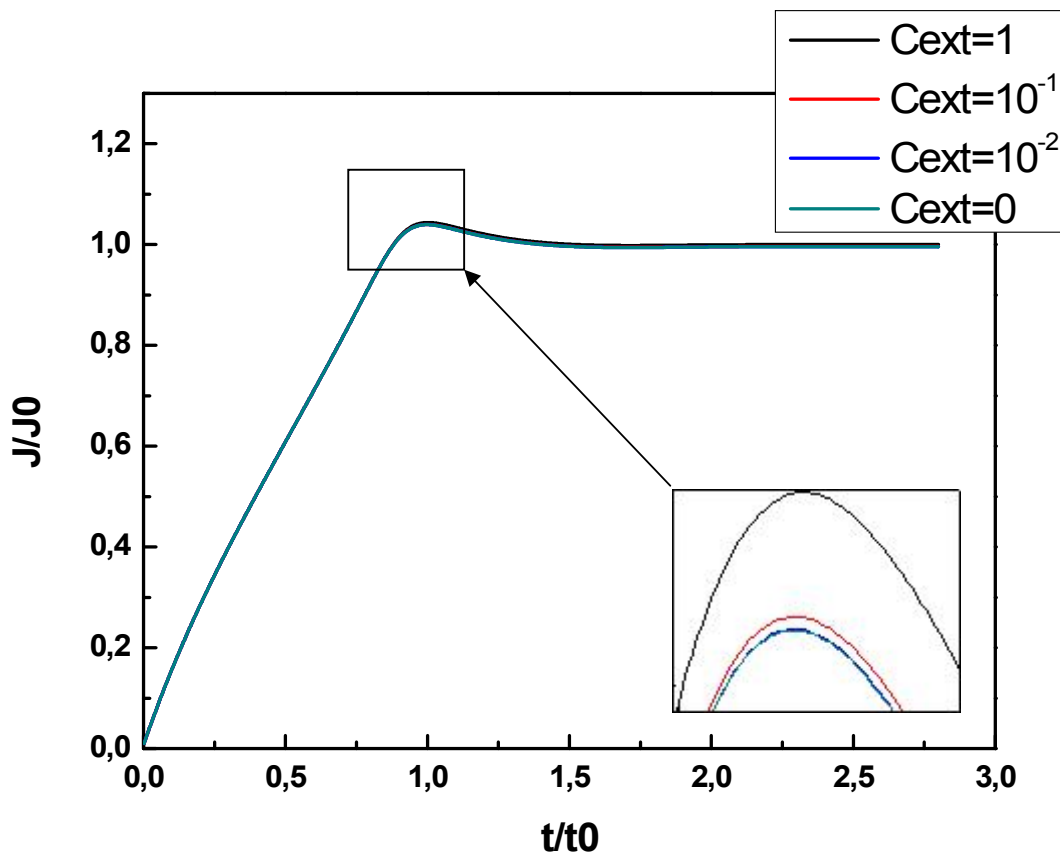


Figure IV.8 : Profil du champ électrique au cours du temps

La figure IV.9 donne la variation du courant de charge au cours du temps à des valeurs de  $C$  allant de 0 à 1.

On remarque à partir de cette figure que le courant garde la même allure tout au long de la charge. Aux premiers instants de polarisation, l'intensité du courant est la même quelque soit la valeur du coefficient d'extraction. A partir du moment où les charges atteignent la cathode l'amplitude du courant diminue ceci est dû à l'accumulation des charges à cette position.



**Figure IV.9 :** Evolution de la densité de courant au cours du temps et à différentes valeurs de  $C$

### 5. Conclusion

Les conclusions relatives à ce chapitre peuvent être résumées comme suit:

- Le courant de conduction dépend de l'état des interfaces Métal/Diélectrique. Cet effet est étudié en faisant varier les coefficients d'injection et d'extraction.
- La variation du coefficient d'injection engendre une augmentation de l'intensité de courant sur toute la gamme de temps explorée.
- Un contact bloquant provoque l'accumulation des charges libres au niveau de l'électrode et par conséquent une forte augmentation du champ local correspondant.
- Les profils des caractéristiques  $J(t)$  dépendent aussi de la mobilité des porteurs de charge.

### 6. Bibliographie

- [1] Y. Suzuoki, K. Kaneko, Y. Yokota, T. Mizutani et M. Ieda, « Dipolar Effect in Thermal-Pulse-Current Responses of Polar Polymers,» *Jpn. J. Appl. Phys*, vol. 30, n° 13, pp. 517-552 , 1991.
- [2] K. Kaneko, Y. Suzuoki, T. Mizutani et M. Ieda, « Effect of dipoles on Electrical Conduction in Polymers,» *I. Numerical Calculation. Jpn. J. Appl. Phys*, vol. 29, n° 18, pp. 1506-1510 , 1990.
- [3] K. Kaneko, T. Mizutani et Y. Suzuoki, «,» *Computer Simulation on Formation of Space Charge Packets in XLPE Films. IEEE Trans. Diel. Elec. Ins*, vol. 6, pp. 152-158, 1999.
- [4] I. Kitani, Y. Tsuji et K. Aarii, «Analysis of Anomalous Discharge Current in Low-Density Polyethylene,» *Jpn. J. Appl. Phys*, vol. 23, n° 17, pp. 855-860 , 1984.
- [5] H. J. Wintle, «The Discharge of Charged Dipolar Insulating Materials. J. Appl. Phys,» vol. 63, n° 15, pp. 1705- 1713 , 1987.
- [6] H. J. Wintle, « Transient Charging Currents in Insulators. Soli-State Electronics,» vol. 18, pp. 1039-1042, 1975.
- [7] K. Kaneko, Y. Suzuoki, Y. Yokota, T. Mizutani et M. Ieda, « Effect of Dipoles on Electrical Conduction in Polymers,» *II. Low-Field Conduction in Polyvinylidene Fluoride. Jpn. J. Appl. Phys* , vol. 31, n° 11, pp. 3615-3618, 1992.
- [8] J. P. Nougier, «Méthodes de calcul numérique,» 3 édition, 1991.
- [9] A. Many et G. Rakavy, « Theory of Transients Currents in Solids. Phys. Rev,» vol. 129, p. 1980, 1962.
- [10] Y. Segui, «contribution à l'étude des mécanismes de conduction dans les films minces de polymère,» *Application à la Passivation des Composants à Semi- conducteur. Thèse de Doctorat d'état. Université Paul Sabatier. Toulouse. France* , 1974.

## Bibliographie

---

- [11] N. Zebouchi, «Etudes expérimentales et théoriques du claquage diélectrique et de la dynamique des charges d'espace dans les isolants pour câbles,» *Thèse de Doctarat d'état. USTHB*, 1999.
- [12] R. Goffaux, « Introduction Physique aux Mécanismes de Conduction dans les Matériaux Isolants Solides (Mobilité Electronique),» *Laboratoire de Recherche Ateliers de Construction Electriques de Charleroi, Charleroi. Belgique* , 1965.

### CONCLUSION GENERALE

A travers l'étude des courants transitoires, dans le polyéthylène naphthalate, entreprise nous avons tenté de comprendre, en premier lieu, les phénomènes qui interviennent dans un isolant lorsqu'il est soumis à une contraintes électrique. En particulier, nous nous sommes intéressés à l'étude de deux films PEN à épaisseurs différentes. Ceci, en exploitant la réponse temporelle par l'étude des caractéristiques  $I(t)$ ,  $I(V)$  et en déterminant la réponse fréquentielle par l'étude des profils des pertes diélectriques  $\varepsilon''(f)$ .

L'étude du régime transitoire a montré que le recouvrement entre les courants de charge et de décharge observé montre que ces derniers sont, en grande partie, dus à un processus dipolaire. De plus, l'écart en courant enregistré entre les deux échantillons de l'étude a été expliqué à partir de la caractérisation du PEN par analyse enthalpique différentielle (DSC) et par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF).

L'étude de la réponse fréquentielle du PEN, a montré que le facteur de pertes se déplace vers les basses fréquences lorsque le champ appliqué augmente est il plus important dans le PEN 50 comparé au PEN 25. L'ajustement des courbes expérimentales avec la formule de Jonscher, donnant la composante dissipative  $\varepsilon_r''$  à un facteur près, a montré un très bon accord et a indiqué la présence de plusieurs phénomènes de relaxation dont le temps de relaxation central est  $\tau_0$ .

La modélisation du courant de conduction a permis de déduire l'effet des contacts sur le mouvement des charges libres dans le matériau et d'en tirer par conséquent les répartitions de cette dernière et du champ électrique.

ANNEXE

