



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

UNIVERSITÉ FRÈRES MENTOURI, CONSTANTINE 1
FACULTÉ DES SCIENCES DE LA TECHNOLOGIE
Département d'Électronique



N° d'ordre : 06/D3C/2022
Série : 01/Elec/2022

THÈSE

Présentée pour obtenir le diplôme de Doctorat 3^{ème} Cycle
en **Génie Biomédical**

Option : **Procédés et dispositifs pour le biomédical**

Par :

Nesrine AMIOUR

THÈME :

**Contribution à l'étude de l'influence d'une décharge
couronne sur les propriétés de films minces de
polyimide en vue de leur utilisation dans le
biomédical**

Soutenue le : **16/02/2022**

Devant le jury :

Président : Fouad KERROUR

Prof. Univ. Frères Mentouri Constantine 1

Rapporteur : Zehira ZIARI

Prof. Univ. Frères Mentouri Constantine 1

Examineurs :

Farida HOBAR

Prof. Univ. Larbi Ben M'hidi Oum El Bouaghi

Douniazad MEZDOUR

Prof. Univ. Med Seddik Benyahia Jijel

Azzedine BELLEL

Prof. Univ. Frères Mentouri Constantine 1

Invité : Salah SAHLI

Prof. Univ. Frères Mentouri Constantine 1

﴿ وَقُلِ اعْمَلُوا فَسَيَرَى اللَّهُ عَمَلَكُمْ وَرَسُولُهُ وَالْمُؤْمِنُونَ وَسَتُرَدُّونَ إِلَىٰ عَالَمِ الْغَيْبِ وَالشَّهَادَةِ فَيُنَبِّئُكُمْ
بِمَا كُنْتُمْ تَعْمَلُونَ ﴾

(سورة التوبة, آية رقم 105)

Dédicace

Je dédie ce travail

A ma mère, pour son amour, ses encouragements et ses sacrifices

*A mon père, pour son soutien et son affection et pour la confiance
qu'il m'a accordé*

A mon cher époux et ma belle famille

A ma petite sœur et mes frères

A tous les membres de la famille

A tous mes amis

A vous cher lecteur

Remerciements

Mes remerciements, avant tout, à ALLAH le tout puissant pour la volonté, la santé et la patience qu'il m'a données durant toutes ces longues années d'étude afin que je puisse arriver à ce stade.

Ce travail de recherche a été réalisé au sein du Laboratoire Microsystèmes et Instrumentation (LMI) de l'Université Frères Mentouri Constantine 1.

J'exprime ma plus grande reconnaissance à ma directrice de thèse Zehira ZIARI, Professeur au Département d'Electronique de l'Université Frères Mentouri Constantine 1, pour m'avoir donné la chance de réaliser ce travail. Je tiens à lui exprimer aussi toute ma gratitude pour avoir encadré ce travail pendant ces années et pour m'avoir fait profiter de son expérience scientifique. Sa grande culture scientifique, son expertise et ses conseils avisés me furent bien utiles pour mener à bien ce travail. Je la remercie pour sa patience, sa pédagogie, sa disponibilité et son aide de tous les instants qui m'a vraiment permis d'avancer au cours de mon travail et de ne jamais rester bloqué.

J'exprime ma profonde gratitude à Mr S. SAHLI, Professeur au Département d'Electronique de l'Université Frères Mentouri Constantine 1, pour m'avoir accueilli au sein de son laboratoire. Je le remercie également pour le matériel mis à ma disposition.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers Mr F. KERROUR, Professeur au Département d'Électronique de l'Université Frères Mentouri Constantine 1 pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant la présidence du jury de soutenance de ma thèse.

Que Mme F. HOBAR, Professeur à l'Université Larbi Ben M'hidi Oum El Bouaghi et Mme D. MEZDOUR, Professeur à l'Université Med Seddik Benyahia Jijel, trouvent ici l'expression de mes plus vifs remerciements pour avoir accepté de participer au jury de soutenance et pour l'intérêt qu'elles ont bien voulu porter à ce travail.

Je tiens également à remercier Mr A. BELLEL, Professeur au Département d'Électronique de l'Université Frères Mentouri Constantine 1, pour avoir accepté de participer au jury de soutenance. Je le remercie pour son aide précieuse.

Mes vifs remerciements à Mr S. MOUISSAT, Maître Assistant Classe A au Département d'Électronique de l'Université Frères Mentouri Constantine 1, qui n'a pas manqué de m'apporter son aide tant appréciable et bénéfique.

Je ne pourrais terminer sans avoir à remercier mes collègues du Laboratoire LMJ, qui m'ont beaucoup facilité le travail et qui m'ont merveilleusement accueillie parmi eux.

Table des Matières

Introduction générale	1
Chapitre I : Généralités sur les biomatériaux et les polyimides	
I.1. Introduction	8
I.2. Généralité sur les biomatériaux	8
I.2.1. Les biomatériaux	8
I.2.2. La biocompatibilité	9
I.2.3. Domaines d'applications des biomatériaux	11
I.2.4. Catégories des biomatériaux	12
I.2.4.1. Biomatériaux métalliques	13
I.2.4.2. Biomatériaux céramiques	13
I.2.4.3. Biomatériaux composites	15
I.2.4.4. Biomatériaux polymériques	15
I.3. Généralité sur les polyimides (PI)	17
I.3.1. Polyimide aromatique (Kapton®)	18
I.3.2. Caractéristiques et applications biomédicales du polyimide	18
I.3.3. Comportement du polyimide vis-à-vis de l'eau	21
I.3.3.1. L'humidité relative	22
I.3.3.2. Nature dipolaire de l'eau	23
I.3.3.3. Vieillissement hydrolytique du polyimide	24
I.3.3.4. Influence de l'humidité sur les propriétés électriques du polyimide	25
I.4. Conclusion	26
Références du chapitre I	27
Chapitre II : Généralités sur la décharge couronne à pression atmosphérique	
II.1. Introduction	30
II.2. Charge d'espace dans les matériaux diélectriques	30
II.3. Chargement électrostatique par décharge couronne	31
II.3.1. Différents types de la décharge couronne	33

II.3.1.1. Décharge couronne positive	34
II.3.1.2. Décharge couronne négative	34
II.3.2. Caractéristique courant-tension de la décharge couronne	35
II.3.3. Mécanisme de formation d'une décharge couronne	36
II.3.3.1. Processus de production des espèces chargées	37
II.3.2.2. Mécanisme de streamer	39
II.3.2.3. Passage à l'arc électrique	42
II.3.2.4. Seuil de déclenchement d'une couronne dans l'air	43
II.4. Processus physiques responsables du déclin de potentiel de surface	43
II.4.1. Polarisation de l'échantillon	44
II.4.2. Conduction de surface	44
II.4.3. Neutralisation par le gaz	45
II.4.4. Phénomène piézoélectrique	45
II.4.5. Injection de charges	45
II.5. Théorie des bandes d'énergie des polymères et nature des pièges	46
II.6. Conclusion	48
Références du chapitre II	49
Chapitre III : Influence de l'humidité relative sur les propriétés électriques des films de polyimide	
III.1. Introduction	52
III.2. Mise en œuvre expérimentale	52
III.2.1. Dispositif de chargement par décharge couronne	54
III.2.2. Dispositif de mesure du potentiel de surface	56
III.2.3. Chambre climatique	58
III.2.4. Système de régulation du taux d'humidité relative	59
III.3. Caractérisation électrique du système de la décharge couronne en géométrie pointe-grille-surface	60
III.4. Mesure du déclin de potentiel de surface	63
III.4.1. Influence du niveau de chargement	64
III.4.2. Influence de l'humidité relative sur le déclin de potentiel de surface	65

III.5. Mesure du courant de charge	68
III.6. Caractéristique de la distribution d'énergie des pièges	70
III.6.1. Analyse du déclin de potentiel de surface pour différents niveaux de chargement initial	71
III.6.2. Analyse du déclin de potentiel de surface pour différents niveaux d'humidité relative	77
III.7. Dépendance en champ de la conductivité intrinsèque	81
III.8. Conclusion	84
Références du chapitre III	85
Chapitre IV : Etude et simulation d'une décharge couronne en configuration pointe-plan	
IV.1. Introduction	89
IV.2. Description du modèle de la décharge couronne	90
IV.2.1. Les équations du modèle (approximation dérive-diffusion)	90
IV.2.2. Description du dispositif de décharge couronne pointe-plan	94
IV.2.3. Maillage du domaine de calcul	96
IV.2.4. Les conditions aux limites	97
IV.2.5. Coefficients de transport et de réaction	99
IV.3. Résultats de la simulation	100
IV.3.1. Distribution du potentiel électrique et du champ électrique	101
IV.3.2. Densités des espèces chargées	106
IV.4. Conclusion	110
Références du chapitre IV	111
Conclusion générale	113
Liste des publications et communications de l'auteur	115

Listes des figures

Chapitre I :

Figure I.1 : Biomatériaux dans un corps humain.	10
Figure I.2 : Présentation schématique de l'ensemble des facteurs jouant sur la biocompatibilité.	11
Figure I.3 : Produit en Titane.	13
Figure I.4 : Tête en alumine Al_2O_3 d'une prothèse orthopédique et une prothèse dentaire en zircone ZrO_2 .	14
Figure I.5 : Utilisation des polymères pour la fabrication des prothèses du genou et des cathéters.	17
Figure I.6 : Structure chimique d'une unité répétitive du polyimide.	17
Figure I.7 : Formule chimique du Kapton®.	19
Figure I.8 : Schéma de principe d'une prothèse avec jauge de contrainte en polyimide (a), composants de prothèses instrumentées (b), prothèse instrumentée résultante (c).	20
Figure I.9 : Utilisation du PI comme un substrat pour l'encapsulation d'un micro-pacemaker.	20
Figure I.10 : Réseau d'électrodes haute densité pour la cartographie de l'activité neuronale : réseau d'électrodes flexibles isolé et encapsulé par des couches de polyimide placées sur le cortex visuel du chat.	21
Figure I.11 : Diagramme de phase de l'eau, montrant l'état de l'eau pure en fonction de la température et de la pression.	23
Figure I.12 : Nature dipolaire de l'eau.	24
Figure I.13 : Schématisation du gonflement hydrique d'un polymère en présence d'eau.	24
Figure I.14 : Sites préférentiels des molécules d'eau dans un polyimide.	26

Chapitre II :

Figure II.1 : Configuration d'électrodes pour la génération de la décharge couronne.	32
Figure II.2 : Zone d'ionisation et de dérive dans la décharge couronne configuration pointe-plan.	33
Figure II.3 : Dispositif à triode (configuration pointe-grille-surface) de chargement par effet couronne.	33
Figure II.4 : Décharge couronne positive pour une configuration pointe-plan.	34
Figure II.5 : Décharge couronne négative pour une configuration pointe-plan.	35
Figure II.6 : Caractéristique courant-tension d'une décharge couronne dans l'air à pression atmosphérique.	36
Figure II.7 : Schématisation des étapes de formation et propagation de streamer.	41
Figure II.8 : Mécanisme de propagation du streamer par photo-ionisation.	42

Figure II.9 : Différents processus pouvant contribuer au déclin du potentiel de surface.	44
Figure II.10 : Diagramme de bande d'énergie pour un isolant cristallin parfait.	46
Figure II.11 : Diagramme de bande d'énergie pour un polymère.	48
Chapitre III :	
Figure III.1 : Dispositif de chargement par décharge couronne et de mesure du potentiel de surface.	53
Figure III.2 : Dispositif de chargement par décharge couronne.	55
Figure III.3 : Dispositif de mesure du potentiel de surface.	57
Figure III.4 : Courbe du déclin de potentiel de surface visualisée sur le panneau frontal de l'instrument virtuel.	57
Figure III.5 : Principe de mesure sans contact de potentiel de surface.	58
Figure III.6 : Représentation de la chambre climatique.	59
Figure III.7 : Système de régulation de l'humidité relative.	60
Figure III.8 : Thermo hygromètre testo 635.	60
Figure III.9 : Caractéristique courant-tension pour trois différentes valeurs de la tension de grille V_g (RH = 35 %).	61
Figure III.10 : Caractéristique courant-tension pour deux différentes valeurs du taux d'humidité RH ($V_g = 2000$ V).	62
Figure III.11 : Variation du déclin de potentiel de surface sur un film de PI, $V_g = 2000$ V.	63
Figure III.12 : Déclin de potentiel de surface enregistré sur des films de PI pour différents niveaux de chargement V_o (T = 22 °C, RH = 35 %).	64
Figure III.13 : Déclin de potentiel de surface enregistré sur des films de PI pour différents niveaux de chargement V_o (T = 22 °C, RH = 70 %).	65
Figure III.14 : Taux du déclin de potentiel de surface en fonction du potentiel initial V_o pour deux différentes valeurs du taux d'humidité relative.	66
Figure III.15 : Courbes de déclin de potentiel de surface obtenues à différents niveaux d'humidité relative ($V_g = 2000$ V).	67
Figure III.16 : Taux du déclin de potentiel de surface en fonction de l'humidité relative RH ($V_g = 2000$ V).	67
Figure III.17 : Evolution du courant de charge en fonction du temps de chargement pour trois différents niveaux de chargement de films de PI (RH = 35 %).	68
Figure III.18 : Variation temporelle du courant de charge en fonction du temps de chargement pour deux différentes valeurs du taux d'humidité relative ($V_g = 2000$ V).	69
Figure III.19 : Déclin typique du potentiel de surface pour $V_o \approx 1892$ V.	72
Figure III.20 : Résultats de simulation du déclin de potentiel de film de PI pour différentes valeurs du potentiel initial.	73

Figure III.21 : Distribution de la densité des charges piégées déduite du déclin de potentiel de surface dans des films de PI pour trois différentes valeurs du niveau de chargement.	74
Figure III.22 : Distribution d'énergie des charges piégées des films de PI déduite de la mesure du déclin de potentiel de surface.	75
Figure III.23 : Distribution des charges piégées peu profonds (a) et profonds (b) des films de PI pour différentes valeurs du niveau de chargement initial.	76
Figure III.24 : Résultats de simulation des courbes du déclin de potentiel de surface de films de PI obtenus à différentes valeurs du taux d'humidité relative RH ($V_g = 2000$ V).	77
Figure III.25 : Distribution de la densité des charges piégées déduite du déclin de potentiel de surface dans des films de PI pour différentes valeurs du taux d'humidité relative RH (%).	78
Figure III.26 : Distribution de la densité des charges piégées dans des pièges peu profonds et profonds des films de PI pour différentes valeurs du taux d'humidité relative.	80
Figure III.27 : Dépendance en champ de la conductivité volumique de films de PI pour différentes valeurs du niveau de chargement (RH = 35 %).	82
Figure III.28 : Dépendance en champ électrique de la conductivité volumique de film de PI pour différentes valeurs du taux d'humidité relative ($V_g = 2000$ V).	83
Chapitre IV :	
Figure IV.1 : Configuration de décharge couronne pointe-plan.	95
Figure IV.2 : Présentation de la géométrie pointe-plan du modèle.	96
Figure IV.3 : Représentation schématique du maillage de la géométrie étudiée.	97
Figure IV.4 : Distribution spatiale de la densité initiale des électrons n_e et des ions positifs n_p .	98
Figure IV.5 : Coefficients d'ionisation (α/N) et d'attachement (η/N) déterminés par le code de Bolsig.	99
Figure IV.6 : Energie D/μ et vitesse des électrons w_e déterminés par le code de Bolsig.	101
Figure IV.7 : Variation du potentiel électrique en configuration pointe-plan : distante inter-électrodes = 1 mm ; rayon de courbure de la pointe = 50 μm .	102
Figure IV.8 : Distribution du champ électrique en configuration pointe-plan le long de l'axe de symétrie : distante inter-électrodes = 1 mm ; rayon de courbure de la pointe = 50 μm .	103
Figure IV.9 : Distribution du champ électrique appliqué et du champ électrique de la charge d'espace le long de l'axe de symétrie.	103
Figure IV.10 : Evolution du potentiel électrique le long de l'axe de symétrie pour différents temps de simulation : le potentiel appliqué à la pointe est de l'ordre de 3 kV.	104

Figure IV.11 : Distribution des lignes équipotentiellles le long de l'axe de symétrie pour différents instants de simulation.	105
Figure IV.12 : Evolution du champ électrique le long de l'axe de symétrie pour différents instants de simulation.	106
Figure IV.13 : Propagation du streamer électrique le long de l'axe de symétrie pour différents instants de simulation.	107
Figure IV.14 : Distribution de la densité des électrons le long de l'axe de symétrie.	107
Figure IV.15 : Distribution de la densité des ions positifs le long de l'axe de symétrie.	108
Figure IV.16 : Distribution de la densité des ions négatifs le long de l'axe de symétrie.	109
Figure IV.17 : Distribution de la densité de charge totale le long de l'axe de symétrie.	110

Liste des tableaux

Chapitre I :

Tableau I.1 : Quelques biomatériaux céramiques et leur utilisation. 14

Tableau I.2 : Quelques biomatériaux polymériques et leur utilisation. 16

Chapitre II :

Tableau II.1 : Les réactions chimiques considérées. 39

Chapitre III :

Tableau III.1 : Paramètres de simulation selon l'équation (III.3) pour différentes valeurs du potentiel de surface initial. 73

Tableau III.2 : Paramètres de simulation selon l'équation (III.3) pour différentes valeurs du taux d'humidité relative. 78

Chapitre IV :

Tableau IV.1 : Paramètres d'entrée de la simulation d'une décharge couronne positive en configuration pointe-plan. 95

Tableau IV.2 : Conditions aux limites du modèle. 98

Introduction générale

Introduction générale

Chaque année, plus de 30 millions d'implants et divers dispositifs médicaux sont implantés dans le corps humain afin de prolonger et d'améliorer l'intégrité et le confort de vie de personnes souffrant de problèmes fonctionnels [A.J.T.Teo2016,M.Humar2016]. Pour cela, la recherche et l'évolution de la technologie des biomatériaux ne cessent de s'intensifier de plus en plus [D.Mantovani2003]. Actuellement, les biomatériaux sont utilisés pratiquement dans toutes les parties du corps humain, rentrant dans la fabrication des implants et des dispositifs médicaux. Ils peuvent être dérivés de la nature ou synthétisés en laboratoire à partir de matériaux métalliques, céramiques, polymères et composites [A.J.T.Teo2016,S.A.Jacota Popescu2008]. Les biomatériaux à base de polymères occupent toujours une place importante dans le domaine médical. Leurs propriétés macromoléculaires sont comparables à celles des composants fonctionnelles de l'environnement biologique. Les polyimides aromatiques (PI) sont parmi les principaux polymères synthétiques utilisés dans des applications commerciales en tant que biomatériaux [S.A.JacotaPopescu2008]. Ils forment une classe de polymères à hautes performances en raison de leurs excellentes propriétés avantageuses pour le domaine biomédical [A.J.T.Teo2016,C.P.Constantin2019,A.A.Stolov2012,Y.Sun2009]. Ils présentent une stabilité thermique exceptionnelle allant jusqu'à 400 °C (parfois jusqu'à plus de 500 °C), une résistance chimique élevée, une faible constante diélectrique, une grande résistance mécanique, une durabilité à long terme et une transmittance optique élevée sur une large gamme de longueurs d'onde [A.J.T.Teo2016,C.P.Constantin2019,A.A.Stolov2012,Y.Sun2009]. Ils peuvent être préparés sous forme de films minces et flexibles. Grâce à leurs propriétés thermique et chimique remarquables, les PIs sont largement utilisés pour l'encapsulation de biocapteurs et le revêtement de fibres optiques et plus récemment, ils sont utilisés comme substrat flexible pour les implants neuronaux. De plus, la non cytotoxicité des PIs a été prouvée dans de nombreuses études in vitro et in vivo et leur biocompatibilité a été évaluée par l'organisation internationale de normalisation ISO 10993 et l'organisation américaine U.S. Food and Drug Administration (FDA) [A.J.T.Teo2016,Y.Sun2009,B.Rubehn2010,C.Li2019]. Le problème le plus souvent abordé dans l'étude des biomatériaux est celui de la réponse de l'organisme aux implants à long terme. C'est le cas lorsque le PI est utilisé comme un support mécanique ou pour l'encapsulation de prothèses neuronales. En effet, l'environnement aqueux d'un implant suppose des interactions entre la surface du PI, les différents ions et molécules de différentes tailles (sels et protéines) et une certaine quantité d'eau absorbée. La présence de la molécule d'eau peut être un problème majeur pour la

stabilité du PI à long terme car la structure moléculaire du PI contient quatre groupes imides polaires tels que les groupes amine et carbonyle, de nature hydrophiles [B.X.Du2016,Z.Ziari2013,B.X.Du2015] rendant le matériau très sensible à l'humidité [N.R.Tu1999]. Cela provoque une détérioration de ses propriétés électriques et mécaniques entraînant son vieillissement accéléré, ce qui entrave son application à long terme dans certains dispositifs médicaux et bio-MEMS (biosystèmes micro-électromécaniques) [P.Constantin2019]. Par conséquent, la compréhension des effets de l'humidité environnementale sur les propriétés électriques des films de PI pourrait contribuer à la prise de mesures adéquates pour freiner leur vieillissement et augmenter ainsi la durée de vie du dispositif médical à base de ce polymère.

De nombreuses études ont été menées pour déterminer l'effet des molécules d'eau absorbées sur les propriétés de conduction diélectrique et électrique des films de PI. Kaneko et *al.* ont rapporté que l'eau absorbée améliore l'injection de charges et la mobilité des porteurs de charges dans le PI [K.Kaneko2005]. Fujita et *al.* ont mesuré les propriétés thermiques et la densité de charges d'espace après séchage d'un film de PI immergé dans l'eau distillée et ils ont trouvé que l'allongement du temps de séchage pouvait limiter l'injection de charges dans le film de PI [S.Fujita2002]. Subramanian et *al.* ont montré que la variation de la constante diélectrique relative du PI est linéaire en fonction de l'humidité relative absorbée [R.Subramanian1991]. Bellucci et *al.* ont démontré que la conductivité électrique mesurée du Kapton PI augmente dans un environnement humide [F.Bellucci1990]. Du et *al.* ont rapporté les effets de l'immersion dans l'eau sur le processus du déclin de charge de surface des films de PI et ils ont constaté que le taux du déclin augmente avec l'augmentation du temps d'immersion [B.X.Du2016]. Cependant, il y a peu de travaux de recherche rapportés sur l'effet de l'absorption de vapeur d'eau sur le comportement dynamique du potentiel de surface des films de PI, il est donc nécessaire de comprendre l'influence de l'humidité relative (RH %) sur les propriétés de transport de charges dans les films de PI.

La formation de la charge d'espace dans les matériaux polymères isolants sous l'action de nombreux facteurs (champ électrique élevé, irradiation, rayonnement UV solaire, variations de température et d'humidité, contraintes mécaniques...), peut conduire à une distorsion locale du champ électrique et affecter les performances électriques et la durée de vie, conduisant à la dégradation et à la rupture prématurées des matériaux [T.C.Zhou2011,J.Li2015]. Il a été démontré que la formation de la charge d'espace est fortement corrélée avec les caractéristiques de piégeage et de dé-piégeage de charges

[S.Sahli2003,J.Hao2018]. Ces pièges sont formés par des défauts physiques dans la région amorphe et des défauts chimiques comme les résidus chimiques des macromolécules dans la structure d'agrégation des polymères. Ils ont un effet significatif sur les propriétés de porteurs, telles que le piégeage et le dé-piégeage, le transport et la conductivité dans le polymère [L.Yue2013,W.W.Shen2013]. Cependant, les caractéristiques de piégeage et de dé-piégeage sont encore mal comprises en raison de la complexité de la microstructure des matériaux polymères [T.Zhou2011,G.Chen2009,G.Teyssedre2005]. Plusieurs méthodes, telles que le déclin du potentiel de surface (SPD) [B.Du2015,W.Shen2013,H.Mallem2018,Y.Han2018], le courant de décharge stimulé thermiquement (TSC) [A.M.Kamalov2016,N.A.Galichin2007,T.Mizutani1982], le courant de relaxation isotherme (IRC) [J.G.Simmons1973], la décharge photo-stimulée (PSD) [P.Ma2015] et électroacoustique pulsée (PEA) [T.Zhou2011,J.Hoa2018,G.Chen2009,G.Mazzanti2003] ont été utilisés pour mesurer la distribution d'énergie des pièges ou les paramètres de piégeage. La mesure de la distribution de l'énergie du piège par la méthode du déclin de potentiel de surface fournit un autre moyen pratique pour étudier la charge d'espace dans les matériaux isolants polymères [W.W.Shen2013,Y.Han2018]. L'avantage de la technique du déclin de potentiel de surface réside essentiellement dans sa simplicité et sa facilité de mise en œuvre. Elle permet de mesurer le potentiel de surface sans contact avec la surface chargée et donc sans aucune modification physique de cette surface.

L'objectif de notre travail est l'étude de l'effet de la décharge couronne sur les propriétés électriques de films minces de PI en vue de leur utilisation dans le biomédical. La première partie est consacrée à l'étude de l'effet du taux d'humidité relative sur les propriétés électriques des films de PI en utilisant les techniques de mesures du déclin de potentiel de surface et du courant de charge. La deuxième partie est consacrée à l'étude et la simulation d'une décharge couronne positive en configuration pointe-plan en utilisant un modèle mathématique basé sur l'approximation dérive-diffusion. Cette simulation a été menée pour bien comprendre la physique de chargement des films de polymères par décharge couronne.

Ce manuscrit est structuré en quatre chapitres :

Le premier chapitre expose l'état de l'art sur les biomatériaux et les polyimides. Les domaines d'applications et les différents types des biomatériaux ainsi que les caractéristiques et les applications biomédicales du polyimide seront présentés dans ce chapitre.

Le deuxième chapitre sera consacré dans un premier temps à la présentation de la définition de la charge d'espace. Nous présenterons ensuite la décharge couronne comme moyen de chargement électrostatique de polymères en mettant l'accent sur les différents types de la décharge couronne, la caractéristique courant-tension d'une décharge couronne dans l'air à pression atmosphérique et le mécanisme de formation d'une décharge couronne. Nous présenterons dans un second temps la description de quelques processus physiques responsables du déclin de potentiel de surface ainsi que les théories des bandes d'énergie des polymères et la nature des pièges.

Dans le troisième chapitre, nous présenterons tout d'abord les dispositifs de chargement par décharge couronne et de mesure du potentiel de surface ainsi que le matériel que nous avons utilisés dans ce travail. Nous exposerons ensuite les mesures expérimentales que nous avons menées concernant l'étude de l'influence de l'humidité sur l'évolution temporelle du potentiel de surface de films de PI chargés par décharge couronne. De plus, les évolutions du déclin de potentiel de surface $V_s(t)$, seront corrélées aux évolutions temporelles du courant de chargement ainsi que les caractéristiques courant-tension I-V. Une analyse quantitative de la distribution des pièges sous différents niveaux du potentiel de chargement et du taux d'humidité relative en utilisant la méthode du déclin de potentiel de surface sera également présentée.

Le quatrième et dernier chapitre sera plus particulièrement consacré à la modélisation de la décharge couronne continue en configuration pointe-plan dans l'air atmosphérique. Les résultats de la simulation obtenus concernant la distribution spatio-temporelle des particules chargées (électrons, ions positifs et négatifs), du potentiel et du champ électrique seront présentés. Un modèle mathématique axisymétrique bidimensionnel se basant sur l'approximation dérive-diffusion afin de comprendre le mécanisme et les phénomènes physiques de la décharge couronne positive continue dans l'air est utilisé. Ce modèle est composé d'un système d'équations de continuité pour les espèces chargées, couplé avec l'équation de Poisson.

Une conclusion générale synthétisant les principaux résultats obtenus dans le cadre de cette étude et des perspectives à ce travail seront présentées à la fin de ce manuscrit.

Références de l'introduction

- [F.Bellucci1990] F. Bellucci, I. Khamis, S.D. Senturia, R.M. Latanision, “Moisture effects on the electrical conductivity of Kapton Polyimide”, *Journal of the Electrochemical Society*, Vol. 137, No. 6, pp. 1778-1784, June 1990.
- [G.Chen2009] G. Chen, Z. Xu, “Charge trapping and detrapping in polymeric materials”, *Journal of Applied Physics*, Vol. 106, No. 12, 123707 (5pp), 2009.
- [C.P.Constantin2019] C.P. Constantin, M. Aflori, R.F. Damian, R.D. Rusu, “Biocompatibility of polyimide”, *A Mini-Review, Materials*, Vol. 12, No.19, 3177 (27pp), October 2019.
- [B.X.Du2015] B.X. Du, Y.G. Guo, “Effect of Surface fluorination on dielectric properties and surface charge behavior of water absorbed polyimide film”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 22, No. 3, pp. 1369-1375, June 2015
- [B.X.Du2016] B.X. Du, Z.Y. He, Qiang Du, “Effects of water absorption on surface charge and dielectric breakdown of polyimide/Al₂O₃ nanocomposite films”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 23, No. 1, pp. 134-141, February 2016.
- [S.Fujita2002] S. Fujita, Y. kamei, “Electrical properties of polyimide with water absorption”, *Proceedings, IEEE 11th International Symposium on Electrets (ISE'11)*, Melbourne, Victoria, Australia, pp. 275-278, 1-3 October 2002.
- [N.A.Galichin2007] N.A. Galichin, M.E. Borisova, “The influence of elevated humidity on the stability of the electret state in polyimide films”, *Russian Electrical Engineering*, Vol. 78, No. 3, pp. 129-132, 2007.
- [Y.Han2018] Y. Han, S. Li, D. Min, “Trap energy distribution in polymeric insulating materials through surface potential decay method”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 25, No. 2, pp. 639-648, April 2018.
- [J.Hao2018] J. Hao, R. Zou, R. Liao, L. Yang, Q. Liao, “New method for shallow and deep trap distribution analysis in oil impregnated insulation paper based on the space charge detrapping”, *Energies*, Vol. 11, No. 2, 271 (16pp), 2018.
- [M.Humar2016] M. Humar, S.J.J. Kwok, M. Choi, A.K. Yetisen, S. Cho, S.H. Yun, “Toward biomaterial-based implantable photonic devices”, *Nanophotonics*, Vol. 6, No. 2, pp.414-434, 2017.
- [S.A.JacotaPopescu2008] S.A. Jacota Popescu, “Films minces de dioxyde de titane déposés sur titane par MOCVD : Microstructure et biocompatibilité”, *Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse*, Novembre 2008.
- [K.Kaneko2005] K. Kaneko, T. Ozaki, E. Nakane, T. Mizutani, “Effects of absorbed water on space charge and conduction phenomena in polyimide films”, *IEEE Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP'05)*, Nashville, TN, USA, pp. 657-660, 2005.
- [J.Li2015] J. Li, F. Zhou, D. Min, S. Li, R. Xia, “The energy distribution of trapped charges in polymers based on isothermal surface potential decay model”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 22, No. 3, pp. 1723-1732, June 2015.
- [C.Li2019] C. Li, M. Cauwe, L. Mader, D. Schaubroeck, M.O. Beeck “Accelerated hermeticity testing of biocompatibility moisture barriers used for the encapsulation of implantable medical devices”, *Coatings*, Vol. 10, No. 19, pp. 01-13, 2020.

- [[A.M.Kamalov2016](#)] A.M. Kamalov, M.E. Borisova, “The influence of moisture on charge relaxation in modified polyimide films”, *St. Petersburg Polytechnical University Journal : Physics and Mathematics*, Vol. 2, No. 3, pp. 188-192, 2016.
- [[P.Ma2015](#)] P. Ma, Y. Zhang, F. Zheng, Z. An, Q. Lei, “Investigation of surface and bulk charge traps of polyimide film by using the photo-stimulated discharge method”, *Europhysics Letters (ELP)*, Vol. 109, No. 2, 27006, 2015.
- [[H.Mallem2018](#)] H. Mallem, Z. Ziari, S. Sahli, “Temperature effect on electrical characteristics of negative DC corona charged polyimide films”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 25, No. 2, pp. 421-427, April 2018.
- [[D.Mantovani2003](#)] D. Mantovani, “Les biomatériaux, l’ingénierie au service de la santé”, *Le Médecin du Québec*, Vol. 38, No. 5, pp. 93-95, Mai 2003.
- [[G.Mazzanti2003](#)] G. Mazzanti, G.C Montanari, F. Palmieri, J. Alison, “Apparent trap-controlled mobility evaluation in insulating polymers through depolarization characteristics derived by space charge measurements”, *Journal of Applied Physics*, Vol. 94, No. 9, pp. 5997-6004, October 2003.
- [[T.Mizutani1982](#)] T. Mizutani, Y. Suzuoki, M. Hanai, M. Ieda, “Determination of trapping parameters from TSC in polyethylene”, *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 21, Part 1, No. 11, pp. 1639-1641, 1982.
- [[B.Rubehn2010](#)] B. Rubehn, T. Stieglitz, “In vitro evaluation of the long-term stability of polyimide as a material for neural implants”, *Biomaterials*, Vol. 31, No. 13, pp. 3449-3458, May 2010.
- [[S.Salhi2003](#)] S. Salhi, A. Bellel, Z. Ziari, A. Kahlouche, Y. Segui, “Measure and analysis of potential decay in polypropylene films after negative corona charge deposition”, *Journal of Electrostatics*, Vol. 57, No. 2, pp. 169-181, 2003.
- [[W.W.Shen2013](#)] W.W. Shen, H.B. Mu, G.J. Zhang, J.B. Deng, D.M. Tu, “Identification of electron and hole trap based on isothermal surface potential decay model”, *Journal of Applied Physics*, Vol. 113, 083709 (6pp), February 2013.
- [[J.G.Simmons1973](#)] J.G. Simmons, M.C. Tam, “Theory of isothermal currents and the direct determination of trap parameters in semiconductors and insulators containing arbitrary trap distributions”, *Physical Review B*, Vol. 7, No. 8, pp. 3706-3713, 1973.
- [[A.A.Stolov2012](#)] A.A. Stolov, B.E. Slyman, D.A. Simoff, A.S. Hokansson, R.S. Allen, J.P. Earnhardt, “Optical fibers with polyimide coatings for medical applications”, *Design and Quality for Biomedical Technologies*, Vol. 8215, pp. 82150B, February 2012.
- [[R.Subramanian1991](#)] R. Subramanian, M. Pottiger, J.H. Morris, J.P. Curilla, “Effect of moisture on the physical properties of polyimide films”, *Materials Research Society (MRS) Online Proceedings Library (OPL), Symposium J – Materials Science of High Temperature Polymers for Microelectronics*, Vol. 227, pp. 147-154, 1991.
- [[Y.Sun2009](#)] Y. Sun, S.P. Lacour, R.A. Brooks, N. Rushton, J. Fawcett, R.E. Cameron, “Assessment of the biocompatibility of photosensitive polyimide for implantable medical device use”, *Journal of Biomedical Materials Research Part A*, Vol. 90, No. 3, pp. 648-655, September 2009.
- [[N.R.Tu1999](#)] N.R. Tu, K.C. Kao, “High-field electrical conduction in polyimide films”, *Journal of Applied Physics*, Vol. 85, No. 10, pp. 7267-7275, May 1999.

[[A.J.T.Teo2016](#)] A.J.T. Teo, A. Mishra, I. Park, Y.J. Kim, W.T. Park, Y.J. Yoon, “Polymeric biomaterial for medical implants and devices”, ACS Biomaterials Science and Engineering, Vol. 2, No. 4, pp. 454-472, 2016.

[[G.Teyssedre2005](#)] G. Teyssedre, C. Laurent, “Charge transport modeling in insulating polymers : From molecular to macroscopic scale”, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 12, No. 5, pp. 857-875, October 2005.

[[L.Yue2013](#)] L. Yue, X. Wang, Y. Wu, J.L. Cao, Y. Liu, C. Sun, J. Yang, “Study on evolution of deep charge traps in polyimide irradiated by low-energy protons using photo-stimulated discharge technique”, Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 46, No. 14, 145502 (6pp), 2013.

[[T.C.Zhou2011](#)] T.C. Zhou, G. Chen, R.J. Liao, Z. Xu, “Charge trapping and detrapping in polymeric materials: Trapping parameters”, Journal of Applied Physics, Vol. 110, No. 4, 043724 (6pp), 2011.

[[Z.Ziari2013](#)] Z. Ziari, I. Nouicer, S. Sahli, S. Rebiai, A. Bellel, Y. Segui, P. Raynaud, “Chemical and electrical properties of HMDSO plasma coated polyimide”, Vacuum, Vol. 93, pp. 31-36, July 2013.

Chapitre I

**Généralités sur les
biomatériaux et les
polyimides**

Chapitre I : Généralités sur les biomatériaux et les polyimides

I.1. Introduction

Les recherches sur les matériaux organiques ont conduit à l'élaboration d'une famille de polymères "hautes performances" dont les propriétés électriques, thermiques et mécaniques ont suscité l'intérêt de différentes industries. Parmi ces matériaux on peut citer la famille des polyimides aromatiques (PI) qui sont parmi les principaux polymères synthétiques utilisés dans l'industrie médicale comme matériaux d'encapsulation et d'isolation pour les dispositifs médicaux [S.A.JacotaPopescu2008,A.J.T.Teo2016].

Dans ce chapitre, nous donnerons quelques notions sur les biomatériaux et les polyimides. Les domaines d'applications et les différents types des biomatériaux ainsi que les caractéristiques et les applications dans le domaine biomédical du polyimide seront présentés dans ce chapitre.

I.2. Généralité sur les biomatériaux

I.2.1. Les biomatériaux

Depuis la première valve du cœur, implantée en 1952, et la première prothèse artérielle, installée en 1958, les organes artificiels et les dispositifs médicaux suppléant des fonctions déficientes de l'organisme humain ont franchi des barrières médicales, scientifiques et techniques toujours plus hautes, tout en aidant les patients à améliorer leur qualité de vie. Les raisons principales de ce succès résident dans l'évolution scientifique et technique constante des biomatériaux, due à une espérance de vie qui ne cesse de s'accroître et à la volonté de la société d'améliorer continuellement la qualité de vie des patients [M.D.Mantovani2003].

Les biomatériaux constituent cette classe particulière de matériaux dont les propriétés permettent l'emploi pour la conception, le développement et la fabrication d'organes artificiels et de dispositifs médicaux. De nombreuses définitions ont été développées pour le terme "bimatériau". La Conférence de Chester de la Société Européenne des Biomateriaux, dite conférence du consensus en 1986, a retenu la définition suivante : "*a biomaterial is a nonviable material used in a medical device intended to interact with biological systems*" (un biomatériau est un matériau non viable utilisé dans un dispositif médical destiné à interagir avec les systèmes biologiques) [D.F.Williams1986]. Un peu plus tard, Williams complètera cette définition par : "*in the medical and dental area, biomaterials are used to evaluate, treat, augment or replace damaged tissues or organs*" (dans le domaine médical et

dentaire, les biomatériaux sont utilisés pour évaluer, traiter, renforcer ou remplacer des tissus ou organes endommagés) [D.F.Williams1992].

Jandt [K.D.Jandt2007] a modernisé la définition de Williams pour un biomatériau et a proposé la suivante : "*a biomaterial is a material intended to interface with biological systems to evaluate, treat, augment or replace any tissu, organ or function of the body*" (un biomatériau est un matériau destiné à interagir avec les systèmes biologiques pour évaluer, traiter, renforcer ou remplacer un tissu, organe ou une fonction de l'organisme).

L'évolution des biomatériaux dans le dernier siècle fait apparaître, trois générations de matériaux qui se distinguent par le degré de complexité et la capacité d'interagir avec l'environnement biologique. Dans un premier temps, les biomatériaux développés devaient être inertes et biocompatibles, afin de ne causer aucun dommage au tissu biologique traité ou limitrophe. Dans un second temps, des biomatériaux bioactifs pouvant se lier au tissu hôte ont été développés. Enfin, de nos jours, l'objectif principal est le développement de biomatériaux biodégradables pouvant se dégrader une fois leur action terminée, et laisser ainsi place à des tissus naturels [S.A.JacotaPopescu2008,A.Hardy2018].

Le facteur vraiment important qui distingue un biomatériau des autres matériaux est sa capacité de pouvoir être maintenu en contact avec des tissus du corps humain sans causer d'endommagements de quelque nature que ce soit [S.A.JacotaPopescu2008]. Un biomatériau doit, d'une part satisfaire à des caractéristiques physico-chimiques appropriées au site d'implantation et à la fonction à remplir, et d'autre part être biocompatibles, c'est-à-dire sans activer la cascade du complément ou modifier la coagulation sanguine ou encore sans induire des réactions inflammatoires délétères pour le corps humain.

Aujourd'hui, les biomatériaux sont utilisés pratiquement partout au niveau du corps humain (figure I.1) et leur utilisation est très largement répandue. Grâce à eux, des millions de vies ont été sauvées, et la qualité de vie de millions d'autres est améliorée chaque année [E.Fattal2017].

I.2.2. La biocompatibilité

L'efficacité d'un biomatériau implantable ou injectable est directement liée à la notion de biocompatibilité. Les notions de *biomatériau* et de *biocompatibilité* ont évolué continûment en fonction des connaissances acquises et des performances des matériaux.



Figure I.1 : Biomatériaux dans un corps humain [A.Hardy2018].

La biocompatibilité est définie comme étant la capacité d'un matériau à être accepté par un être vivant. C'est aussi l'absence de réaction de l'organisme vis à vis d'un matériau sous la forme d'un élément complet ou sous forme de produits d'usure ou de corrosion susceptibles d'être libérés par cet élément. Williams a proposé en 2008 une définition complète : *"biocompatibility refers to the ability of a biomaterial to perform its desired functions with respect to a medical therapy, without eliciting any undesirable local or systemic effect in the recipient or beneficiary of that therapy, but generating the most appropriate beneficial cellular or tissue response in that specific situation, and optimizing the clinically relevant performance of that therapy"* (la biocompatibilité réfère à la capacité d'un biomatériau à remplir ses fonctions souhaitées par rapport à une thérapie médicale, sans provoquer d'effets indésirables locaux ou systémiques chez le receveur ou le bénéficiaire de cette thérapie, mais en générant la réponse cellulaire ou tissulaire bénéfique la plus appropriée et bénéfique dans cette situation spécifique et en optimisant la performance pertinente de cette thérapie) [D.F.Williams2008]. Au-delà de l'absence évidente de toxicité, l'auteur souligne que pour qu'un biomatériau soit biocompatible, il doit interférer positivement avec le milieu biologique dans lequel il se trouve. La [figure I.2](#) présente schématiquement l'ensemble des facteurs qui jouent sur la biocompatibilité.

La détermination de la biocompatibilité nécessite la réalisation de plusieurs types de tests menés séquentiellement [N.Mansouri2009] :

1. **Tests *in vitro* (tests initiaux)** : la culture des tissus permet d'obtenir en laboratoire des organes animaux ou végétaux et d'étudier la mise en place de leur architecture, leur croissance, leurs pathologies, etc... . Les tests de cytotoxicité *in vitro* constituent une première approche rapide et efficace réduisant l'expérimentation animale. Les méthodes de cultures de cellules *in vitro* permettent d'évaluer la cytotoxicité et les interactions des matériaux ou des dispositifs par contact direct d'explants et/ou en présence d'extraits préparés à partir de ceux-ci, avec des cellules de lignée et/ou différenciées, sur lesquelles on observe et quantifie les effets provoqués.
2. **Test *in vivo* (tests secondaires)** : de façon à compléter les informations *in vitro*, il convient de réaliser des tests *in vivo* sur une espèce animale conformément à la réglementation sur les expérimentations animales.
3. **Tests *précliniques*** : les tests précliniques précèdent la mise sur le marché des biomatériaux et leur utilisation clinique exhaustive.

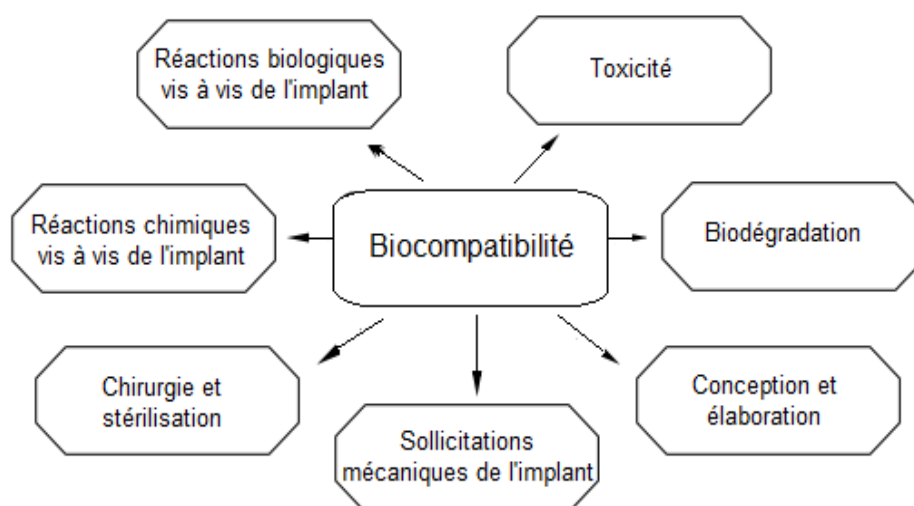


Figure I.2 : Présentation schématique de l'ensemble des facteurs jouant sur la biocompatibilité [S.A.JacotaPopescu2008].

I.2.3. Domaines d'applications des biomatériaux

La chirurgie réparatrice et celle de la suppléance fonctionnelle constituent les domaines d'applications les plus importants des biomatériaux. D'autres spécialités médicales recourent également à des outils d'investigation ou d'intervention endoscopique impliquant l'emploi des matériaux appelés aussi à être confortés au milieu biologique [A.J.T.Teo2016,N.Mansouri2009].

✓ Ophtalmologie :

Lentilles ; implants ; coussinets de récupération ; produits visqueux de chambre postérieure.

✓ Odontologie - stomatologie :

Matériaux de restauration et comblement dentaire et osseux ; traitement prophylactique, orthodontie ; traitement du parodonte et de la pulpe ; implants ; reconstruction maxillo-faciale.

✓ Chirurgie orthopédique :

Prothèses articulaires (hanche, coude, genou, poignet,...) ; orthèses ; ligaments et tendons artificiels ; cartilage ; remplacement osseux pour tumeur ou traumatisme ; réparation de fractures (vis, plaques, clous, broches) ; matériaux de comblement osseux injectable.

✓ Cardiovasculaire :

Valves cardiaques ; matériel pour circulation extracorporelle (oxygénateurs, tubulures, pompes,...) ; cœur artificiel ; assistance ventriculaire ; stimulateurs cardiaques ; prothèses vasculaires ; cathéters endoveineux.

✓ Urologie - néphrologie :

Dialyseurs ; poches ; cathéters et tubulures pour dialyse péritonéale ; rein artificiel portable ; matériaux pour traitement de l'incontinence.

✓ Endocrinologie - chronothérapie :

Pancréas artificiel ; pompes portables et implantables ; systèmes de libération contrôlée de médicaments ; biocapteurs.

✓ Chirurgie esthétique :

Matériaux et implants pour chirurgie esthétique.

✓ Chirurgie générale et divers :

Drains de chirurgie ; colles tissulaires ; peau artificielle ; produits de contraste ; produits pour embolisation ; produits pour radiologie interventionnelle.

I.2.4. Catégories des biomatériaux

Le besoin de dispositifs nécessaires pour remplacer des parties de tissu du corps humain a conduit au développement de matériaux de plus en plus sophistiqués. Les biomatériaux peuvent être préparés à partir d'une grande variété de composés, dépendamment de l'application envisagée. Les métaux et alliages métalliques sont très utilisés dans les

matériaux implantables orthopédiques du fait de leurs bonnes propriétés mécaniques. Les céramiques sont quant à eux couramment employés en odontologie. Actuellement, un grand nombre de biomatériaux sont développés à partir de polymères, pouvant ainsi trouver des applications dans des domaines très variés [S.A.JacotaPopescu2008,J.Giraud2016].

I.2.4.1. Biomatériaux métalliques

Les métaux et les alliages métalliques sont parmi les premiers biomatériaux à avoir été utilisés pour des applications biomédicales [S.A.JacotaPopescu2008]. Les tiges et les têtes ainsi que la plupart des coques externes sont élaborées en matériaux métalliques qui sont essentiellement utilisés en orthopédie (clou, vis, plaques, articulations), en stomatologie (plombages, prothèses, pièces dentaires) ou chirurgie. Les alliages métalliques utilisés en arthroplastie se subdivisent en quatre groupes, les aciers inoxydables, les alliages à base de cobalt, les alliages à base de titane et les autres métaux divers (alliages à base de magnésium, de tantale et de zirconium, argent). Les trois premiers groupes sont actuellement les plus productifs et ils ont mené à de nombreux biomatériaux, approuvés par l'organisation américaine U.S. Food and Drug Administration (FDA). La figure I.3 présente l'utilisation des matériaux métalliques comme dispositifs biomédicaux [S.A.JacotaPopescu2008, M.E.Belgherras2018].

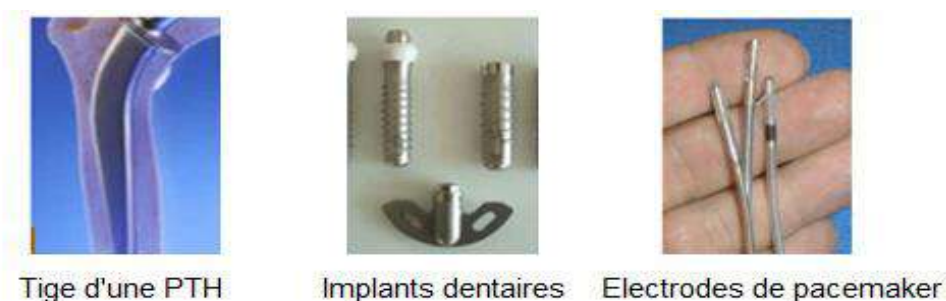


Figure I.3 : Produit en Titane [N.Mansouri2009].

I.2.4.2. Biomatériaux céramiques

Les céramiques sont des matériaux polycristallins caractérisés par leur dureté, leur faible densité, leur résistance mécanique, à la corrosion et à l'usure, mais aussi par une température de fusion élevée et un comportement fragile. Les biomatériaux céramiques ne sont pas solubles dans le milieu physiologique et par conséquent stables dans le temps. La liaison développée entre le substitut et le tissu osseux se fait par accroche mécanique via une fine capsule fibreuse située autour de l'implant [A.Hardy2018, M.E.Belgherras2018].

Dans le domaine des biomatériaux, on rencontre principalement :

- ✚ **Les céramiques bio-inertes** : Les céramiques bio-inertes, représentées par l'alumine Al_2O_3 et la zircone ZrO_2 , présentent des propriétés mécaniques intéressantes, principalement en compression, couplées à une inertie biologique. Ils peuvent être utilisés dans les têtes de prothèses orthopédiques (hanche, genou, épaule), ainsi qu'en odontologie pour les prothèses dentaires [N.Mansouri2009].
- ✚ **Les céramiques bio-actives** : La caractéristique de ces céramiques est une composition chimique qui se rapproche le plus possible de celle de l'os naturel : le phosphate de calcium, les verres bioactifs à base de phosphore et de calcium. [S.A.JacotaPopescu2008,M.E.Belgherras2018].

Malgré leur fragilité, justifiant leur utilisation moins abondante que les biomatériaux métalliques ou polymériques, les céramiques se retrouvent dans diverses applications, principalement dans les domaines de la dentisterie (figure I.4) et orthopédique (Tableau I.1) [A.Hardy2018].



Figure I.4 : Tête en alumine Al_2O_3 d'une prothèse orthopédique et une prothèse dentaire en zircone ZrO_2 [N.Mansouri2009].

Biomatériaux céramiques	Utilisations
Alumine (Al_2O_3)	Implants dentaires, espaceurs et extenseurs de vertèbres, composants fémoraux prothèses articulaires totales.
Zircone (ZrO_2)	Prothèses de hanche, de genou, de dent, de tendon ou de ligament, produits de comblement osseux.
Bioverres	Implants dentaires, valves cardiaques prothèses articulaires totales, plaques, vis et fils chirurgicaux, clous intramédullaires.
Phosphate de calcium	Implants dentaires, reconstructions de mâchoire, d'oreille, de nez ou de gorge.

Tableau I.1 : Quelques biomatériaux céramiques et leur utilisation.

I.2.4.3. Biomatériaux composites

Un biomatériau composite combine au moins deux matériaux différents, par exemple une matrice polymère et une charge en céramique. Le résultat est un matériau aux propriétés supérieures à celles des composantes individuelles [S.A.JacotaPopescu2008]. Les composites sont spécialement adaptés aux biomatériaux qui nécessitent une combinaison de propriétés : remplacement complet d'articulations, plaques de renfort osseux, amalgame dentaire.

I.2.4.4. Biomatériaux polymériques

En raison de leur facilité de fabrication, de leur flexibilité et de leur propriété de biocompatibilité, les polymères sont des matériaux de premier choix pour le développement de biomatériaux. Ils sont principalement des substances organiques synthétiques constituées de grandes molécules (macromolécules) caractérisées par la répétition du même groupe d'atomes appelé motif constitutif, petite structure périodique qui se répète tout le long de la chaîne, composé d'une ou de plusieurs unités de base (monomères, du grec *mono* : un seul ou une seule, et *meros* : partie). Les monomères sont attachés ensemble par des liaisons covalentes, en une ligne pour former une longue chaîne. Si l'unité de base d'un polymère est constituée d'un seul type de monomère, le matériau est dit homopolymère. Dans l'autre cas, le matériau est un copolymère. Il existe différents types de polymères caractérisés par des propriétés différentes : certains sont utilisés pour leurs propriétés élastiques, thermiques ou encore électriques [Z.Ziari2008]. Les biomatériaux à base de polymères occupent toujours une place importante dans le domaine médical. Leurs propriétés macromoléculaires sont comparables à celles des composants fonctionnels de l'environnement biologique : lipides, protéines, polysaccharides. Leurs avantages sont une mise en forme facile et une très grande diversité d'applications dans l'organisme humain. Les principaux polymères utilisés dans des applications commerciales en tant que biomatériaux sont synthétiques et ils sont répertoriés dans le [Tableau I.2](#).

Le monde des matériaux polymères ne cesse de croître et comprend désormais un grand nombre de substances différentes qui peuvent être produites dans une variété de formes physiques avec une variété de caractéristiques physiques : des solides aux fibres, des feuilles minces aux plaques épaisses, du composant dur au mou, des produits inertes aux produits bioactifs.

Biomatériaux "polymères"	Domaine d'utilisation
Polyéthylène (PE)	Alèses, champs opératoires, vêtements de protection, tubulures (tubes, sondes, cathéters), sutures, implants vasculaires et orthopédiques.
Polypropylène (PP)	Seringues jetables, tubes de cathéters, flacons de solutés, fils de suture, ligaments.
Polychlorure de vinyle (PVC)	Poches à sang, à urines, sondes, tubes, gants d'examen, champs opératoires, prothèses faciales.
Polystyrène (PS)	Boîtes de Pétri.
Polyester (polyéthylène téréphtalate : PET)	Sutures, implants vasculaires, valves cardiaques, support d'analyse, ligaments, chirurgie du tube digestif.
Polytétrafluoroéthylène (PTFE : Téflon)	Implants vasculaires, chirurgie faciale, cathéters, siège de valves cardiaques.
Cellulosiques	Membrane de dialyse.
Polym(éthacrylate de méthyle) (PMMA)	Lentilles de contact rigides, cristallins artificiels, prothèse dentaire, lentilles intraoculaires, ciment orthopédique.
Polyamide (PA)	Cathéters, sondes, fils de suture.
Polyimide (PI)	Générateur d'impulsions implantable pour la stimulation cérébrale profonde, neuroprothèses, prothèses cognitives, cathéters.
Polycarbonate de bisphénol A (PC)	Eléments de dialyse, optique médicale.
Polysulfone (PSU)	Eléments de cœur artificiel.
Silicone (Polysiloxane)	Cathéters, sondes, drains, lentilles de contact souples, prothèse de chirurgie esthétique, pansements pour plaies profondes.
Polyuréthane (PEU)	Orthèse, matelas, bandes, pacemaker (isolant), urologie, implants mammaires, valves cardiaques.

Tableau I.2 : Quelques biomatériaux polymériques et leur utilisation

[A.J.T.Teo2016,N.Mansouri2009].

La [figure I.5](#) montre que les prothèses du genou et les cathéters constituent deux des applications médicales des polymères [M.Vert2006].

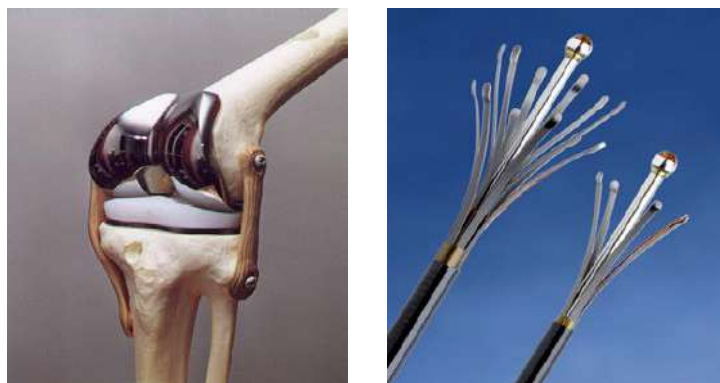


Figure I.5 : Utilisation des polymères pour la fabrication des prothèses du genou et des cathéters [M.Vert2006].

L'aspect majeur limitant la biocompatibilité des polymères est dû à leur formulation chimique : ils contiennent toujours des additifs qui peuvent être libérés *in vivo* entraînant des effets indésirables. Ce sont des plastifiants, des pigments, des antioxydants, des agents radio-opaques, des inhibiteurs/initiateurs de polymérisation et, bien sûr, des monomères [S.Todros2021].

I.3. Généralité sur les polyimides (PI)

Les polyimides aromatiques (PI) sont parmi les principaux polymères synthétiques utilisés dans des applications commerciales en tant que biomatériaux [S.A.JacotaPopescu2008]. Ils forment une classe de polymères à hautes performances en raison de leurs excellentes propriétés avantageuses pour le domaine biomédical [A.J.T.Teo2016,C.P.Constantin2019,A.A.Stolov2012,Y.Sun2009]. Le polyimide est une macromolécule contenant dans son unité répétitive la fonction chimique "imide" (CO-N) (polymère à base d'imide), qui peut être linéaire ou aromatique. Une structure représentative d'un polyimide est représentée à la figure I.6.

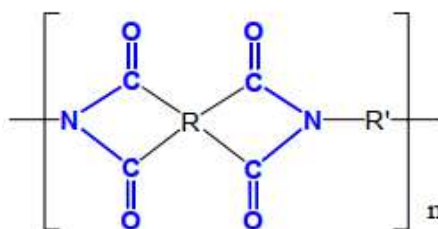


Figure I.6 : Structure chimique d'une unité répétitive du polyimide.

L'excellente tenue thermique des polyimides (jusqu'à 500 °C) repose sur la présence dans leurs structures moléculaires de noyaux aromatiques homocycliques et hétérocycliques.

Ces derniers sont des cycles aromatiques contenant en plus du carbone et de l'hydrogène, des hétéroatomes tels que l'oxygène, l'azote ou le soufre. L'importance de ces groupes aromatiques dans les chaînes moléculaires du polyimide est telle que certains de ces matériaux ne présentent souvent ni transition vitreuse, ni fusion observable avant la décomposition par oxydation à partir de 500 °C [S.Zelmet2006].

La non cytotoxicité des polyimides a été prouvée dans de nombreuses études *in vitro* et *in vivo* et sa biocompatibilité a été évaluée par l'organisation internationale de normalisation ISO 10993 et l'organisation américaine U.S. Food and Drug Administration (FDA) [A.J.T.Teo2016,Y.Sun2009,B.Rubehn2010,C.Li2019]. Les propriétés de stabilité chimique et thermique des PI peuvent être mises à profit dans le développement de capteurs, comme par exemple pour la surveillance d'implants de genou. Leurs propriétés mécaniques peuvent quant à elles être utilisées dans le cadre du développement de matériaux de protection, comme par exemple de gaines protectrices de multi-électrodes. Les propriétés de transmittance des PI permettent également de les utiliser pour des applications médicales. Kwon *et al.* ont par exemple utilisé une rangée de micro-diodes électroluminescentes fabriquées à partir d'un polyimide afin d'enregistrer l'activité corticale dans le cadre du développement d'une interface cerveau-machine [K.Y.Kwon2013].

I.3.1. Polyimide aromatique (Kapton®)

Les polyimides aromatiques (PI) sont typiques de la plupart des polyimides du commerce, tels que Ultem de G.E. et Kapton® de DuPont. Le poly (4,4'-oxydiphénylène-pyromellitimide) (PMDA-ODA PI) (figure I.7), largement connu sous le nom de Kapton®, a été commercialisé pour la première fois au début des années 1960. Ces polymères ont des propriétés mécaniques et thermiques tellement incroyables qu'ils sont utilisés à la place des métaux et du verre dans de nombreuses applications hautes performances de l'électronique, de l'automobile et même de l'aérospatiale. Ces propriétés proviennent de fortes forces intermoléculaires entre les chaînes de polymères. Leur structure chimique fortement aromatique est responsable de bon nombre de leurs propriétés [H.Mallem2019].

I.3.2. Caractéristiques et applications biomédicales du polyimide

Dans notre cas, nous avons travaillé sur des films de 50 µm d'épaisseur (Kapton® HN de Goodfellow). Sa structure aromatique lui confère des caractéristiques tout à fait spécifiques, dont [A.J.T.Teo2016,Z.Ziari2008,C.P.Constantin2019,A.A.Stolov2012,Y.Sun2009] :

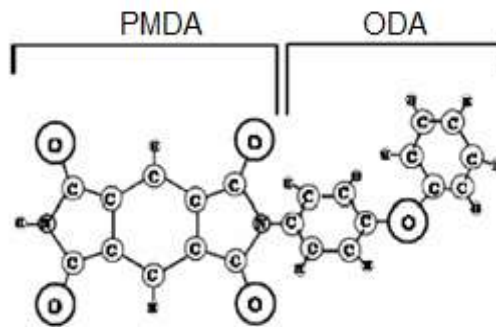


Figure I.7 : Formule chimique du Kapton®.

- ✓ une très haute température de transition vitreuse (entre 360 et 400 °C), donc une très large plage thermique d'utilisation allant de -269 °C à +400 °C (parfois jusqu'à plus de 500 °C) ;
- ✓ une faible constante diélectrique (3.4) ;
- ✓ une grande résistance chimique ;
- ✓ une grande résistance mécanique ;
- ✓ une bonne résistance à la radiation ;
- ✓ une durabilité à long terme ;
- ✓ une densité relativement faible (1.53 g/cm³) ;
- ✓ une faible énergie de surface (50 mJ/m²).

Les applications des polyimides sont très nombreuses, pour des usages très précis pour lesquels leurs propriétés apparaissent indispensables malgré leur prix élevé. Ces applications se trouvent surtout dans les dispositifs biomédicaux complexes haut de gamme tels que les biosystèmes micro-électromécaniques (bio-MEMS), par exemple les implants rétiniens et neuronaux. Les PIs remplissent une triple fonction dans ces dispositifs : un substrat mécanique souple (et inextensible) pour les éléments métalliques noyés, un substrat isolant efficace entre des trajets conducteurs adjacents et un encapsulant (chimique) global pour protéger le dispositif contre l'environnement liquide défavorable [A.J.T.Teo2016].

Hasenkamp et *al.* ont récemment développé un dispositif de détection de contrainte MEMS à base de polyimide pour étudier les implants artificiels du genou [W.Hasenkamp2013] et Forchelet et *al.* ont développé un dispositif de détection de contrainte MEMS polyimide-métal composite (figure I.8). La base polyimide (PI) assure une isolation électrique et un support mécanique souple pour le capteur tout en étant biocompatible et hautement stable chimiquement et mécaniquement [D.Fochelet2014].

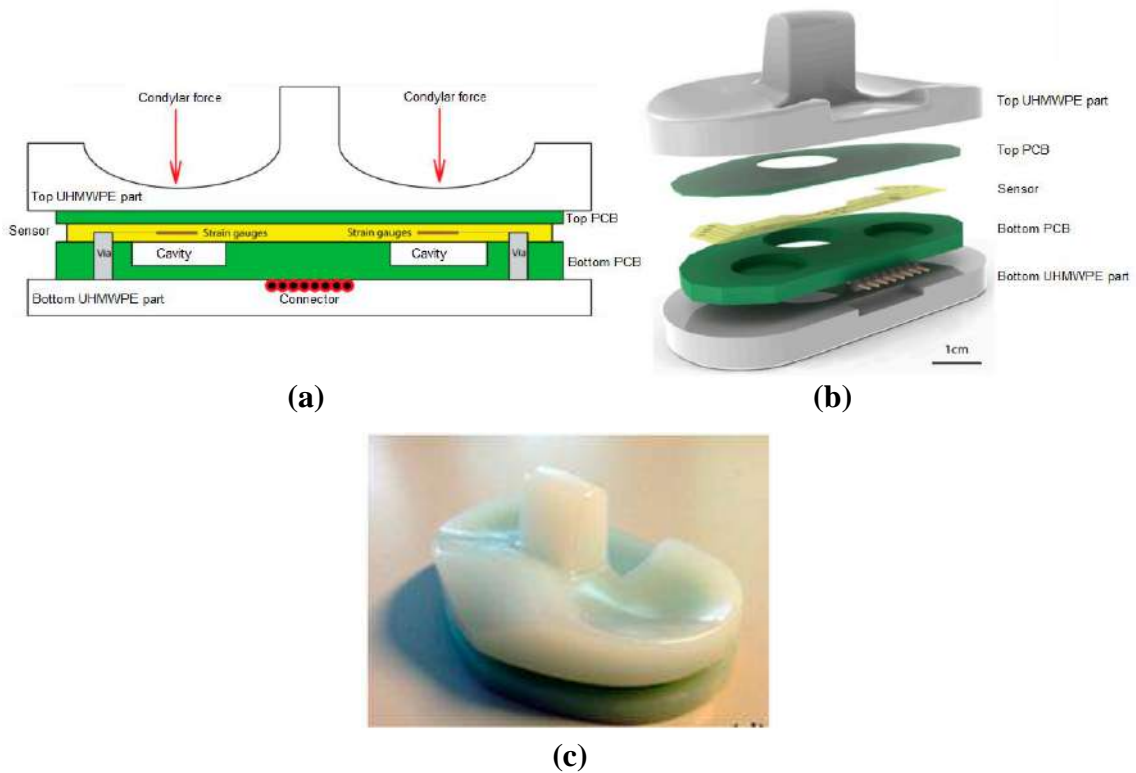


Figure I.8 : Schéma de principe d'une prothèse avec jauge de contrainte en polyimide (a), composants de prothèses instrumentées (b), prothèse instrumentée résultante (c)

[D.Fochelet2014].

La [figure I.9](#) montre l'utilisation du polyimide pour la fabrication du Pacemaker (ou stimulateur cardiaque). Le polyimide est utilisé comme un substrat afin de maintenir une excellente flexibilité mécanique avec le mouvement de l'organe. Le Pacemaker est encapsulé par une fine couche de PI pour l'isoler des fluides corporels et tissus, minimisant ainsi les risques de défaillance ou de réponse immunitaire [C.Dagdeviren2014].

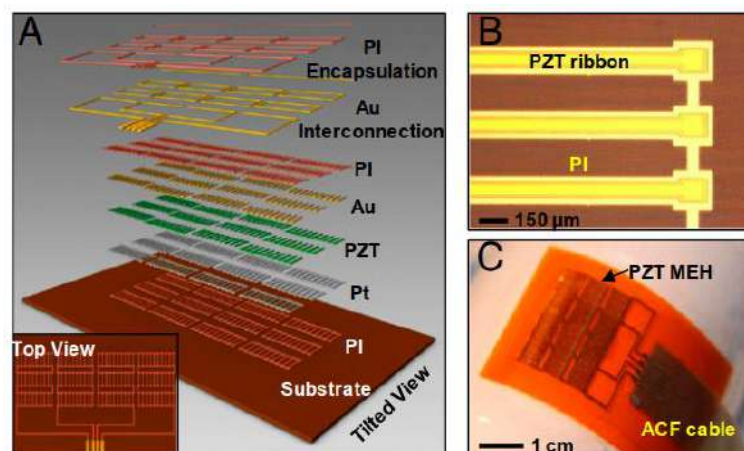


Figure I.9 : Utilisation du PI comme un substrat pour l'encapsulation d'un micro-pacemaker [C.Dagdeviren2014].

Les polyimides sont encore utilisés comme substrat pour un réseau d'électrodes flexibles haute densité dans les enregistrements neuronaux. La complexité d'un tel dispositif est représentée sur la [figure I.10](#), montrant un microsysteme flexible, empilé polymère-métal-polymère, placé sur le cortex visuel d'un chat (les couches d'interconnexion métalliques ont été isolées à l'aide de couches de polyimide) [[J.Viventi2011](#)].

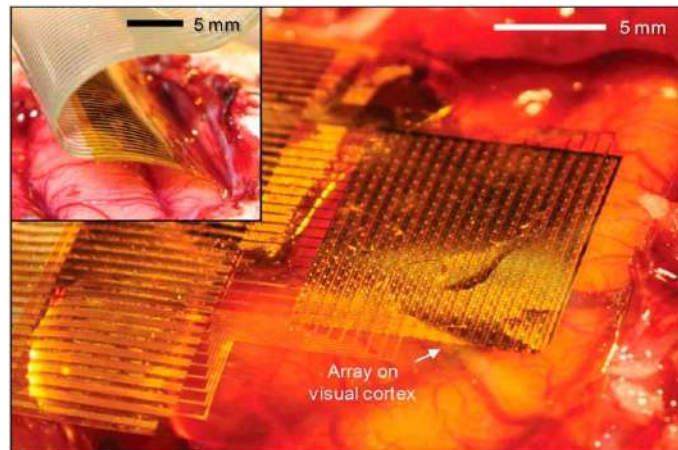


Figure I.10 : Réseau d'électrodes haute densité pour la cartographie de l'activité neuronale : réseau d'électrodes flexibles isolées et encapsulées par des couches de polyimide placées sur le cortex visuel du chat [[J.Viventi2011](#)].

I.3.3. Comportement du polyimide vis-à-vis de l'eau

Le polyimide possède un ensemble unique de propriétés qui le recommandent pour un grand nombre d'applications dans de nombreux domaines industriels. L'aptitude du polyimide Kapton à conserver ses excellentes caractéristiques physiques, électriques et mécaniques dans une plage de température étendue ouvre aux films plastiques de nouvelles possibilités de conception et d'applications. Les deux fonctions principales des polyimides dans les applications électroniques sont la protection de surface des puces (couche de passivation) et des circuits, et l'isolation entre différents niveaux métalliques d'interconnexion électrique [[S.Zelmet2006](#)]. Les polyimides aromatiques sont largement utilisés dans des applications commerciales en tant que biomatériaux [[S.A.JacotaPopescu2008](#)]. Cependant, le problème le plus souvent abordé dans les biomatériaux est celui de la réponse de l'organisme aux implants à long terme. C'est le cas lorsque le PI est utilisé comme un support mécanique ou pour l'encapsulation de prothèses neuronales. En effet, l'environnement aqueux d'un implant suppose des interactions entre la surface du PI, les différents ions et molécules de différentes tailles (sels et protéines) et une certaine quantité d'eau absorbée. La présence de la

molécule d'eau peut être un problème majeur pour la stabilité du PI à long terme car la structure moléculaire du PI contient quatre groupes imides polaires tels que les groupes amine et carbonyle, de nature hydrophiles [B.X.Du2016,Z.Ziari2013,B.X.Du2015] rendant le matériau très sensible à l'humidité [N.R.Tu1999]. Cela provoque une détérioration de ses propriétés électriques et mécaniques entraînant son vieillissement accéléré.

I.3.3.1. L'humidité relative

L'humidité exprime la présence d'un mélange d'air sec (composé d'environ 21 % d'oxygène (O₂), 78.1 % d'azote (N₂) et 0.9 % d'argon (Ar)) et de vapeur d'eau (H₂O) dans l'air ambiant. En général, lorsqu'on parle de mesure d'humidité, on fait allusion au taux d'humidité exprimé en (%) qui est en fait l'humidité relative. La détermination de cette mesure est complexe, car elle est étroitement liée à d'autres grandeurs physiques telles que la température et la pression [H.Kallel2016].

Considérons un volume V d'air humide à la température T . La masse m d'air humide contenu dans ce volume est la somme de la masse m_a d'air sec et celle de la vapeur d'eau m_v .

$$m = m_a + m_v \quad (\text{I.1})$$

La pression totale p ou pression barométrique, est la somme des pressions partielles p_a de l'air sec et celles de la vapeur d'eau p_v .

$$p = p_a + p_v \quad (\text{I.2})$$

L'humidité relative HR (%) de l'air est le rapport de la pression partielle de vapeur d'eau à la pression de vapeur d'eau saturante à la température T .

$$HR (\%) = \frac{p_v}{P_{sat}(T)} \quad (\text{I.3})$$

$P_{sat}(T)$ (pression de vapeur saturante (pression de saturation)) est la pression de vapeur dans un état d'équilibre avec l'eau liquide à la température T . C'est la valeur maximale que peut atteindre la pression partielle p_v de la vapeur à la température T , au-delà il y a condensation.

Selon les valeurs des variables thermodynamiques que sont la pression et la température, l'eau se trouve à l'état solide, liquide ou vapeur (état gazeux). En faisant varier ces variables, il est donc possible de passer d'un état à un autre : on parle de changement d'état ou encore de changement de phase. Les différents changements d'état sont :

- La fusion : c'est le passage de l'état solide vers l'état liquide. Le changement inverse est la solidification.
- La vaporisation : c'est le passage de l'état liquide vers l'état vapeur (ou gazeux). Le changement inverse est la liquéfaction ou condensation liquide.
- La sublimation : c'est le passage de l'état solide vers l'état vapeur. Le changement inverse est la condensation solide.

La [figure I.11](#) montre le tracé de $p = f(T)$ pour le passage de l'état liquide à l'état gazeux.

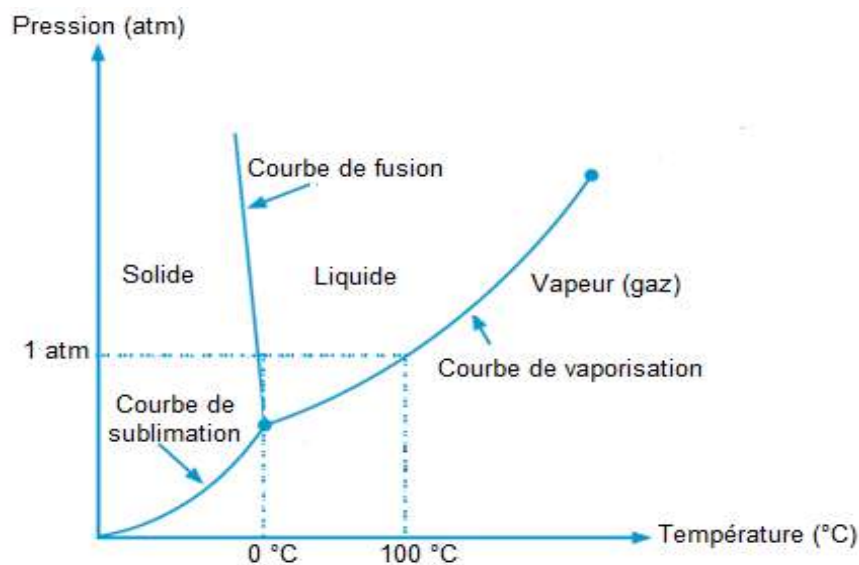


Figure I.11 : Diagramme de phase de l'eau, montrant l'état de l'eau pure en fonction de la température et de la pression [H.Kallel2016].

I.3.3.2. Nature dipolaire de l'eau

Une propriété très importante de l'eau est sa nature polaire. La molécule d'eau forme un angle de $104,45^\circ$ au niveau de l'atome d'oxygène et entre les deux atomes d'hydrogène ([figure I.12](#)). Puisque l'oxygène a une électronégativité plus forte que l'hydrogène, le côté de la molécule d'eau où se trouve l'atome d'oxygène est chargé négativement, par comparaison avec le côté hydrogène. Une molécule avec une telle différence de charge est appelée un dipôle (molécule polaire) [E.Stefanutti2017].

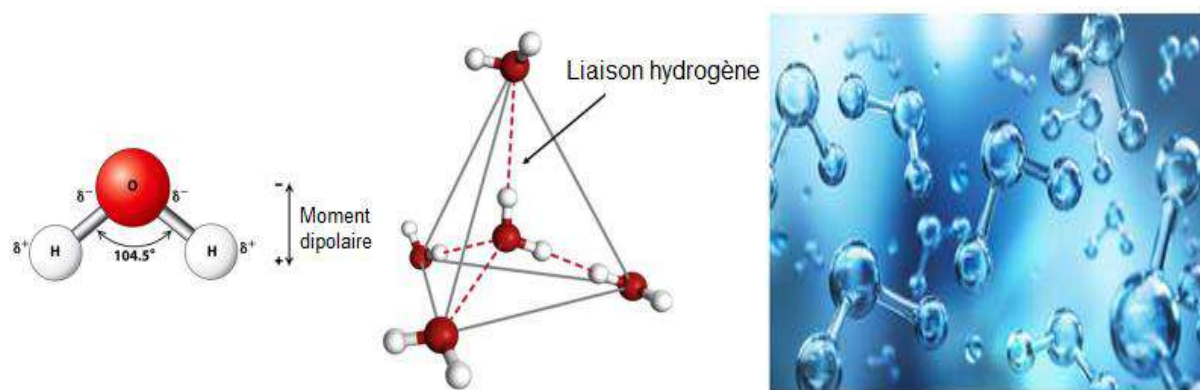


Figure I.12 : Nature dipolaire de l'eau [E.Stefanutti2017].

I.3.3.3. Vieillessement hydrolytique du polyimide

La petite taille et la polarité de la molécule d'eau vont favoriser le vieillissement hydrolytique des polyimides. Il existe deux mécanismes de dégradation du PI en présence d'eau qui influenceront les propriétés finales d'utilisation [V.Girard2011] :

- Le vieillissement physique : mécanisme physique qui modifie les propriétés finales dues au lavage de la microstructure sous l'action de l'eau. L'eau peut extraire les monomères ou le plastifiant ajouté au polymère, par exemple, ce qui va modifier la rigidité finale du polyimide.

Le premier effet physique notable sur le polymère lorsqu'il absorbe de l'eau est son gonflement hydrique (figure I.13), témoin inévitable de la plastification du réseau [A.Simar2014].

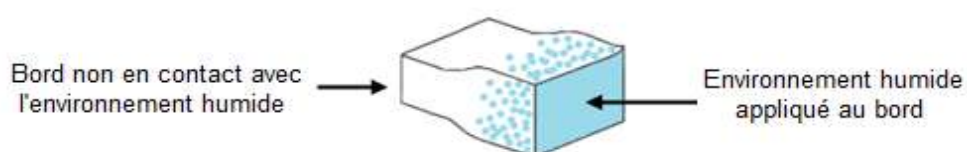


Figure I.13 : Schématisation du gonflement hydrique d'un polymère en présence d'eau.

- Le vieillissement chimique : mécanisme impliquant une modification de la chaîne macromoléculaire qui aura un impact sur les propriétés mécaniques et rhéologiques du PI.

I.3.3.4. Influence de l'humidité sur les propriétés électriques du polyimide

a. Les pertes diélectriques

Durant l'application d'un champ électrique alternatif E de fréquence f , la puissance P par unité de volume d'un diélectrique est donnée par :

$$P = 2\pi\varepsilon_0 E^2 f \operatorname{tg} \delta \cdot \varepsilon \quad (\text{I.4})$$

ε est la constante diélectrique de l'isolant et $\operatorname{tg} \delta$ le facteur de dissipation.

Les valeurs typiques de $\operatorname{tg} \delta$ pour les polyimides sont très faibles et de l'ordre de 10^{-3} . Les pertes diélectriques sont affectées par l'humidité. La valeur de $\operatorname{tg} \delta$ est multipliée par un facteur 3, lorsque le taux d'humidité passe de 0 à 100 % [S.Zelmet2006].

b. La permittivité diélectrique

La permittivité diélectrique ε (ou constante relative) des polyimides varie généralement entre 3 et 4 selon leur structure chimique [S.Zelmet2006]. Généralement, les polymères apolaires présentent un indice de pertes diélectriques faibles et une permittivité relative quasi-constante dans un large domaine de température et de fréquence. Leur formule chimique ne contient que du carbone et de l'hydrogène et s'ils contiennent des atomes électronégatifs tels que le fluor, ces atomes sont placés symétriquement le long de la chaîne carbonés. Les polyimides fluorés ont ainsi une valeur de permittivité souvent inférieure à 3. Par contre, les polymères polaires sont généralement des matériaux isolants possèdent dans leurs molécules en plus du carbone et de l'hydrogène, des atomes généralement électronégatifs tels que : le fluor, le chlore, l'oxygène, l'azote, qui fournissent des dipôles. Ces matériaux possèdent au contraire des polymères apolaires, une permittivité relative et un indice des pertes diélectriques élevés.

La permittivité diélectrique est sensible à la variation du taux d'humidité. Même présente en petite quantité, l'eau dont la permittivité est très élevé (~ 78), peut augmenter significativement la valeur de la permittivité diélectrique du polyimide. Par exemple, Subramanian et *al.* ont montré que la variation de la constante diélectrique relative du polyimide augmente linéairement en fonction de l'humidité relative absorbée [R.Subramanian1991]. Cependant, cet effet peut être minimisé par l'incorporation du fluor. La réduction du caractère hygroscopique peut également être obtenue dans un matériau ne présentant pas de groupements d'oxygène, lesquels ont tendance à se lier aux molécules d'eau par le biais de liaisons hydrogène comme le montre la figure I.14.

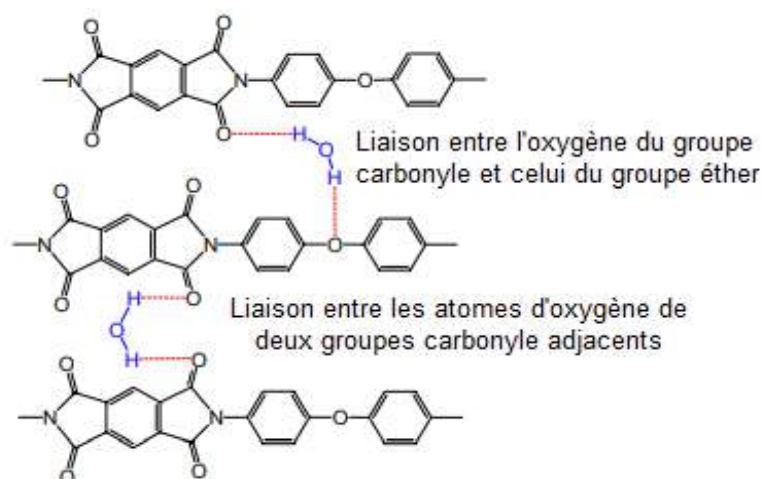


Figure I.14 : Sites préférentiels des molécules d'eau dans un polyimide [S.Zelmet2006].

c. La conductivité électrique

L'absorption de la molécule d'eau en phase vapeur ou liquide affecte la mobilité du polyimide. Bellucci et *al.* ont démontré que la conductivité électrique mesurée du polyimide Kapton augmente dans un environnement humide [F.Bellucci1990].

I.4. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons donné des généralités sur les biomatériaux et les polyimides. Nous avons rappelé les domaines d'applications et les différentes catégories des biomatériaux ainsi que les caractéristiques et les applications biomédicales du polyimide. L'influence de l'humidité relative sur quelques propriétés électriques du polyimide a été présentée.

Références du chapitre I

- [M.E Belgherras2018] M.E. Belgherras, “Comportement mécanique du ciment orthopédique sous chargement dynamique”, Thèse de Doctorat, Université Djellali Liabes Sidi Bel-Abbes, 2018.
- [F.Bellucci1990] F. Bellucci, I. Khamis, S.D. Senturia, R.M. Latanision, “Moisture effects on the electrical conductivity of Kapton Polyimide”, Journal of the Electrochemical Society, Vol. 137, No. 6, pp. 1778-1784, June 1990.
- [C.P.Constantin2019] C.P. Constantin, M. Aflori, R.F. Damian, R.D. Rusu, “Biocompatibility of polyimide” : A Mini-Review, Materials, Vol. 12, No.19, 3177 (27 pages), October 2019.
- [C.Dagdeviren2014] C. Dagdeviren, B.D. Yang, Y. Su, P.L. Tran, P. Joe , E. Anderson and al. “Conformal piezoelectric energy harvesting and storage from motions of the heart, lung, and diaphragm”, Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America (PNAS), Vol. 111, No. 5, pp.1927-1932, February 2014.
- [B.X.Du2015] B.X. Du, Y.G. Guo, “Effect of Surface fluorination on dielectric properties and surface charge behavior of water absorbed polyimide film”, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 22, No. 3, pp. 1369-1375, June 2015.
- [B.X.Du2016] B.X. Du, Z.Y. He, Qiang Du, “Effects of water absorption on surface charge and dielectric breakdown of polyimide/Al₂O₃ nanocomposite films”, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 23, No. 1, pp. 134-141, February 2016.
- [E.Fattal2017] E. Fattal, “Matériaux pour la médecine de demain”, Médecine/Sciences, Vol. 33, No. 1, pp. 9-10, Janvier 2017.
- [D.Forchelet2014] D. Forchelet, M. Simoncini, A. Arami, A. Bertsch, E. Meurville, K. Aminian, P. Ryser, P. Renaud, “Enclosed electronic system for force measurements in knee implants”, Sensors, Vol. 14, pp.15009-15021, August 2014.
- [V.Girard2011] V. Girard, “Amélioration d’un procédé propre de production de poudre de polyamide11”, Thèse de Doctorat, Université de Lorraine, Novembre 2011.
- [J.Giraud2016] L. Giraud, “Interaction et propriétés physico-chimiques de surfaces modèles de biomatériaux”, Thèse de Doctorat, Université de Montréal, Décembre 2016.
- [A.Hardy2018] A. Hardy, “Biomatériaux fonctionnels à base de complexes de polyélectrolytes compactés de type chitosan/alginate : Conception, caractérisation et premières évaluations biologiques”, Thèse de Doctorat, Université de Strasbourg, Septembre 2018.
- [W.Hasenkamp2013] W. Hasenkamp, N. Thevenaz, J. Villard, A. Bertsch, A. Arami, K. Aminian, A. Terrier, P. Renaud, “Design and test of a MEMS strain-sensing device for monitoring artificial knee implants”. Biomedical Microdevices, Vol. 15, No. 5, pp. 831-839, 2013.
- [S.A.JacotaPopescu2008] S.A. Jacota Popescu, “Films minces de dioxyde de titane déposés sur titane par MOCVD : Microstructure et biocompatibilité”, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, Novembre 2008.
- [K.D.Jandt2007] K.D. Jandt, “Evolutions, revolutions and trends in biomaterials science – A perspective”, Advanced Engineering Materials, Vol. 9, No. 12, pp. 1035-1050, 2007.

- [H.Kallel2016] H. Kallel, “Influence de la température et l'hygrométrie sur le comportement instantané du béton”, Thèse de Doctorat, Université de Pau et des Pays de l'Adour, Juillet 2016.
- [K.Y.Kwon2013] K.Y. Kwon, B. Sirowatka, A. Weber, W. Li, “Opto- μ ECoG array : A hybrid neural interface with transparent μ ECoG electrode array and integrated LEDs for optogenetics”, IEEE Transactions on Biomedical Circuits and Systems, Vol. 7, No. 5, pp. 593-600, 2013.
- [C.Li2019] C. Li, M. Cauwe, L. Mader, D. Schaubroeck, M.O. Beeck “Accelerated hermeticity testing of biocompatibility moisture barriers used for the encapsulation of implantable medical devices”, Coatings, Vol. 10, No. 19, pp. 01-13, 2020.
- [H.Mallem2019] H. Mallem, “Etude de l'effet de la température sur les variations du potentiel de surface d'un film de polyimide sous à une décharge couronne”, Thèse de Doctorat, Université Frères Mentouri Constantine 1, Juillet 2019.
- [N.Mansouri2009] N. Mansouri, “Contribution à l'étude du comportement mécanique des prothèses dentaires totales”, Mémoire de Magister, Université de Batna, Novembre 2009.
- [M.D.Mantovani2003] M.D. Mantovani, “Les biomatériaux, l'ingénierie au service de la santé”, Le Médecin du Québec, Vol. 38, No. 5, pp. 93-95, Mai 2003.
- [B.Rubehn2010] B. Rubehn, T. Stieglitz, “In vitro evaluation of the long-term stability of polyimide as a material for neural implants”, Biomaterials, Vol. 31, No. 13, pp. 3449-3458, May 2010.
- [A.Simar2014] A. Simar, “Impact du vieillissement humide sur le comportement d'un composite à matrice organique tissé fabriqué par injection RTM : Mise en évidence d'un couplage entre absorption d'eau et thermo-oxydation de la matrice ”, Thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique (ENSMA) - Poitiers, Décembre 2014.
- [E.Stefanutti2017] E. Stefanutti, “Structural and dynamical studies on confined water”, Thèse de Doctorat, Université Pierre et Marie Curie – Paris VI, Università Degli Studi Roma Tre, Octobre 2017.
- [A.A.Stolov2012] A.A. Stolov, B.E. Slyman, D.A. Simoff, A.S. Hokansson, R.S. Allen, J.P. Earnhardt, “Optical fibers with polyimide coatings for medical applications”, Design and Quality for Biomedical Technologies, Vol. 8215, pp. 82150B, February 2012.
- [R.Subramanian1991] R. Subramanian, M. Pottiger, J.H. Morris, J.P. Curilla, “Effect of moisture on the physical properties of polyimide films”, Materials Research Society (MRS) Online Proceedings Library (OPL), Symposium J – Materials Science of High Temperature Polymers for Microelectronics, Vol. 227, pp. 147-154, 1991.
- [Y.Sun2009] Y. Sun, S.P. Lacour, R.A. Brooks, N. Rushton, J. Fawcett, R.E. Cameron, “Assessment of the biocompatibility of photosensitive polyimide for implantable medical device use”, Journal of Biomedical Materials Research Part A, Vol. 90, No. 3, pp. 648-655, September 2009.
- [A.J.T.Teo2016] A.J.T. Teo, A. Mishra, I. Park, Y.J. Kim, W.T. Park, Y.J. Yoon, “Polymeric biomaterial for medical implants and devices”, ACS Biomaterials Science and Engineering, Vol. 2, No. 4, pp. 454-472, 2016.
- [S.Todros2021] S. Todros, M. Todresc, Andrea Bagno, “Biomaterilas and their biomedical applications : From replacement to regeneration”, Processes (MDPI), Vol.9, 1949 (20pp), October 2021.

- [N.R.Tu1999] N.R. Tu, K.C. Kao, “High-field electrical conduction in polyimide films”, *Journal of Applied Physics*, Vol. 85, No. 10, pp. 7267-7275, May 1999.
- [M.Vert2006] M. Vert, “Polymères et biologie : Biodégradation, bioactivité et applications thérapeutiques biomédicales”, *L'actualité chimique*, No. 300, pp. 36-39, Aout-Septembre 2006.
- [J.Viventi2011] J. Viventi, D.H. Kim, L. Vigeland, E.S. Frechette, J.A. Blanco, Y.S. Kim and al. “Flexible, foldable, activity multiplexed, high-density electrode Array for mapping brain activity in vivo”, *Nature Neuroscience*, Vol. 14, No. 12, pp.1599-1605, November 2011.
- [D.F.Williams1986] D.F. Williams, “Definitions in biomaterials : Proceedings of a Consensus Conference of the European Society for Biomaterials”, Vol. 4, Chester, England, March 3-5, 1986, Amsterdam ; New York : Elsevier, pp. 49-59, 1987.
- [D.F.Williams1992] D.F. Williams, J. Black, P.J. Doherty, Second Consensus Conference on Definitions in Biomaterials, In : *Biomaterial-Tissue Interfaces : Advances in Biomaterials*, Vol. 10. Amsterdam ; New York : Elsevier, pp. 525-533, 1992.
- [D.F.Williams2008] D.F. Williams, “On the mechanisms of biocompatibility”, *Biomaterials*, Vol. 29, No. 20, pp. 2941-2953, 2008.
- [S.Zelmet2006] S. Zelmet, “Etude des propriétés électriques d’un matériau polyimide à haute température : Application a la passivation des composants de puissance en carbure de silicium”, Thèse de Doctorat, Université Toulouse III- Paul Sabatier, Mars 2006.
- [Z.Ziari2008] Z. Ziari, “Etude de l’effet d’un traitement par plasma froid sur les propriétés de surface d’un film de polymère”, Thèse de Doctorat, Université de Constantine, 2008.
- [Z.Ziari2013] Z. Ziari, I. Nouicer, S. Sahli, S. Rebiai, A. Bellel, Y. Segui, P. Raynaud, “Chemical and electrical properties of HMDSO plasma coated polyimide”, *Vacuum*, Vol. 93, pp. 31-36, July 2013.

Chapitre I

**Généralités sur la décharge
couronne à pression
atmosphérique**

Chapitre II : Généralités sur la décharge couronne à pression atmosphérique

II.1. Introduction

Durant ces deux dernières décennies, une attention particulière a été accordée à l'étude de l'amorçage et du développement de la décharge électrique dans un gaz. La décharge électrique est un phénomène physique se produisant dans les gaz lorsqu'on leur applique un champ électrique suffisamment intense entre deux électrodes. Ce gaz devient alors plus ou moins conducteur. Les décharges électriques peuvent être classifiées suivant plusieurs critères : la pression, la caractéristique courant-tension, la nature du gaz, la configuration des électrodes, etc... [B.Benamar2008]. Parmi les décharges électriques à pression atmosphérique, on trouve la décharge couronne. Cette dernière est un procédé pouvant conduire à la création d'un plasma. Elle apparaît entre deux électrodes asymétriques par l'application d'un champ électrique intense et pour une pression du gaz pouvant varier de quelques torrs à plusieurs atmosphères. Aujourd'hui la décharge couronne est le type de décharge le plus connu et l'un des plus importants du point de vue industriel. C'est une technique qui permet de modifier les surfaces de matériaux diélectriques et éventuellement d'y implanter des charges électrostatiques, ce qui permet d'élargir le champ d'utilisation de ces matériaux.

Dans ce chapitre, nous présenterons en premier lieu la charge d'espace dans les matériaux diélectrique. Nous présenterons ensuite la décharge couronne comme moyen de chargement électrostatique de polymères en mettant l'accent sur les différents types de la décharge couronne, la caractéristique courant tension d'une décharge couronne dans l'air à pression atmosphérique et le mécanisme de formation d'une décharge couronne. Nous présenterons en second lieu la description de quelques processus physiques responsables du déclin de potentiel de surface ainsi que les théories des bandes d'énergie des polymères et la nature des pièges.

II.2. Charge d'espace dans les matériaux diélectriques

La charge d'espace correspond à une accumulation de porteurs de charges dans certaines régions de l'isolant lorsqu'il est soumis à de fortes contraintes électrique, thermique ou mécanique (champ électrique élevé, irradiation, rayonnement solaire UV, variation de température, efforts et frottements mécaniques importants). Ces charges d'espace comportent

l'ensemble des charges positives ou négatives, piégées dans un isolant, ce qui inclut les charges de surface et de volume [T.T.Anh2011,M.V.Salazar2018].

La charge d'espace a pour origine [M.Q.Hoang2014] :

- des charges intrinsèques : ions ou charges électroniques contenus initialement dans l'isolant, ou générés soit par électrodissociation d'espèces neutres, soit par ionisation des constituants du solide par interaction avec des rayonnements énergétiques ou des particules énergétiques ;
- des charges extrinsèques : charges électroniques injectées à partir des électrodes, ou ions qui diffusent des électrodes vers l'isolant. Elles peuvent aussi résulter du contact entre la surface libre du diélectrique et un plasma gazeux ou un faisceau de particules chargées.

L'accumulation de charges électrostatiques générées sur les surfaces des matériaux diélectriques est un facteur critique pour le vieillissement et le claquage des matériaux isolants. Ces charges cumulées peuvent engendrer de graves accidents au niveau des installations industrielles et entraîner des dégâts économiques importants et des pertes humaines [M.Q.Hoang2014].

II.3. Chargement électrostatique par décharge couronne

Le dépôt de charges sur la surface des isolants polymères peut être réalisé par plusieurs procédés : décharge couronne, triboélectricité, piézoélectricité ou par faisceaux d'électrons. Dans la plupart des applications électrostatiques actuelles, le chargement est réalisé par décharge couronne, en raison de leur simplicité, sureté et faible coût.

Les premières études sur les décharges couronne ont été menées par Townsend au début du 20^e siècle. Cette méthode est pratique car elle permet de déposer de manière contrôlée une quantité de charges sur la surface des matériaux diélectriques. Plusieurs travaux ont été réalisés théoriquement et expérimentalement sur la décharge couronne du fait de sa grande utilité dans différents domaines tels que [B.Tabti2014,Z.Ziari2008] :

- la séparation électrostatique de matières conductrices et non-conductrices ;
- les générateurs d'ozone pour le traitement de l'eau et le contrôle des odeurs ;
- les photocopieurs et les électrets ;
- la modification des propriétés de surfaces des polymères ;
- la neutralisation et la charge dans les mélieux non tissés.

La décharge couronne, fait partie des plasmas froids non thermiques créés à la pression atmosphérique. C'est une décharge électrique auto-entretenue non destructive [J.M.Plewa2017]. Elle apparaît entre deux électrodes asymétriques dont au moins une d'elles présente un faible rayon de courbure. La dissymétrie des électrodes conduit à un champ électrique fortement inhomogène et suffisamment élevé dans l'espace inter-électrodes. La décharge couronne existe sous différentes formes et dépend de la configuration géométrique des électrodes. Les configurations les plus courantes pour obtenir la décharge couronne sont le fil-plan, pointe-plan, couteau/cylindre et fil/cylindre (figure II.1).

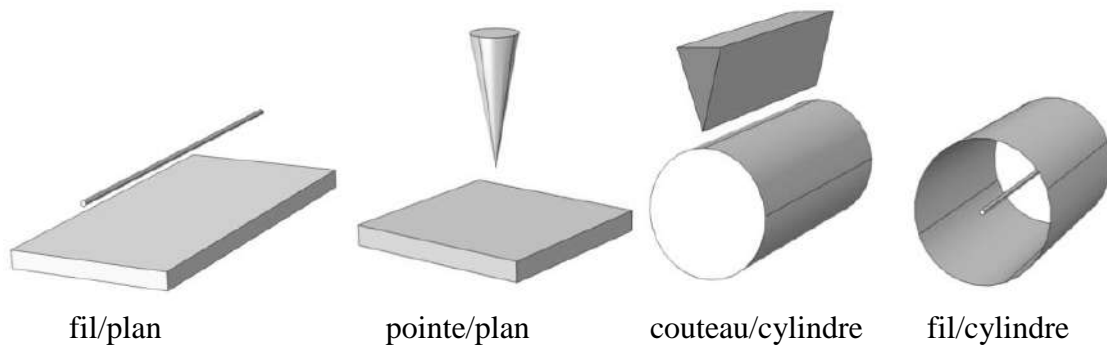


Figure II.1 : Configurations d'électrodes pour la génération de la décharge couronne [J.M.Plewa2017].

La figure II.2 montre une décharge couronne typique de pointe à plan. Cette configuration est caractérisée par une zone de fort champ autour de la pointe où sont créées les espèces chargées (zone ionisée) et d'une zone de dérive ou de diffusion où se déplacent les particules chargées [G.Quinio2005].

L'exposition directe de la surface de l'échantillon de polymère à une pointe de décharge ne contrôle pas le niveau de la charge générée ainsi que l'uniformité de la répartition des charges déposées sur des films de polymères. Pour résoudre ce problème, une configuration courante pointe-grille est utilisée. Cette grille, interposée entre la pointe et l'échantillon (figure II.3), collecte les ions de la région de dérive et permet également leur passage vers la surface de l'échantillon à charger sous l'effet du champ électrique. Dans ce travail, la décharge couronne configuration pointe-grille-surface sera utilisée pour le chargement des films de polyimides afin d'étudier l'influence de l'humidité relative sur l'écoulement de charges électrostatiques.

L'avantage de la décharge couronne est de pouvoir fonctionner avec tous les types d'alimentation électrique, par contre la difficulté principale rencontrée avec ce type de

décharge est la transition à l'arc. Cette transition est accompagnée par une forte augmentation de courant circulant dans la décharge [H.Mellouki2019].

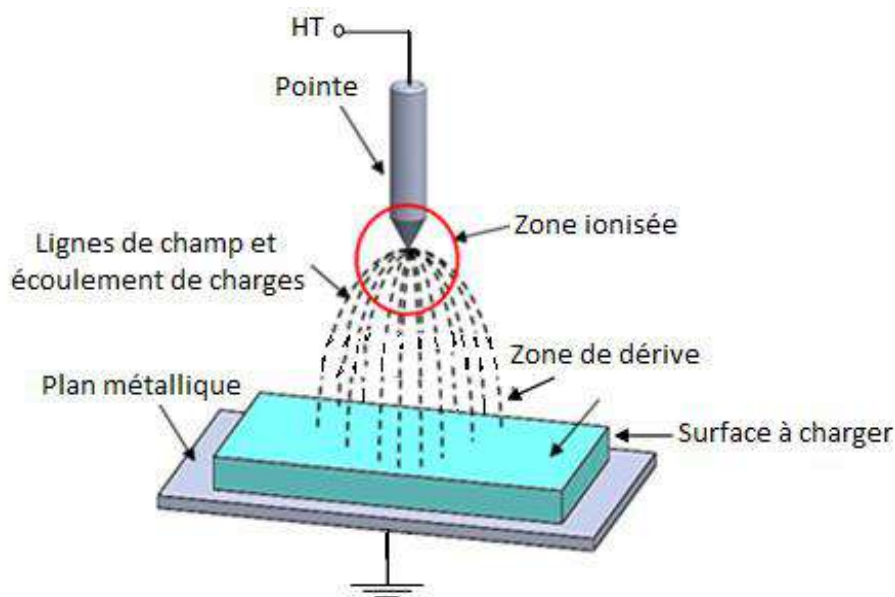


Figure II.2 : Zone d'ionisation et de dérive dans la décharge couronne configuration pointe-plan.

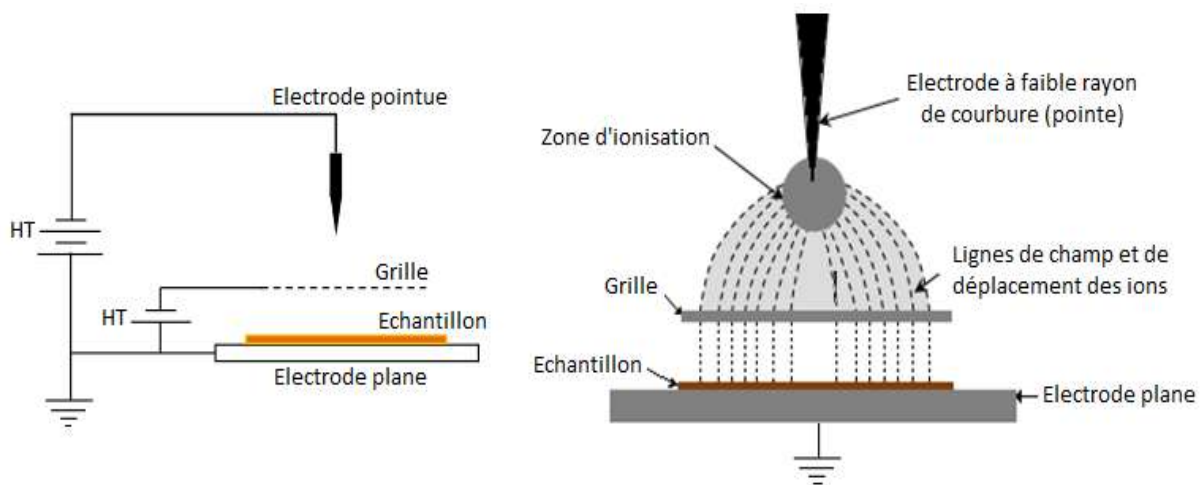


Figure II.3 : Dispositif à triode (configuration pointe-grille-surface) de chargement par effet couronne.

II.3.1. Différents types de la décharge couronne

Grâce au moyen de décharge couronne, il est possible de déposer des charges aussi bien positives que négatives selon la polarité de l'électrode de faible rayon de courbure (pointe). Si elle est positive, on parle d'une décharge couronne positive, sinon, d'une décharge couronne négative. Du fait de la différence de masse entre les électrons (négatifs) et les ions (positifs),

la physique de ces deux types de décharge couronne est radicalement différente [J.M.Plewa2017,J.C.Matéo-Vélez2006].

II.3.1.1. Décharge couronne positive

Une décharge couronne positive est celle qui se produit entre deux électrodes asymétriques, où une tension positive élevée est appliquée à l'électrode active et l'électrode plane est reliée à la terre. Dans ce cas, le champ électrique autour de la pointe est suffisamment élevé pour provoquer une ionisation du gaz (figure II.4). Les électrons germes situés au voisinage de la pointe vont être accélérés vers la pointe. Autour de celle-ci, se développe une région de forte ionisation (zone active) : zone en pointillé sur la figure II.4. Les ions positifs ainsi créés sont repoussés par l'anode sous l'effet des forces de coulomb et vers une région de faible champ électrique. Cette zone unipolaire, puisqu'il n'y a que des ions positifs, est appelée zone de dérive [A.Labergue2005].

Dans l'air ambiant, les espèces dominantes, en décharge positive, sont des ions hydratés de formule générale $(\text{H}_2\text{O})_n\text{H}^+$, où n est un entier qui augmente avec le taux d'humidité relative. À faible taux d'humidité, d'autres ions deviennent dominant, tels que $(\text{H}_2\text{O})_n\text{NO}^+$ et $(\text{H}_2\text{O})_n(\text{NO}_2)^+$ [Z.Ziari2008].

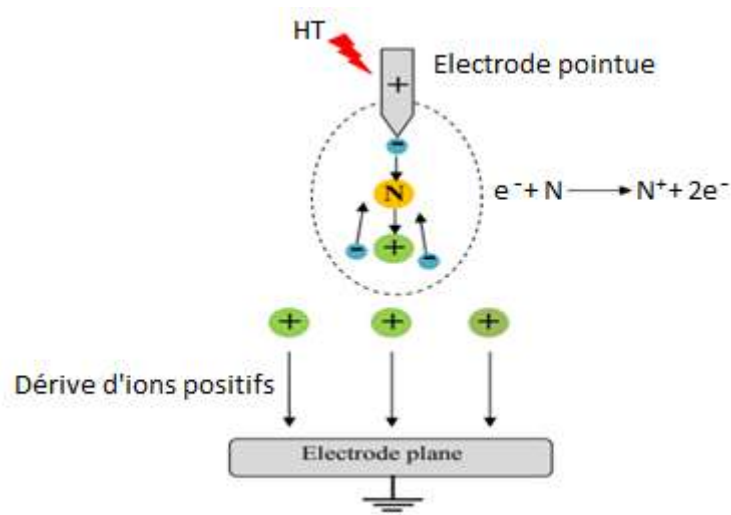


Figure II.4 : Décharge couronne positive pour une configuration pointe-plan.

II.3.1.2. Décharge couronne négative

Lorsque la pointe est portée par une tension négative, une zone d'ionisation autour de la pointe est créée. Les ions positifs produits dans la zone d'ionisation autour de la pointe, sont attirés dans le sens du champ et se précipitent sur la pointe (figure II.5). Des électrons sont extraits de la cathode par choc, chaque électron ainsi libéré produit une nouvelle avalanche

qui s'en dégage. Les électrons et les ions négatifs sont repoussés par l'électrode sous tension vers la zone où le champ électrique est faible (zone de dérive) [A.Nadjem2018]. En présence d'un gaz électronégatif (cas de l'air), lors de leur mouvement, les électrons s'attachent aux molécules électronégatives et des ions négatifs sont formés dans la zone de dérive. L'avalanche électronique se développe de l'électrode vers le plan de masse, elle s'arrête à une distance où le champ n'est plus suffisant pour assurer l'ionisation du gaz [A.Bouarouri2014].

En décharge couronne négative, en présence d'humidité, les ions les plus déposés sont : CO_3^- , CO_4^- , O_2^- et O_3^- ainsi que d'autres ions hydratés $(\text{H}_2\text{O})_n\text{CO}_3^-$ [Z.Ziari2008].

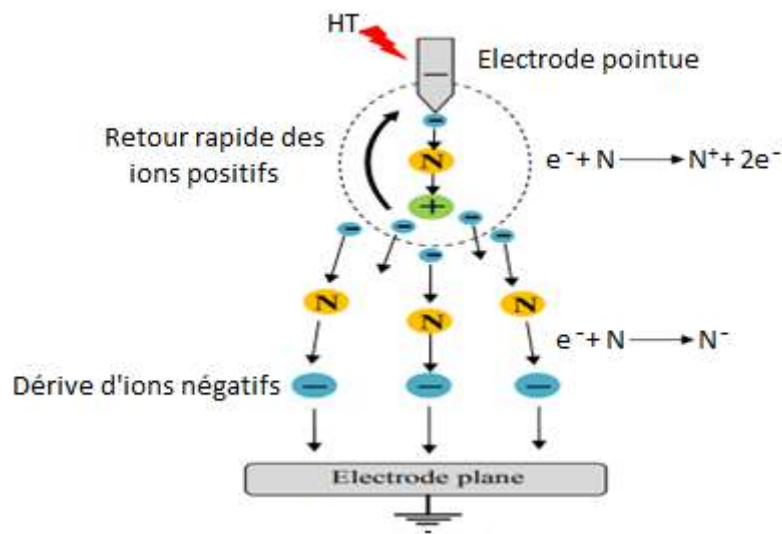


Figure II.5 : Décharge couronne négative pour une configuration pointe-plan.

II.3.2. Caractéristique courant-tension de la décharge couronne

Sous l'influence du champ électrique appliqué entre deux électrodes, toutes les charges électriques ainsi créées vont se déplacer dans l'espace inter-électrodes et générer un courant électrique, le courant de décharge. La figure II.6 montre le comportement du courant de décharge en fonction de l'augmentation de la tension appliquée. La courbe de cette figure permet de distinguer quatre régimes régissant la décharge couronne [A.Labergue2005].

✚ **Régime I :** la décharge n'est pas auto-entretenu. Le courant est très faible ($\leq 10^{-12} \text{ A/cm}^{-2}$), dû à la collection des espèces chargées présentes naturellement dans le milieu. Ces espèces sont produites par l'impact de rayons cosmiques ou de particules issues de la désintégration spontanée de certains atomes (radioactivité naturelle) sur le gaz présent dans l'espace inter-électrode. Dans ce cas, le champ électrique est trop faible pour assurer l'avalanche électronique.

- ✚ **Régime II** : lorsque le potentiel extérieur appliqué atteint une valeur de seuil V_0 , le champ électrique est suffisamment important pour générer des avalanches électroniques. Le courant électrique mesuré augmente très fortement pour une très faible variation de la tension appliquée. Cependant, ce courant reste toujours faible ($\leq 10^{-9} A/cm^{-2}$) et on parle d'une décharge non auto-entretenu.
- ✚ **Régime III** : ce régime correspond à une décharge auto-entretenu. A partir d'un certain courant, les streamers apparaissent, ce qui correspond au seuil de la décharge couronne.
- ✚ **Régime IV** : ce régime correspond à un régime de l'arc au-delà d'une tension appliquée V_r . Le courant de décharge devient très important et la tension aux bornes des électrodes chute rapidement.

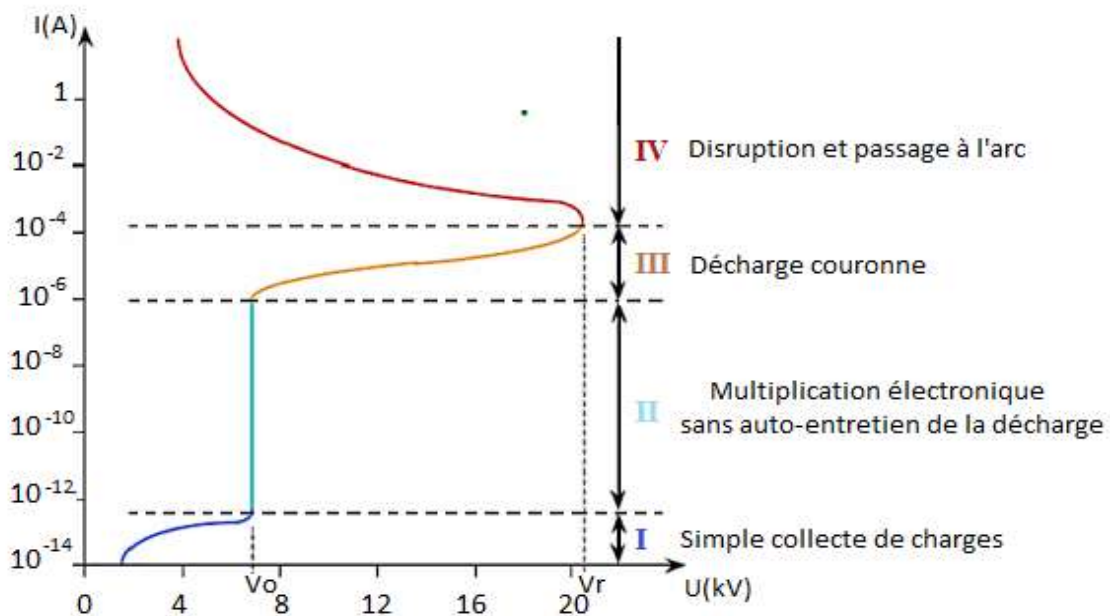


Figure II.6. Caractéristique courant-tension d'une décharge couronne dans l'air à pression atmosphérique [A.Labergue2005].

II.3.3. Mécanisme de formation d'une décharge couronne

Les processus microscopiques présents dans la décharge couronne sont variés et très complexes. Ils conduisent à un étalage de régimes distincts du comportement de la décharge. Le comportement d'une décharge dépend de plusieurs paramètres (pouvant influencer le seuil et les caractéristiques de la décharge couronne) [B.Benamar2008,A.Bouteffaha2015] :

- ✓ paramètres électriques tels que la nature et la polarité de la tension appliquée à l'électrode active (tension continue ou alternative) ;

- ✓ paramètres géométriques tels que la forme et les dimensions des électrodes ainsi que la distance inter-électrodes ;
- ✓ paramètres physiques, liés à la nature du gaz inter-électrodes, à sa densité, à sa pression, à sa température et à sa teneur en vapeur d'eau et impuretés. Les matériaux constituant les électrodes jouent également un rôle non négligeable.

L'existence d'une décharge électrique dépend de la possibilité de créer des particules chargées à partir des atomes ou molécules neutres constituant ces gaz.

II.3.3.1. Processus de production des espèces chargées

L'amorçage de la décharge couronne dans un espace gazeux commence par une série d'avalanches électroniques au voisinage de la pointe. La condition d'existence d'une décharge est la présence des particules chargées (électrons germes) dans le gaz et l'application d'une tension suffisamment élevée entre les électrodes. Ces électrons germes présents dans le milieu gazeux sont générés principalement par l'irradiation par rayonnements cosmiques ou par les processus de radioactivité naturelle (7 à 20 électrons par cm^3/s sont produits dans l'air à la pression atmosphérique) [A.Abahazem2009]. En absence de champ électrique, les électrons créés sont consommés par attachement ou recombinaison dans le gaz. Les densités d'électrons restent donc très faibles du fait du nombre important de collisions à la pression atmosphérique [M.N.Meziane2011].

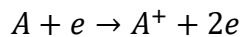
La présence des particules chargées au sein d'un espace gazeux entraîne une augmentation des interactions que peut subir une particule. Lors de leur mouvement, qu'il soit à leur agitation thermique ou à un phénomène de transport tel que la convection ou la dérive dans un champ électrique, les interactions peuvent les amener à collisionner avec des particules avoisinantes. Deux types de collisions sont distingués : élastiques ou inélastiques. Dans les chocs élastiques, les particules sont simplement déviées avec échange de quantité de mouvement et d'énergie cinétique. Par contre, dans les chocs inélastiques, l'énergie interne des particules change. L'énergie de la particule incidente, dans ce cas, est suffisante pour que la particule heurtée passe à un niveau excité plus haut ou soit ionisée. Les chocs inélastiques sont donc la source d'un nombre important de réactions physico-chimiques qui vont alors modifier les propriétés macroscopiques de gaz [G.Quinio2005,A.Labergue2005].

Les principaux mécanismes régissant la génération des porteuses de charges dans les gaz sont l'ionisation qui tend à augmenter leur densité et l'attachement et la recombinaison qui tend à la réduire [A.Bouteffaha2015].

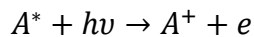
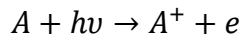
a. Ionisation

Dans leur état normal, les gaz sont des isolants électriques. En effet, ils ne contiennent que des molécules neutres. Cependant, lorsqu'il leur est appliqué un champ électrique assez fort, ils deviennent conducteurs. Il se produit des décharges électriques, avec apparition d'électrons et d'ions libres. L'ionisation d'un atome peut se produire selon plusieurs processus :

- Collision inélastique où l'énergie de la particule incidente (électron ou ion) est suffisante pour extraire un électron à l'atome :



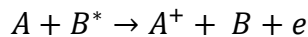
- Photo ionisation à partir de l'UV profond :



A^* : état excité de la molécule.

Pour parvenir à ioniser une molécule, le photon doit posséder une énergie $h\nu$ supérieure à l'énergie d'ionisation de la molécule.

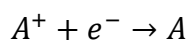
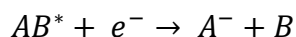
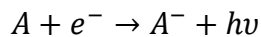
- Effet Penning par collision des métastables :



B^* : atome excité par l'énergie libérée lors de l'attachement de l'électron avec l'atome A .

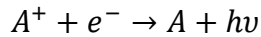
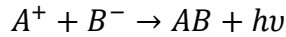
b. Attachement d'électrons

Le phénomène d'attachement se produit quand un électron rentre en collision avec un atome ou une molécule neutre du gaz pour former un ion négatif. L'attachement électronique est d'autant plus important que la molécule présente une plus grande affinité électronique. Le processus d'attachement des électrons peut se produire comme suit :



c. Recombinaison

C'est la neutralisation d'un ion positif par capture d'un ion négatif suivant le schéma ci-dessus :



Le [Tableau II.1](#) représente quelques réactions chimiques qui expriment les phénomènes résultant quand on polarise l'air par une tension (ionisation, attachement et recombinaison) [P.Seimandi2010].

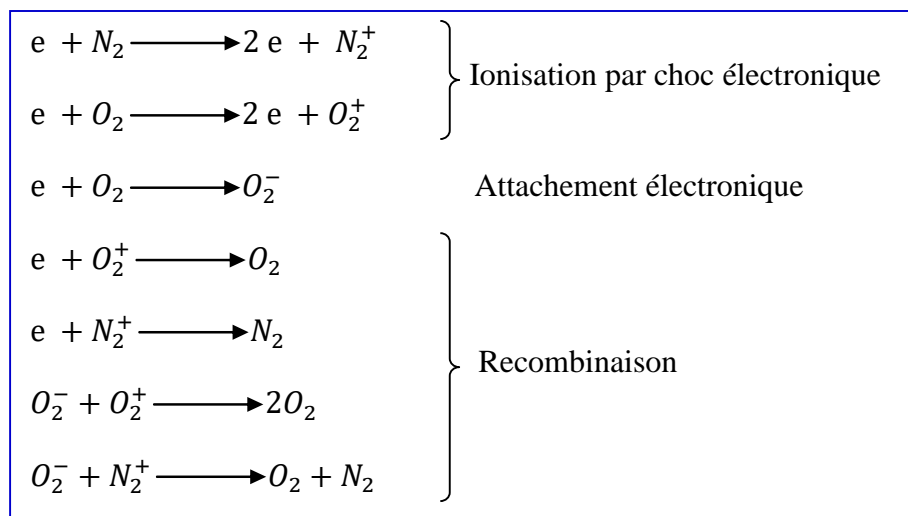


Tableau II.1 : Les réactions chimiques considérées.

II.3.2.2. Mécanisme de streamer

Dans une décharge couronne positive à pression atmosphérique, le streamer positif se propage en direction de la cathode. Ce streamer est une onde d'ionisation se propageant de l'anode vers la cathode c'est-à-dire dans le sens inverse du mouvement des électrons soumis au champ Laplacien.

a. Avalanche électronique

A partir d'une certaine tension seuil appliquée sur la pointe, les électrons libres (électrons germes) présents naturellement dans le gaz sont accélérés par le champ électrique externe appliqué en direction de la pointe (anode). Ces électrons acquièrent une énergie cinétique supérieure au seuil d'ionisation des espèces majoritaires du gaz entre deux collisions. Ils ionisent donc les molécules du gaz et produisent ainsi des nouveaux électrons

(chaque collision ionisante permet la formation d'un nouvel électron, qui lui-même est accéléré, participant à son tour à l'ionisation d'un neutre [J.C.Matéo-Vélez2006]). La répétition de ce processus permet une croissance exponentielle du nombre d'électrons et d'ions positifs (figure II.7.a). C'est le phénomène de l'avalanche électronique [A.Abahazem2009,S.Kacem2011].

Les électrons ayant une masse beaucoup plus faible que les molécules du gaz, sont beaucoup plus mobiles que les ions créés dans les avalanches. En raison de cette différence de masse et sous un champ extérieur, les électrons vont dériver beaucoup plus vite que les ions [A.Abahazem2009] (figure II.7.b). Cette séparation entre charges positives et négatives engendre la création d'une charge d'espace qui peut être considérée comme un dipôle : les électrons sont en tête d'avalanche alors que les ions positifs restent en queue [R.AbdJelil2010]. Ce dipôle génère son propre champ électrique (induit) qui s'oppose au champ appliqué, et qui est d'autant plus intense que l'avalanche se multiplie (figure II.7.c) [S.Kacem2011,R.AbdJelil2010].

La multiplication électronique peut s'étudier quantitativement à partir de la connaissance du coefficient (α), dit "premier coefficient de Townsend" et qui représente le nombre d'électrons (ou d'ions positifs) créés par un électron par unité de longueur dans la direction du champ. A température constante, Townsend a déduit l'expression approchée de coefficient (α) suivante [Y.Bourek2016].

$$\alpha = A \cdot p \cdot e^{-\frac{B \cdot p}{E}} \quad (\text{II.1})$$

où p est la pression du gaz et E le champ électrique appliqué. Les coefficients A et B sont liés aux propriétés du gaz.

L'apparition d'un électron primaire au niveau de la cathode se traduit par l'arrivée de $e^{\alpha \cdot d}$ électrons au niveau de l'anode. La relation de Townsend s'écrit alors :

$$I = I_0 e^{\alpha \cdot d} \quad (\text{II.2})$$

où I est le courant (A), I_0 est le courant initial dû aux électrons primaires (A), d est la distance inter-électrodes (m) et α le premier coefficient de Townsend (m^{-1}).

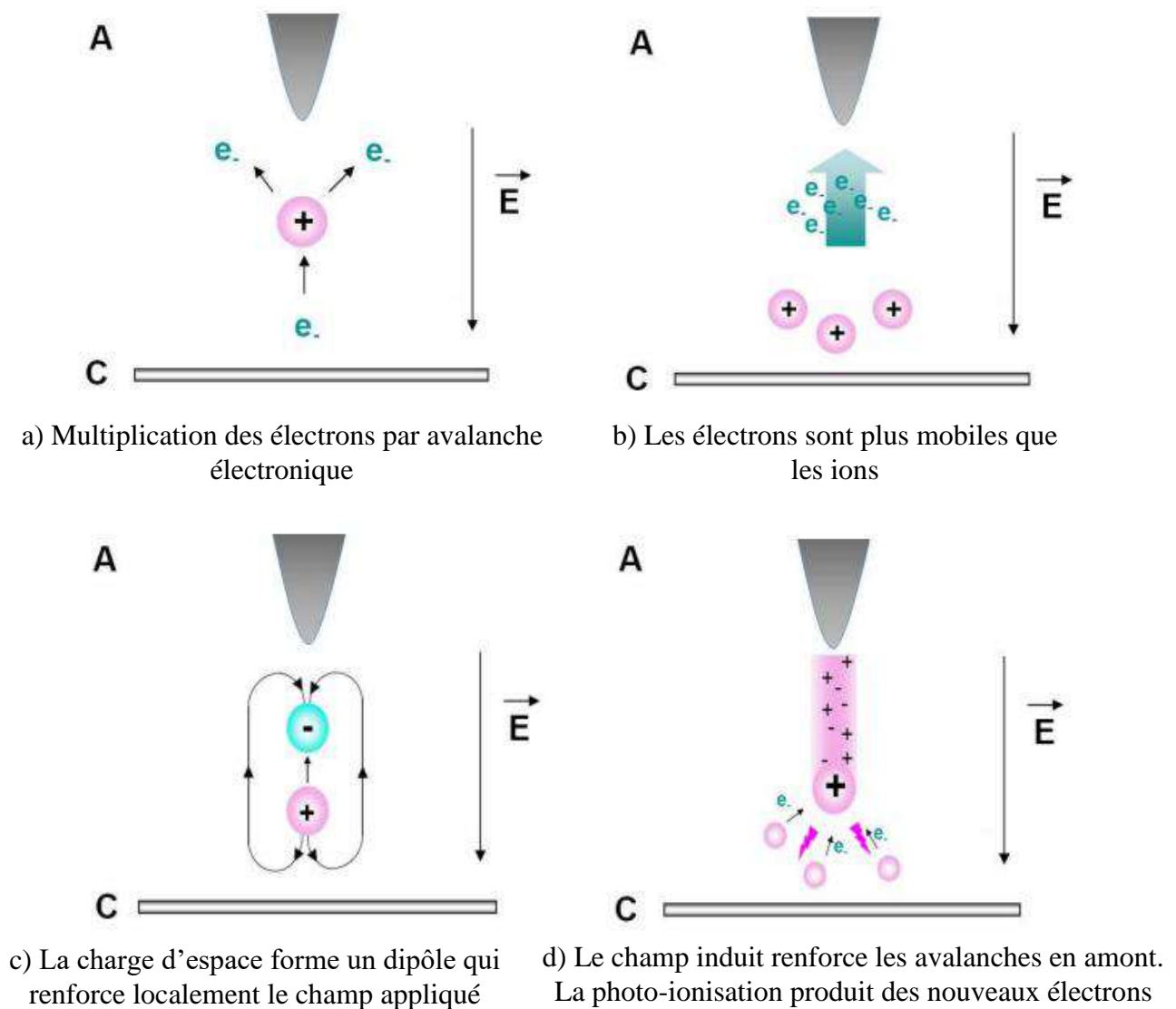


Figure II.7 : Schématisation des étapes de formation et propagation de streamer

[S.Kacem2011].

b. Transition avalanche streamer et propagation

Pour que l'avalanche électronique puisse se transformer en streamer, il faut que le nombre de paires électrons-ions formées au voisinage de la pointe doit atteindre une valeur d'environ 10^8 (valeur définie par des critères donnés dans la littérature [A.Abahazem2009]). Ceci est équivalent à ce que le champ induit par le dipôle soit de même ordre de grandeur que le champ électrique externe appliqué. Dans ces conditions, la zone de séparation de charge va se propager vers le plan dans le sens inverse du déplacement naturel des électrons (qui est celui de la cathode (pointe) vers l'anode (plan)), créant ainsi une onde d'ionisation, appelée streamer [A.Abahazem2009]. La charge d'espace positive modifie la répartition du champ électrique qui devient maximum non plus sur la pointe mais juste devant la charge d'espace

ionique. Dans ce cas, le streamer peut donc se propager par l'effet de son propre champ dans l'espace inter-électrodes [M.N.Meziane2011].

La propagation du streamer est principalement causée par des phénomènes de photo-ionisation et d'avalanches secondaires (figure II.8). Les électrons accélérés par le champ électrique excitent par collision des atomes du gaz environnant qui reviennent à leur état fondamental avec émission des photons. Si ces photons ont une énergie inférieure à l'énergie d'ionisation des atomes du gaz environnant, ils peuvent être absorbés par ces atomes avant d'être émis de nouveau. Si leur énergie est supérieure à l'énergie d'ionisation des atomes du gaz, de nouveaux électrons peuvent être libérés [Y.Bourek2016]. Lorsque ces électrons germes sont proches de la queue de l'avalanche primaire, ils vont être accélérés par le champ de charge d'espace important. Ils vont se diriger vers les ions positifs déclenchant sur leur passage des nouvelles avalanches électroniques dites avalanches secondaires. Ce processus répété va ainsi permettre une progression rapide du streamer entre les deux électrodes [S.Kacem2011]. Le développement du streamer s'arrête lorsque le front d'ionisation a atteint la cathode.

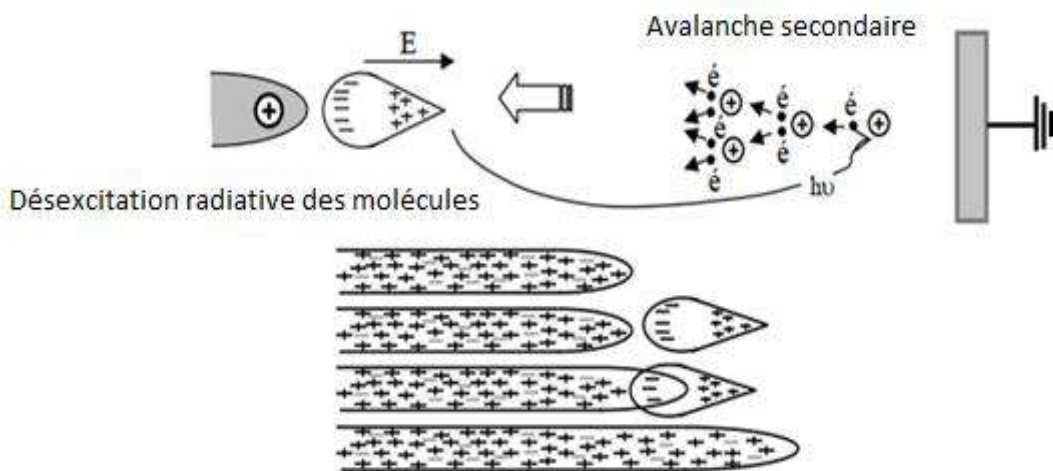


Figure II.8 : Mécanisme de propagation du streamer par photo-ionisation.

II.3.2.3. Passage à l'arc électrique

Le streamer laisse derrière lui un canal conducteur formant un pont entre les deux électrodes lorsqu'il atteint le plan. Le champ réduit est faible dans le canal, l'attachement est dominant en comparaison de l'ionisation, ce qui provoque une diminution du courant. Lorsqu'on augmente la tension, les électrons résiduels non combinés gagnent de l'énergie et peuvent ioniser les neutres dans le canal de micro-décharge et par conséquent, la densité en électrons et le courant augmentent. Lorsque l'on augmente encore la tension (c'est-à-dire la

valeur du champ réduit dépasse le champ critique (champ pour lequel les coefficients d'ionisation α et d'attachement électroniques η sont égaux)), les streamers se développent à des vitesses très élevées vers la cathode. Lorsque la zone cathodique est atteinte, le champ électrique s'intensifie, ce qui provoque l'extraction forte d'électrons et le passage à l'arc [A.Abahazem2009].

II.3.2.4. Seuil de déclenchement d'une couronne dans l'air

Les décharges couronnes ne peuvent s'établir que si le champ électrique E_o créé par le dispositif est suffisant près de l'électrode active. En delà d'une certaine valeur critique du potentiel appliqué, la décharge ne se produit pas. En 1929, Peek a découvert la formule empirique (II.3) donnant la valeur seuil du champ électrique permettant le déclenchement d'une couronne dans l'air [J.C.Matéo-Vélez2006] :

$$E_o = 31\delta\left(1 + \frac{0.308}{\sqrt{\delta r}}\right) \text{ kV/cm} \quad (\text{II.3})$$

où δ est le rapport de la masse volumique de l'air par rapport à celle obtenue dans les conditions $P = 760 \text{ Torr}$ et $T = 300 \text{ K}$, r est le rayon de courbure de l'électrode active exprimé en cm .

II.4. Processus physiques responsables du déclin de potentiel de surface

Les études du déclin de potentiel de surface trouvent leurs importances dans de nombreuses applications électriques notamment dans la détermination des propriétés électriques des matériaux diélectriques, la conductivité surfacique des isolants et la caractérisation de l'aptitude d'un matériau isolant à évacuer une charge électrique déposée sur sa surface. Le déclin de potentiel de surface est un facteur clé lors de l'examen du type d'isolant pouvant être utilisé dans les équipements de haute tension [H.Mellouki2019].

Le déclin de potentiel de surface dans un échantillon chargé implique un certain nombre de processus physiques. Ces mécanismes peuvent exister séparément ou coexister avec un ou plusieurs autres mécanismes avec une prédominance de l'un par rapport aux autres. D'après les résultats rapportés dans la littérature, les principaux mécanismes responsables de la décroissance du potentiel de surface des matériaux isolants sont :

- polarisation de l'échantillon ;
- conduction de surface ;
- neutralisation par le gaz ;

- phénomène piézoélectrique ;
- injection de charges.

La [figure II.9](#) résume schématiquement les différents processus pouvant participer au déclin du potentiel de surface.

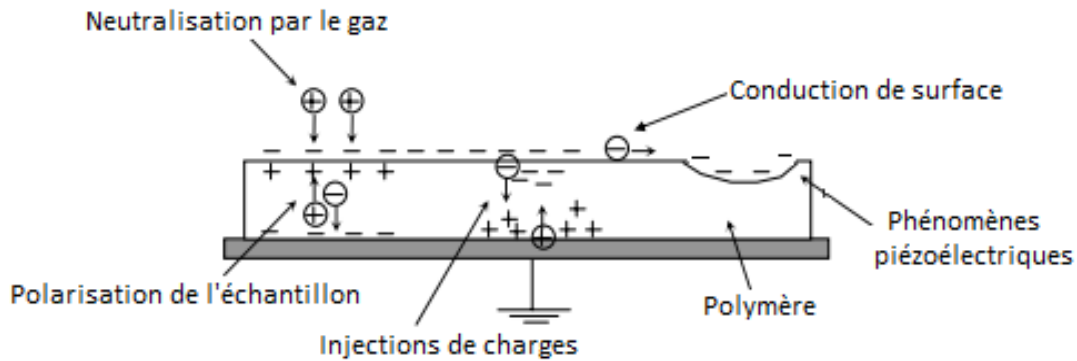


Figure II.9 : Différents processus pouvant contribuer au déclin du potentiel de surface.

II.4.1. Polarisation de l'échantillon

Plusieurs études ont montré que les phénomènes de polarisation sont responsables du déclin de potentiel de surface [M.Karadjian20018].

La charge déposée sur la surface de l'isolant modifie le champ existant dans le matériau. Sous l'action du champ électrique créé par ces charges surfaciques, des dipôles s'orientent sous ce champ ; les dipôles les plus proches de la surface s'orientent de telle manière qu'ils viennent compenser la charge surfacique. Ces charges ne peuvent se déplacer que sur une distance de l'ordre de grandeur d'une molécule. Chaque molécule présente alors un dipôle.

Selon Llovera et *al.* [P.Llovera2004], deux phénomènes physiques peuvent être théoriquement responsables du retour de potentiel : l'injection de charges et la polarisation dipolaire lente. La comparaison entre le déclin et le retour de potentiel de surface permettra de vérifier la contribution du phénomène de relaxation dipolaire dans le processus du déclin de potentiel.

II.4.2. Conduction de surface

Dans certaines conditions, la décroissance du potentiel de surface peut être expliquée par la dominance de la conduction de surface dans les matériaux diélectriques. Cette conduction est liée aux propriétés de la surface et à la valeur du champ électrique tangentiel. Elle est observée surtout dans les cas d'échantillons épais vieilliss par décharges couronnes.

Les charges se déplacent sur les couches primaires de la surface. Lorsque la surface d'un isolant est soumise à la décharge couronne pendant un certain temps, il apparaît une modification rapide et importante des propriétés de la surface [Z.Ziari2008,K.Rouagdia2015]. Les relevés de profils de potentiel de surface et/ou de cartographies du potentiel de surface de l'isolant permettront la détection d'une éventuelle conduction ou diffusion dans la surface. Dans le cas de films de polyéthylènetéréphtalète (PET), les charges déposées sur la surface du PET s'étalent latéralement par un processus de diffusion de la charge le long de la surface du film [E.A.Baum1978].

II.4.3. Neutralisation par le gaz

La neutralisation des charges déposées sur la surface de l'isolant par les charges libres qui proviennent directement de l'atmosphère environnant le matériau isolant est un autre processus pouvant contribuer au déclin de potentiel de surface. Lors du dépôt de charges électriques, le champ électrique environnant la surface de l'isolant est complètement modifié. Les atomes et les molécules subissent alors l'effet du champ et s'orientent de manière à créer une charge opposée à celle de la surface [K.Rouagdia2015]. Ce qui résulte une réduction du potentiel de surface. DasGupta et *al.* ont étudié les profils de potentiels de surface enregistrés sur des films de polymères. La conservation de la forme des profils de potentiels de surface et de la largeur de la zone de dépôt pendant tout le temps de mesure indiquent que la neutralisation de la charge par les ions atmosphériques ne contribue pas au processus du déclin de potentiel de surface [D.K.DasGupta1992].

II.4.4. Phénomène piézoélectrique

L'effet piézoélectrique est un processus physique qui peut participer au déclin de potentiel d'un matériau. Les polymères ont une structure moléculaire désordonnée, ils contiennent des zones cristallines et des zones amorphes. La piézo-électricité est un phénomène propre à certains types de cristaux. L'application d'un champ électrique élevé à un diélectrique peut générer dans le matériau une pression électrostatique. Cette dernière conduit à une contraction mécanique du volume du matériau qui peut avoir une influence sur le potentiel de surface [P.Llovera2002].

II.4.5. Injection de charges

Le phénomène d'injection de charges à partir de la surface du matériau diélectrique dans le volume est une injection des porteurs de charges déposés sur la surface de l'isolant à

travers le volume. Ainsi, une partie du volume de l'isolant change de propriétés électriques et devient chargée. Par ailleurs, la conduction en volume correspond à un déplacement de charges dans le volume, alors que le matériau reste plutôt neutre.

Le phénomène d'injection de charges est le processus qui domine les mécanismes observés dans la littérature sur les mesures du déclin de potentiel de surface [P.Molinie1991]. C'est un phénomène assez complexe qui dépend de plusieurs paramètres. L'état de surface ou son contact avec un autre matériau joue un rôle important sur le processus de l'injection de charges. L'énergie de la décharge couronne, le temps de chargement, la température et l'humidité sont des facteurs pouvant jouer un rôle important dans l'injection de charges. De manière générale, la conduction volumique est surtout présente dans le cas des échantillons minces (épaisseur de l'ordre du micron) et certains échantillons épais. Le phénomène d'injection de charges dans les matériaux isolants a été beaucoup invoqué dans l'étude du déclin de potentiel, et l'injection est mise en cause dans l'apparition du phénomène dit de "cross-over" ; les courbes de déclin de potentiel obtenues à différents niveaux de tension de chargement par décharge couronne se croisent [S.Sahli2003].

II.5. Théorie des bandes d'énergie des polymères et nature des pièges

Un matériau isolant parfait présenterait une structure cristallographique sans défauts et sans impuretés. La figure II.10 présente le diagramme de bande d'énergie pour un isolant cristallin parfait, matériau isolant avec une bande de conduction et une bande de valence séparées par un gap important, E_g de l'ordre de quelques eV (bande interdite supérieure à 5 eV).

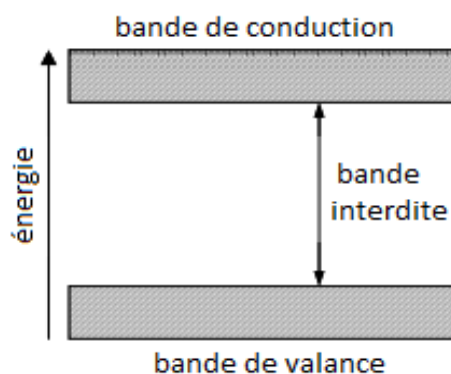


Figure II.10 : Diagramme de bande d'énergie pour un isolant cristallin parfait.

En pratique, un tel matériau n'existe jamais, car d'une part la présence de défauts et d'impuretés dans l'isolant est un fait inévitable et d'autre part le plus grand nombre des

isolants qui nous entourent sont souvent des milieux polycristallins ou amorphes (ils ne présentent pas de structure cristalline parfaite). Ces « imperfections » jouent un rôle important dans le comportement des isolants soumis à une injection de charges en général et une irradiation électronique en particulier [K.Rouagdia2015,F.Mortreuil2016].

La présence de défauts ponctuels ainsi que des défauts linéaires et bidimensionnels à la structure du matériau se traduisent par la modification de la structure de bande de l'isolant. Les impuretés, les lacunes, etc... sont capables de créer des niveaux localisés dans la bande interdite [K.Rouagdia2015]. Selon la configuration du défaut, le niveau créé est susceptible de localiser (pendant un temps plus ou moins long) un ou plusieurs électrons pour les restituer, sous l'action d'une excitation, à la bande de conduction (niveau donneur) ou bien de localiser un ou plusieurs trous pour les céder par la suite à la bande de valence (niveau accepteur). L'ensemble des niveaux créés forme une ou plusieurs bandes d'énergie dans la bande interdite.

En théorie, le polymère devrait donc être un excellent isolant avec une probabilité d'occupation de la bande de conduction extrêmement faible. Toutefois, du fait de son caractère semi-cristallin, partiellement désordonné, il advient que la bande de conduction n'est pas parfaitement délimitée et que des états sont disponibles dans la bande interdite (figure II.11) [M.Laurent2015]. Ces sites peuvent permettre le transport de charges par saut. Les porteurs de charge occupant cette zone ne sont ni libres ni entièrement liés. Ils sont localisés mais ils ont une mobilité réduite. La profondeur énergétique du piège conditionnera la probabilité pour la charge de sortir du piège. Plus la hauteur des barrières est importante (énergie élevée) plus le piège est efficace. On parlera alors de piège profond ou peu profond. Le transport de charges peut exister par sauts (*hopping*) entre états localisés [F.Mortreuil2016].

- Les pièges peu profonds : dus aux impuretés physiques, les électrons piégés et les trous piégés se localisent respectivement dans des niveaux d'énergie proches des bandes de conduction et de valence. Ces porteurs peuvent se dépiéger en acquérant une énergie suffisante pour franchir la barrière de potentiel.
- Les pièges profonds : dus aux impuretés chimiques (agents de réticulation, antioxydants, additifs...), et dans lesquels les charges peuvent se piéger durablement. Pour se dépiéger, ces porteurs doivent acquérir une énergie beaucoup plus élevée par rapport aux charges piégées dans des pièges peu profonds [M.Q.Hoang2014].

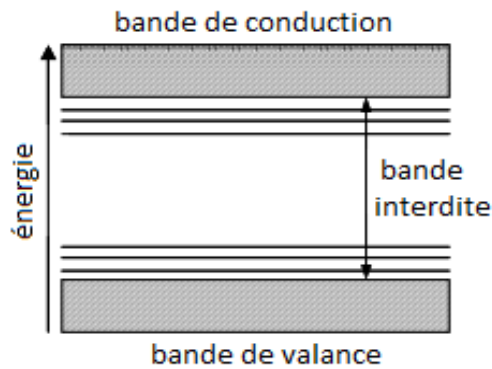


Figure II.11 : Diagramme de bande d'énergie pour un polymère.

II.6. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté tout d'abord la définition de la charge d'espace des matériaux diélectriques. Nous avons présenté les différentes techniques de chargement notamment la décharge couronne qui représente la technique de chargement électrostatique des polymères en mettant l'accent sur les différents types de la décharge couronne, la caractéristique courant tension d'une décharge couronne dans l'air à pression atmosphérique et le mécanisme de formation d'une décharge couronne. Les phénomènes physiques responsables du déclin de potentiel de surface ainsi que les théories des bandes d'énergie des polymères et nature des pièges ont été également présentés.

Références du chapitre II

- [A.Abahazem2009] A. Abahazem, “Etude expérimentales des décharges couronnes pour la dépollution des gaz”, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse III, Décembre 2009.
- [R.AbdJelil2010] R.Abd Jelil, “Modélisation de la relation entre les paramètres du procédé plasma et les caractéristiques de la qualité du matériau textile par apprentissage de données physiques”, Thèse de Doctorat, Université de Lille 1, Avril 2011.
- [T.T.Anh2011] T.T. Anh, “Corrélation entre les charges d’espace accumulées et les déformations mécaniques induites dans des isolants organiques solides soumis à un champ électrique”, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2011.
- [E.A.Baum1978] E.A. Baum, T.J. Lewis, R. Toomer, “The lateral motion of charge on thin films of polyethylene terephthalate”, *Journal of Physics D : Applied Physics*, Vol. 11, No. pp. 963-977, 1978.
- [B.Benamar2008] B. Benamar, “La faisabilité de l’électrofiltration d’une atmosphère chargée en poussières de bois : Etude expérimentale et numérique”, Thèse de Doctorat, Université Henri Poincaré - Nancy 1, 2008.
- [A.Bouarouri2014] A. Bouarouri, “Développement d’un chargeur à décharge couronne pour la mesure à 10 Hz de la concentration d’aérosol atmosphérique”, Thèse de Doctorat, Université Paris-Sud, Décembre 2014.
- [Y.Bourek2016] Y. Bourek, “Etude de la décharge électrique par l’intelligence artificielle”, Thèse de Doctorat, Université de Batna 2, Novembre 2016.
- [A.Bouteffaha2015] A. Bouteffaha, “Etude expérimentale et numérique de la décharge couronne dans des configurations d’électrodes de type « triode »”, Thèse de Doctorat, Université Djillali Liabes de Sidi Bel-Abbes, 2015.
- [D.K.DasGupta1992] D.K. Das Gupta, “Electrical properties of surfaces of polymeric insulators”, *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, Vol. 27, No. 5, pp. 909-923, October 1992.
- [M.Q.Hoang2014] M.Q. Hoang, “Implémentation de la polarisation dans un modèle de transport de charges appliqué au PEN sous contrainte électrique”, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2014.
- [S.Kacem2011] S. Kacem, “Modélisation électro-hydrodynamique des décharges couronne dans l’air à la pression atmosphérique pour application aux actionneurs plasmas”, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse III, Septembre 2011.
- [M.Karadjian20018] M. Karadjian, “Endurance et tenue diélectrique de l’isolation de câbles électriques pour l’aéronautique”, Thèse de Doctorat, Université Paris-Saclay, Décembre 2018.
- [A.Labergue2005] A. Labergue, “Etude de décharges électriques dans l’air pour le développement d’actionneurs plasmas - Application au contrôle de décollements d’écoulements”, Thèse de Doctorat, Université de Poitiers, Novembre 2005.
- [M.Laurent2015] M. Laurent, “Maîtrise des interfaces pour le contrôle de l’injection de charges dans les polymères isolants électriques”, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse III, Décembre 2015.

- [P.Llovera2002] P. Llovera Segovia, “Étude des mécanismes d’injection de charge dans les matériaux isolants au moyen de mesures électrostatiques de déclin et retour de potentiel : Nouveaux outils d’analyse”, Thèse de Doctorat, Université de Paris-Sud, 2002.
- [P.Llovera2004] P. Llovera, P. Molinié, “New methodology for surface potential decay measurements application to study charge injection dynamics on polypropylene films”, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 11, No. 6, pp. 1049-1056, 2004.
- [J.C.Matéó-Vélez2006] J.C. Matéo-Vélez, “Modélisation et simulation numérique de la génération de plasma dans les décharges couronnes et de son interaction avec l’aérodynamique”, Thèse de Doctorat, ONERA - Centre de Toulouse, Décembre 2006.
- [H.Mellouki2019] H. Mellouki, “Charge et décharge des matériaux isolants”, Thèse de Doctorat, Université 8 Mai 1945 Guelma, 2019.
- [M.N.Meziane2011] M. Meziane, “Modélisation 2D et 3D d’un écoulement gazeux instationnaire activé par décharges couronne dans un réacteur multi-pointes plan dédié à la décontamination des gaz”, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse III, Novembre 2011.
- [P.Molinie1991] P. Molinie, “Charge injection in corona charged polymeric films : Potential decay and current measurements”, Journal of Electrostatics, Vol. 45, No. 4, pp. 265-273, 1999.
- [F.Mortreuil2016] F. Mortreuil, “Etude des mécanismes d’injection et de stockage de charges électriques dans un film mince diélectrique par microscopie à sonde de Kelvin (KPFM)”, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse III, Novembre 2015.
- [A.Nadjem2018] A. Najem, “Etude et exploitation des charges électriques dans les procédés électrostatiques”, Thèse de Doctorat, Université 8 Mai 1945 Guelma, Décembre 2018.
- [J.M.Plewa2017] J.M. Plewa, “Simulation 3D d’une décharge couronne pointe-plan, dans l’air : calcul haute performance, algorithmes de résolution de l’équation de Poisson et analyses physiques”, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2017.
- [G.Quinio2005] G. Quinio, “Modélisation numérique de la génération d’un plasma d’air dans un écoulement aérodynamique”, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse III, Décembre 2005.
- [K.Rouagdia2015] K. Rouagdia, “Analyse de la dynamique des charges à la surface des polymères isolants”, Thèse de Doctorat, Université 8 Mai 1945 Guelma, Décembre 2015.
- [S.Sahli2003] S. Sahli, A. Bellel, Z. Ziari, A. Kahlouche, Y. Segui, “Measure and analysis of potential decay in polypropylene films after negative corona charge deposition”, Journal of Electrostatics, Vol. 57, No.2, pp. 169-181, 2003.
- [A.V.Salazar2018] A.V. Salazar, “Mesure de charge d’espace par la méthode (F)LIMM : vers une caractérisation sous contrainte électrique DC externe”, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse III, Juillet 2018.
- [P.Seimandi2010] P. Seimandi, “Modélisation mathématique et numérique de décharges couronnes pour le contrôle d’écoulement”, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse, 2010.
- [B.Tabti2014] B. Tabti, B. Yahiaoui, B. Bendahmane, L. Dascalescu, “Surface potential decay dynamic characteristics of negative-corona-charged fibrous dielectric materials”, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 21, No. 2, pp. 829-835, April 2014.

[Z.Ziari2008] Z. Ziari, “Etude de l’effet d’un traitement par plasma froid sur les propriétés de surface d’un film de polymère”, Thèse de Doctorat, Université de Constantine, 2008.

Chapitre III

Influence de l'humidité relative sur les propriétés électriques des films de polyimide

Chapitre III : Influence de l'humidité relative sur les propriétés électriques des films de polyimide

III.1. Introduction

La dynamique des charges à la surface des matériaux isolants peut être perçue comme un indicateur des propriétés surfaciques et volumiques du matériau. Au cours des trois dernières décennies, le déclin de potentiel de surface et la répartition de celui-ci à la surface de ces matériaux ont été intensivement étudiés afin d'expliquer cette dynamique et sa relation avec les caractéristiques de l'isolant [M.Kachi2014]. La technique du déclin de potentiel de surface, convenable et relativement puissante, est une méthode d'investigation des propriétés électriques des matériaux isolants et particulièrement les polymères. Son intérêt réside essentiellement dans sa puissance dans la caractérisation de l'aptitude d'un matériau à évacuer une charge électrique déposée à sa surface et dans sa simplicité à mettre en œuvre [K.Rouagdia2015].

Dans ce chapitre, nous présentons les dispositifs expérimentaux que nous avons utilisés dans notre travail. Ensuite, nous étudions l'influence du niveau de chargement et de l'humidité environnementale sur les mécanismes de transport de charges électriques dans les films minces de Kapton HN polyimide (PI) chargés par une décharge couronne négative. Cette étude a été faite par la mesure du déclin de potentiel de surface. L'une des surfaces a été soumise à une décharge couronne négative générée dans une configuration triode (pointe-grille-surface) à différentes valeurs du niveau de chargement variant de 400 à 2800 V et de l'humidité relative RH variant de 35 à 90 %. Les effets du niveau de chargement ainsi que du taux d'humidité relative sur les courants de charge ont également été étudiés. De plus, une analyse quantitative de la distribution des pièges sous différents niveaux de chargement et de l'humidité relative a été réalisée en utilisant la méthode du déclin de potentiel de surface.

III.2. Mise en œuvre expérimentale

Les installations et les instrumentations qui ont été mises en œuvre dans le cadre de cette thèse ont été réalisées au niveau du laboratoire Microsystèmes et Instrumentation (LMI) de l'Université Frères Mentouri-Constantine 1.

Le banc expérimental permettant la caractérisation électrique des films de polyimide PI soumis à une décharge couronne en utilisant principalement la mesure sans contact du

potentiel de surface est représenté sur la [figure III.1](#). Ce banc comprend essentiellement deux parties :

- La première partie consiste à déposer des charges électrostatiques sur la surface libre du matériau en utilisant comme technique de chargement une décharge couronne négative générée dans une configuration d'électrodes dite triode (configuration pointe-grille-surface).
- La deuxième partie consiste à mesurer le potentiel électrique de surface sans contact avec le matériau à caractériser.

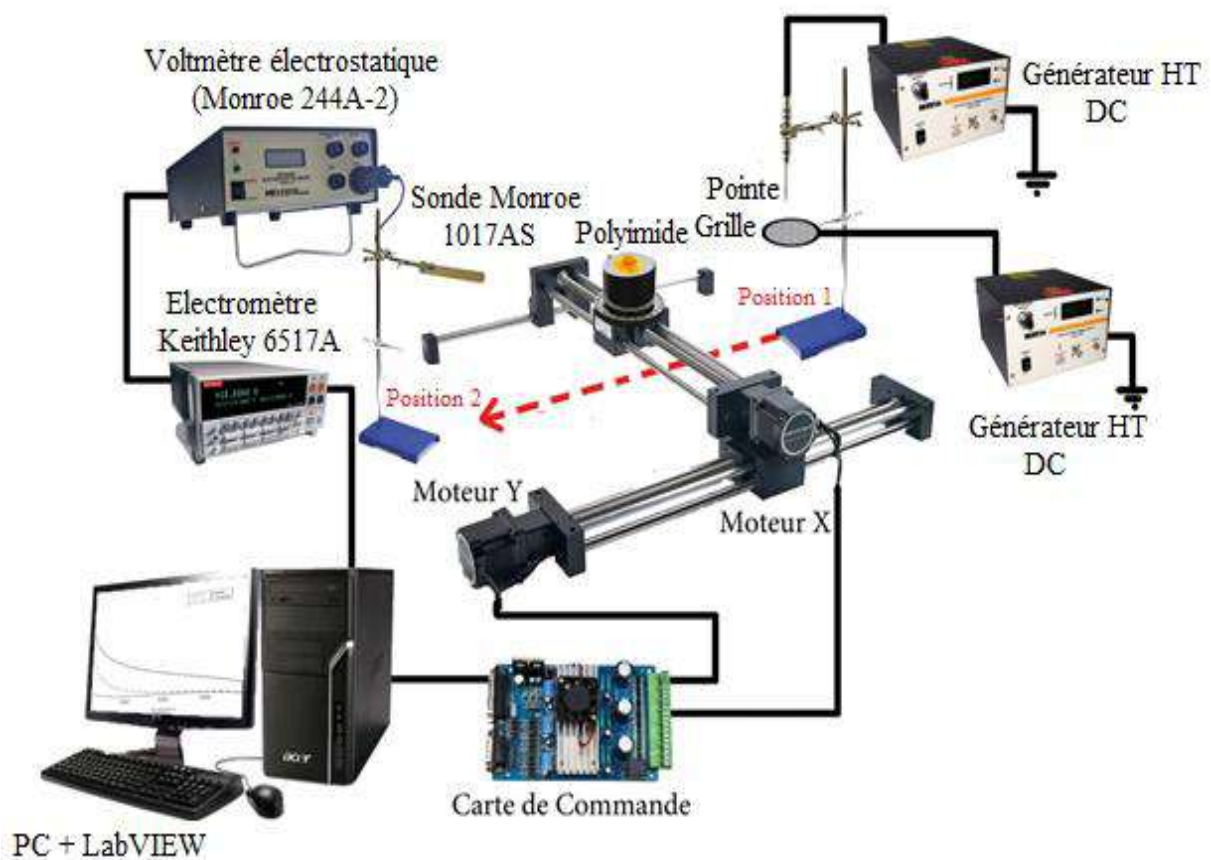


Figure III.1 : Dispositif de chargement par décharge couronne et de mesure du potentiel de surface.

L'échantillon de PI est déposé sur une électrode plane en aluminium reliée à la terre et supporté par un porte échantillon mobile en translation sur des rails grâce à l'utilisation d'un moteur pas à pas commandé par un PC. Ainsi, ce système permet de positionner d'une manière contrôlée l'échantillon sous l'électrode couronne ou sous la sonde électrostatique.

L'approche expérimentale dans cette étude repose sur la méthode de la charge du matériau. Celle-ci consiste à suivre l'évolution temporelle du potentiel de surface de l'échantillon préalablement chargé par décharge couronne en configuration pointe-grille-surface. L'avantage principal de cette configuration est dû à la présence de la grille métallique permettant de contrôler le niveau du potentiel de surface initial et l'obtention d'un dépôt de charges uniforme au niveau de la surface des films. La mesure du potentiel de surface à partir d'une sonde électrostatique à condensateur vibrant permet de fournir des informations sur le mode de l'écoulement (surfaique et/ou volumique) des charges déposées. L'évolution temporelle du potentiel de surface et qu'on appelle déclin de potentiel de surface, consiste à relever la valeur du potentiel de surface en fixant la sonde en un seul point de l'échantillon (généralement au centre du chargement) pendant des intervalles de temps choisis par l'utilisateur. Le temps de transfert entre la fin de la décharge couronne est le début de mesure est de 5 secondes. Tout l'équipement a été logé à l'intérieur d'une chambre environnementale, afin de contrôler la température et l'humidité relative.

Les expériences ont été faites sur des films de polyimide (PI) de type Kapton[®] HN d'épaisseur 50 μm fournis par Goudfellow. Les films ont été découpés en petits échantillons de forme carrée de dimension 25 mm \times 25 mm et nettoyés à l'eau déminéralisée puis séchés immédiatement à l'air sec pour éliminer les contaminants de surface. Les échantillons utilisés n'ont subi aucun traitement ni conditionnement préalable. Pour chaque expérience, nous avons utilisé un nouvel échantillon afin d'éviter qu'une mesure influe sur l'autre. La mesure a été répétée au moins trois fois pour chaque échantillon afin d'assurer la reproductibilité des résultats. Au cours de l'expérience, l'une des surfaces de l'échantillon de PI est fermement plaquée sur une électrode métallique reliée à la terre alors que l'autre surface initialement exposée à une décharge couronne négative dans l'air reste libre. Cette décharge couronne a été utilisée pour déposer des charges sur la surface libre du film de PI et la valeur absolue a été utilisée dans la présentation du déclin de potentiel de surface et de mesures du courant de charge.

III.2.1. Dispositif de chargement par décharge couronne

Dans la plupart des applications électrostatiques actuelles, le chargement dans l'air est réalisé par décharge couronne, en raison de leur simplicité à mettre en œuvre, sûreté et faible coût et de la possibilité de déposer de manière contrôlée une quantité de charges aussi bien positives que négatives selon la polarité du système de décharge au niveau de la surface du

polymère [A.Reguig2017]. La décharge couronne est une décharge électrique pré-disruptive se produisant en présence de champ fortement inhomogène obtenu par un système d'électrodes asymétriques [F.Beloucif2017,A.Bouttefaha2016], ou le rayon de courbure de l'électrode couronne est très faible. Elle est largement exploitée pour tester des matériaux diélectriques et étudier leurs réponses à une charge d'espace en utilisant différentes configurations d'électrodes [H.Mallem2019].

La figure III.2 représente le dispositif de chargement par décharge couronne en configuration pointe-grille-échantillon.

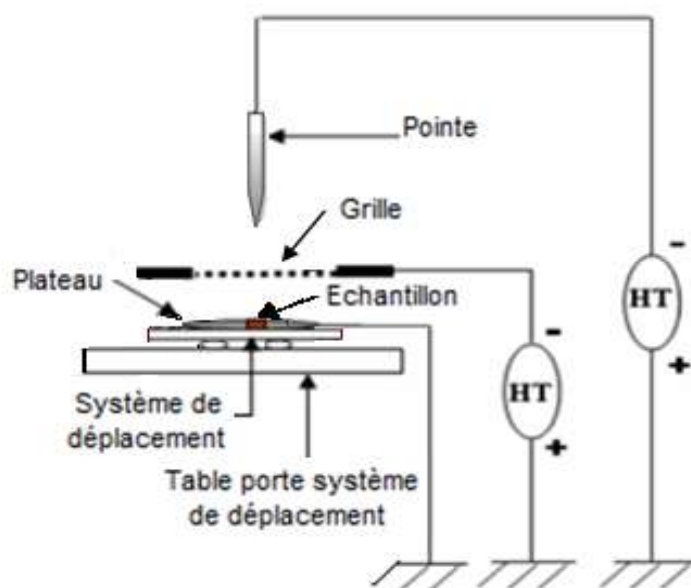


Figure III.2 : Dispositif de chargement par décharge couronne.

Comme le montre la figure III.2, la surface du film de PI est chargée par décharge couronne en utilisant la configuration triode pointe-grille-surface. Le processus de chargement est réalisé en exposant la surface de l'échantillon à une décharge couronne négative à partir d'une pointe métallique de Tungstène de rayon $50\ \mu\text{m}$, jouant le rôle de l'électrode à petit rayon de courbure, alimentée avec une tension continue variable jusqu'à $10\ \text{kV}$ (cette tension a pour rôle d'ioniser l'air au voisinage de la pointe, courant variable de $200\ \mu\text{A}$ à $2\ \text{mA}$) et une grille métallique reliée à une source de tension continue délivrant un signal continu variable jusqu'à $3\ \text{kV}$ (courant variable de 0 à $6\ \text{mA}$). La grille conductrice ($2.5\ \text{cm}$ de diamètre) intercalée entre l'électrode couronne et la surface de l'échantillon est portée à un potentiel plus faible et de même polarité que le potentiel appliqué à l'électrode active (la pointe). Nous avons limité la durée de chargement à $5\ \text{s}$ afin d'éviter toute modification de surface et donc assurer un chargement reproductible du film de PI. En choisissant les

potentiels de la pointe et de la grille (respectivement V_p et V_g) et les distances pointe-grille et grille-échantillon (respectivement D et d), il est possible de déposer des charges de l'un ou l'autre signe selon la polarité de la pointe et de la grille. Dans notre expérience, la tension de grille est fixée à 4 kV, inférieure à la tension de pointe ; la distance d entre la grille et la surface de l'échantillon de PI est de 5 mm, alors que la distance D entre la pointe couronne et la grille est de 10 mm. Le champ électrique appliqué entre la pointe et la grille doit être élevé pour provoquer une ionisation du milieu isolant qui entoure les électrodes à potentiel élevé et à la terre. Les charges issues de l'ionisation de l'air sont accélérées sous l'action du champ électrique existant entre la pointe et la grille répartitrice. Une fois arrivées au niveau de la grille, un autre champ électrique existant entre la grille et la surface de l'échantillon fait accélérer ces charges vers la surface libre de l'échantillon. Le potentiel de surface du diélectrique croît jusqu'au niveau du potentiel de la grille. Lorsque la surface atteint le potentiel de la grille, le processus de chargement s'arrête et le champ entre la grille et la surface du film s'annule et les ions ne traversent plus la grille (le potentiel de surface est limité par le potentiel de la grille).

III.2.2. Dispositif de mesure du potentiel de surface

Pour mesurer la décroissance du potentiel de surface pendant 1 heure du temps, l'échantillon a été déplacé automatiquement sous la tête d'une sonde électrostatique à condensateur vibrant de type de Monroe (Monroe 1017 AS) en utilisant un système de déplacement vers le dispositif de mesure du potentiel de surface (figure III.3). Cette sonde électrostatique, située à une distance de 2 mm au-dessus de la surface libre de l'échantillon, est connectée à un voltmètre électrostatique (modèle Monroe 244A-2) qui mesure le potentiel de surface dans la plage ± 3 kV. La mesure du potentiel de surface est effectuée sans contact avec la surface du film chargé, donc sans aucune modification physique de cette surface. L'utilisation d'un électromètre numérique Keithley modèle 6517A connecté à la carte d'interface IEEE-488, dans l'expérience de mesure, a permis l'interfaçage du voltmètre électrostatique (sortie analogique) avec l'ordinateur pour effectuer l'acquisition et l'enregistrement des données expérimentales sur l'ordinateur à l'aide d'un instrument virtuel développé sous l'environnement LabVIEW. Le potentiel de surface est enregistré immédiatement après la fin du processus d'implantation de charges par décharge couronne.

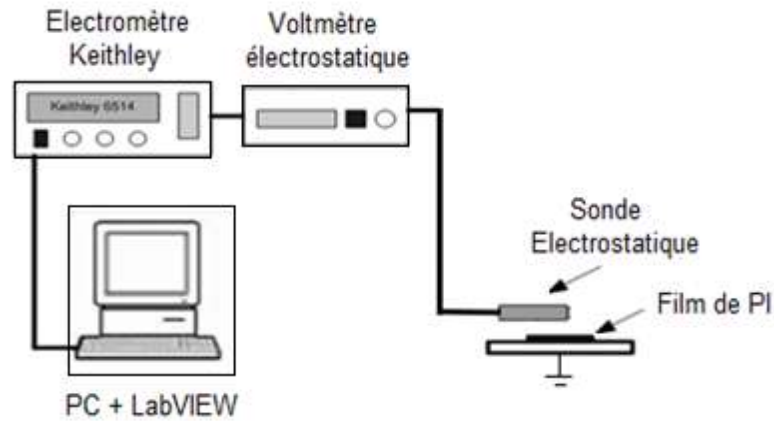


Figure III.3 : Dispositif de mesure du potentiel de surface.

La [figure III.4](#) présente la face avant de l'instrument virtuel LabVIEW, qui n'est qu'une interface utilisateur graphique. Cette interface permet de contrôler l'acquisition des données des mesures et l'affichage de celles-ci, en sortie, par le programme. La face avant de notre instrument virtuel contient des éléments de commande et un indicateur graphique de la décroissance du potentiel de surface.

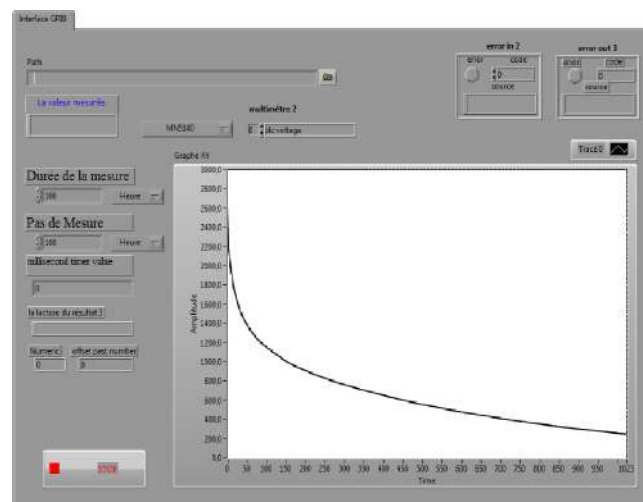


Figure III.4 : Courbe du déclin de potentiel de surface visualisée sur le panneau frontal de l'instrument virtuel.

La sonde à condensateur vibrant connectée à un voltmètre électrostatique connu aussi sous le nom du "voltmètre sans contact", est l'instrument le plus populaire pour la mesure du potentiel électrique de surface. Elle est largement utilisée pour la caractérisation des isolants chargés par la mesure sans contact du potentiel de surface à long terme [H.Mellouki2019]. La mesure du potentiel de surface de l'échantillon au cours du temps à partir d'une sonde électrostatique à condensateur vibrant permet de fournir des informations sur le mode

d'écoulement (surfactive et/ou volumique) des charges déposées et sur la mobilité de ces charges [M.Remdania2007]. Le principe de fonctionnement de la sonde électrostatique est basé sur l'annulation du champ électrique pour la mesure sans contact du potentiel de surface (figure III.5). Le potentiel de surface est mesuré par une sonde à condensateur vibrant qui asservit son propre potentiel au potentiel de la surface libre de l'échantillon en annulant le courant d'influence entre la surface et le condensateur vibrant. En effet, la modulation de la position de la lame détectrice de la sonde engendre un courant induit ($I(t) = U \frac{dC}{dt}$; où C est la capacité du condensateur formé par la sonde et l'échantillon et U est la différence de potentiel entre l'électrode de mesure et la face libre de l'échantillon) si le champ vu par cette électrode n'est pas nul. Pour que le courant soit nul, à tout instant, il faut que la tension U soit nulle, ce qui conduit à ramener le potentiel de la sonde à celui de la surface de l'échantillon, d'où l'annulation du champ et la détermination du potentiel de surface [H.Mallem2019,R.E.Vosteen1983]. Cet instrument de mesure se caractérise par une grande stabilité et une grande précision, il permet une mesure absolue du potentiel de surface sans contact avec la surface de l'échantillon et sans affecter l'état de charge [A.Reguig2017].

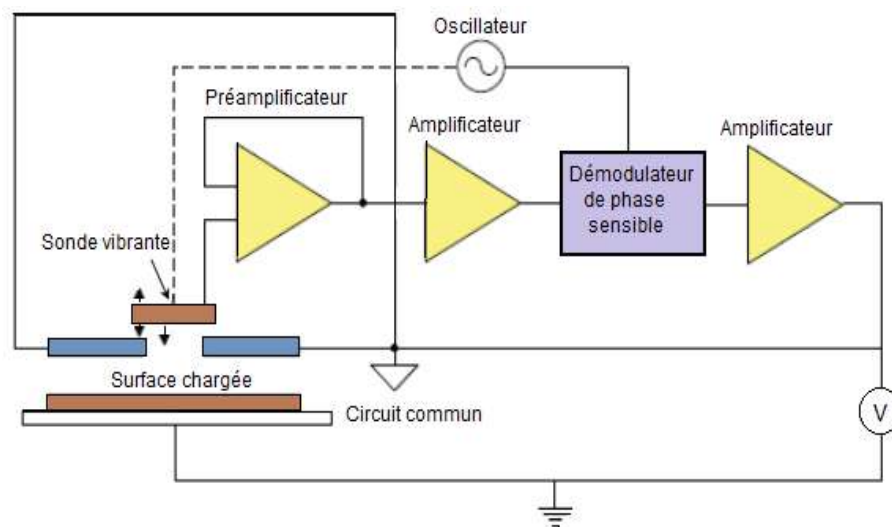


Figure III.5 : Principe de mesure sans contact de potentiel de surface [R.E.Vosteen1983].

III.2.3. Chambre climatique

Les paramètres physiques de l'air sont des paramètres environnementaux influençant sur le processus de chargement par décharge couronne et les mesures du potentiel de surface et du courant de chargement. Pour cela, toutes ces procédures sont effectuées in situ, dans une chambre climatique où la température et le taux d'humidité relative peuvent être contrôlés.

Les mesures ont été effectuées à température ambiante (22 °C) et une humidité relative RH variant entre 35 et 90 %.

L'enceinte climatique est de forme parallélépipédique de longueur 120 cm, largeur 60 cm et hauteur 48 cm, avec une fenêtre rectangulaire de surface 58 x 32 cm² pour introduire les échantillons (figure III.6). Les parois de l'enceinte sont en verre et en plexiglas recouvertes de polystyrène d'épaisseur 40 mm afin de minimiser le transfert de chaleur avec l'extérieur et d'éviter également la condensation de la vapeur d'eau sur les parois de la chambre.

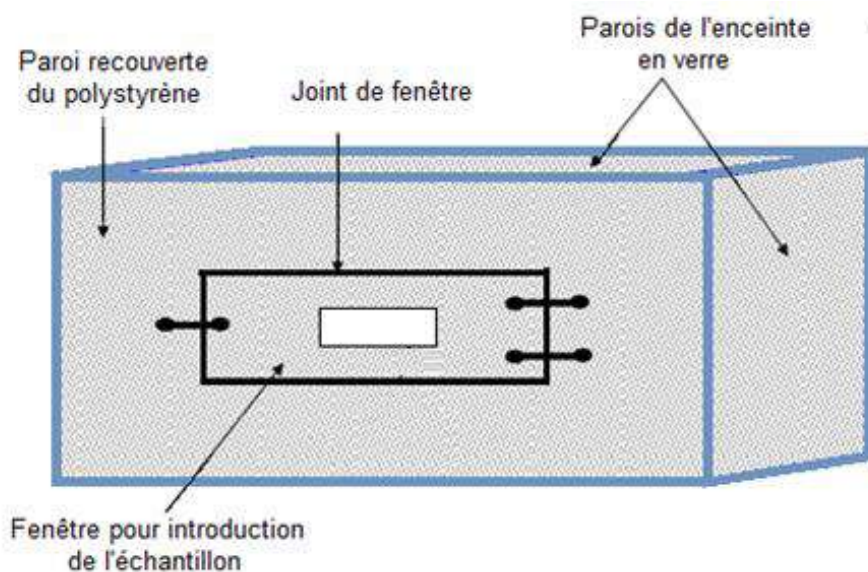


Figure III.6 : Représentation de la chambre climatique.

III.2.4. Système de régulation du taux d'humidité relative

Le dispositif de réglage du taux d'humidité relative et de la température à l'intérieur de l'enceinte est représenté sur la figure III.7.

La vapeur d'eau est produite par chauffage d'une bouteille contenant l'eau déminéralisée. L'air sec existant à l'intérieur de la chambre se mélange avec la vapeur d'eau pour produire l'air relativement humide. La vapeur d'eau est introduite dans l'enceinte climatique par l'intermédiaire d'une vanne micrométrique afin de bien contrôler le taux d'humidité relative. Toute la canalisation traversée par la vapeur d'eau a été également chauffée afin d'éviter toute possibilité de condensation de la vapeur d'eau. Un système de ventilation placé sur la face arrière de l'enceinte permet d'évacuer l'air humide et le remplacer par l'air sec. Le système de ventilation est actionné dans le cas où le niveau du taux d'humidité est dépassé.

La mesure simultanée du taux d'humidité relative et de la température a été faite grâce à un thermo-hygromètre testo 635 (figure III.8).

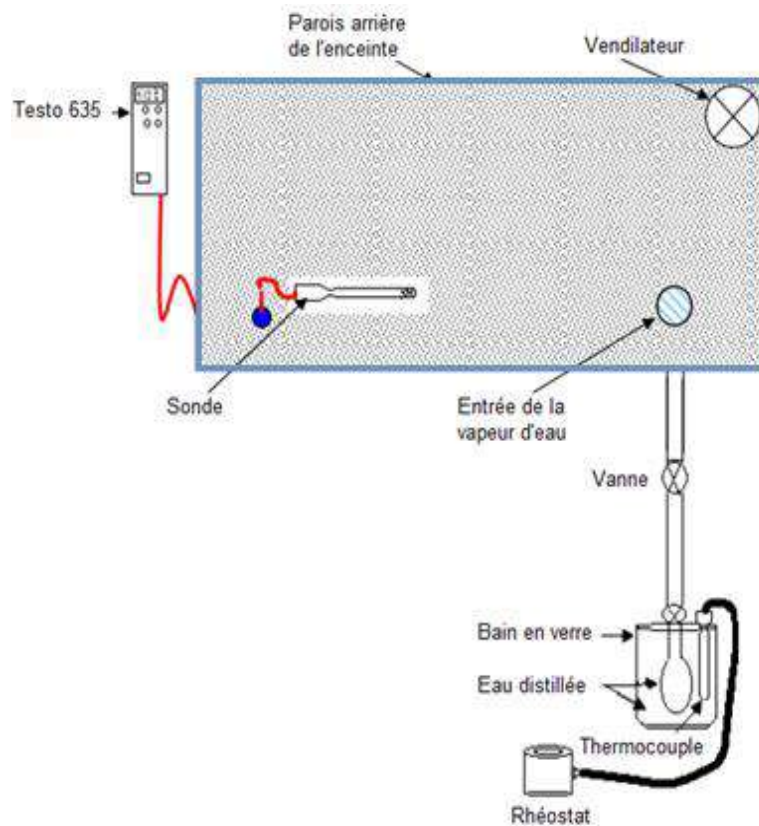


Figure III.7 : Système de régulation de l'humidité relative.



Figure III.8 : Thermo hygromètre testo 635.

III.3. Caractérisation électrique du système de la décharge couronne en géométrie pointe-grille-surface

La caractérisation courant-tension $I(V)$ en configuration pointe-grille-surface de la décharge couronne dans l'air est effectuée afin d'étudier la variation du courant délivré par la

décharge couronne en fonction de l'augmentation de la tension appliquée [F.Beloucif2017]. La mesure du courant de charge est enregistrée à l'aide d'un électromètre de type Keithly (Keithly, modèle 6517A) commandé par PC par le biais d'une carte d'interface IEEE488. La valeur du courant associée à la décharge couronne est déduite à partir de la tension aux bornes d'une résistance non inductive de 1 M Ω .

La figure III.9 montre l'influence de la tension de grille V_g sur les caractéristiques courant-tension de la décharge couronne d'un film de PI.

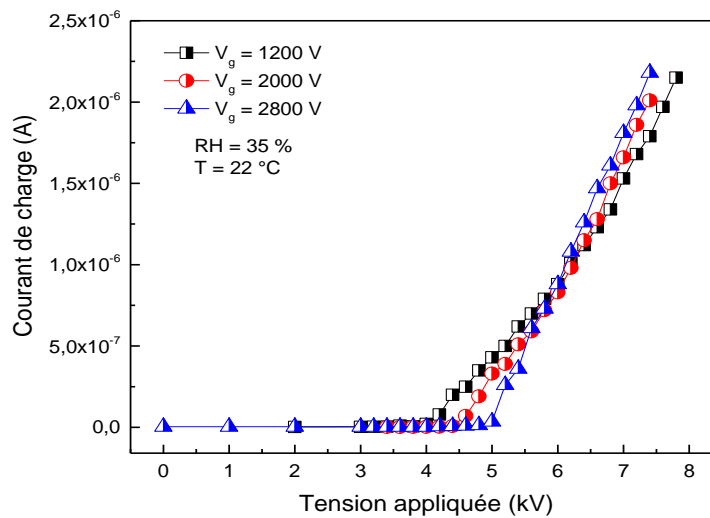


Figure III.9 : Caractéristique courant-tension enregistrées sur des films de PI pour trois valeurs de la tension de grille V_g (RH = 35 %).

Les caractéristiques courant-tension mesurées pour les trois niveaux de chargement (RH = 35 %) ont une forme quadratique et confirment la loi de Townsend [H.Nouri2012]. Comme prévu, le courant de chargement augmente progressivement avec l'augmentation de la tension de pointe appliquée V_p à partir de la valeur de la tension de seuil de couronne. Le courant continu qui traverse l'espace inter-électrodes est une fonction non linéaire de la tension de pointe appliquée. En fonction de la tension de pointe appliquée, l'effet de la tension de grille sur le courant de chargement est différent. Au début de la décharge couronne, le courant de chargement diminue avec l'augmentation de la tension de grille en raison de la faible ionisation de l'air. La décharge couronne se produit lorsque la différence de potentiel entre la pointe et la grille dépasse la tension de seuil d'apparition de couronne. Par exemple, pour des tensions de grille appliquées de 1200, 2000 et 2800 V, la tension de seuil d'apparition de couronne était respectivement de 4,2, 4,6 et 5 kV (la tension de seuil

d'apparition de couronne augmente linéairement avec la tension de grille appliquée). Pour des tensions de pointe appliquées supérieures à 6.5 kV, l'augmentation de la tension de grille induit l'augmentation du courant de chargement. Ceci est attribué à l'augmentation de l'intensité du champ électrique appliqué entre l'espacement échantillon-grille avec l'augmentation de la tension de grille.

La [figure III.10](#) montre les caractéristiques courant-tension de la décharge couronne à deux différentes valeurs du taux d'humidité relative RH = 35 et 90 %.

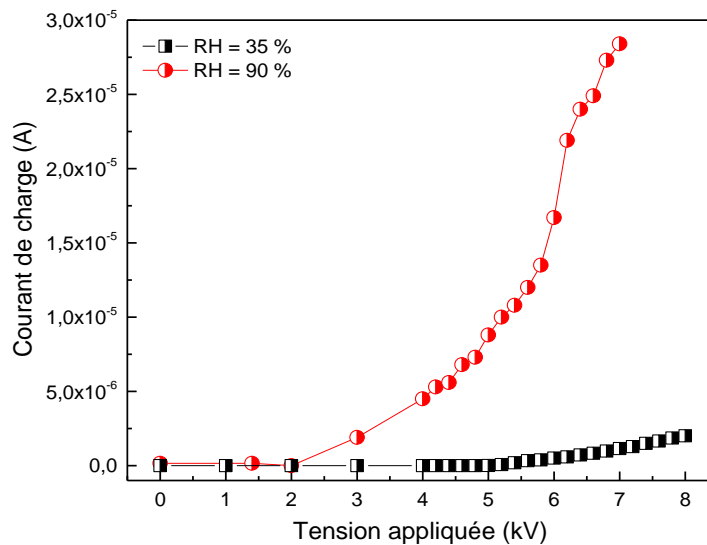


Figure III.10 : Caractéristique courant-tension pour deux différentes valeurs du taux d'humidité RH ($V_g = 2000$ V).

Les caractéristiques courant-tension sont assez sensibles aux valeurs du taux d'humidité relative (la dynamique d'évolution du courant est plus rapide en milieu humide (RH = 90 %) qu'en milieu relativement sec (RH = 35 %)). La présence d'humidité dans le gap d'air modifie les caractéristiques courant-tension. Pour une tension de pointe appliquée donnée, le courant couronne est plus élevé dans l'air humide RH = 90 % que dans l'air sec. Cet effet est probablement dû à l'augmentation de la mobilité des ions, résultant de leur combinaison avec les molécules de l'eau lorsque l'humidité relative augmente [H.Nouri2012]. De plus, la tension d'apparition de couronne est plus faible dans un environnement humide. En effet, l'humidité agit directement sur l'ionisation qui devient importante pour influencer la caractéristique courant-tension.

III.4. Mesure du déclin de potentiel de surface

La figure III.11 représente l'évolution du déclin de potentiel de surface $V_s(t)$ obtenue sur un film de PI chargé préalablement par effet couronne avec une tension de grille négative $V_g = 2000$ V, une température $T = 22$ °C et un taux d'humidité relative $RH = 35$ %. Les charges électriques déposées sur la surface du film de PI après son chargement par décharge couronne pendant 5 s induit un potentiel de surface initial V_0 . Nous nous sommes assurés qu'il n'y avait pas de charges électriques initiales sur la surface du film de PI avant le début du chargement du film par décharge couronne par la mesure du potentiel de surface initial V_0 avec la sonde capacitive vibrante d'un voltmètre électrostatique (la valeur du potentiel de surface initial V_0 mesurée avant chargement par décharge couronne était de l'ordre de quelques volts et tous les échantillons de PI ont été nettoyés à l'eau déminéralisée puis séchés immédiatement à l'air sec).

Nous remarquons que l'allure de la courbe illustre une décroissance du potentiel de surface avec la variation du temps de mesure. Cette allure présente deux phases de variations différentes : une phase des temps courts pour laquelle la décroissance est rapide puis une phase de temps longs où la décroissance est lente. La variation du déclin de potentiel de surface est généralement associée à l'écoulement des charges déposées sur la surface des films de PI.

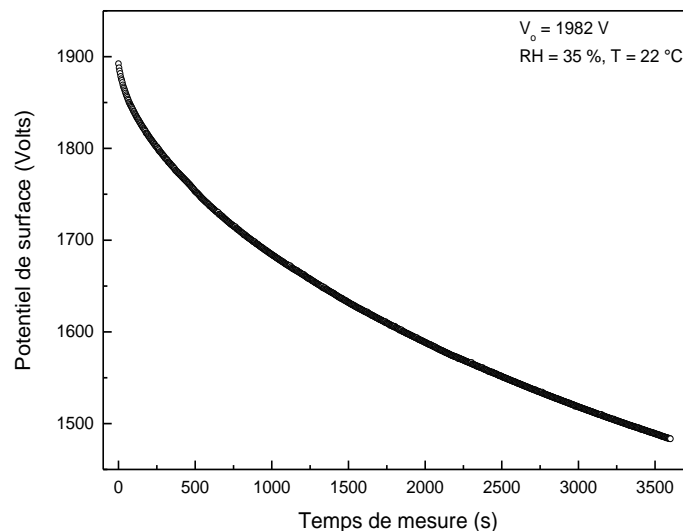


Figure III.11 : Variation du déclin de potentiel de surface sur un film de PI, $V_g = 2000$ V.

III.4.1. Influence du niveau de chargement

L'évolution du déclin de potentiel de surface $V_s(t)$ enregistrée sur des films de PI chargés par décharge couronne dans un environnement relativement sec ($RH = 35\%$) pour différentes valeurs de tension de grille de polarité négative variant de 400 à 2800 V (différentes valeurs de potentiel de surface initial variant de 414 à 2646 V) à une température fixe d'environ $22\text{ }^\circ\text{C}$ est représentée sur la [figure III.12](#).

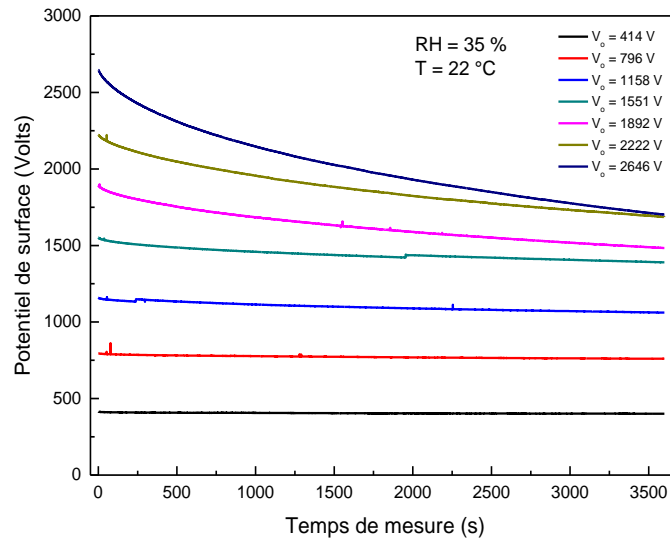


Figure III.12 : Déclin de potentiel de surface enregistré sur des films de PI pour différents niveaux de chargement V_0 ($T = 22\text{ }^\circ\text{C}$, $RH = 35\%$).

Nous remarquons que le déclin de potentiel est plus rapide pour les forts niveaux de chargement, alors que pour les faibles niveaux de chargement, le déclin observé est très lent. Ces résultats montrent bien que le potentiel de surface initial influe considérablement sur la décroissance du potentiel de surface. Les charges déposées sur la surface libre de PI ont été injectées dans le volume du film de PI et dérivent vers l'électrode de masse sous l'effet du champ électrique local [B.X.Du2016,Z.Ziari2011] (le champ électrique le long de la surface libre est inférieur à celui généré par les charges injectées). La décroissance du potentiel de surface est liée au processus de piégeage et de dé-piégeage de charges. Le processus de dé-piégeage de charges dépend du temps. Les charges piégées dans les pièges peu profonds peuvent s'échapper facilement (par saut), entraînant un déclin rapide durant les premiers instants (au début du déclin). En augmentant le temps, le dé-piégeage des charges dans les pièges plus profonds se produit, induisant un déclin lent. Dans le cas du fort niveau de chargement, le piégeage de charges dans les pièges peu profonds et profonds augmente,

entraînant une augmentation du dé-piégeage de charges et par conséquent une augmentation du taux du déclin de potentiel de surface.

III.4.2. Influence de l'humidité relative sur le déclin de potentiel de surface

L'évolution du déclin de potentiel de surface $V_s(t)$ enregistrée sur des films de PI chargés par décharge couronne négative pour différents niveaux de chargement dans un environnement humide (RH = 70 %) à une température constante d'environ 22 °C est représentée sur la [figure III.13](#).

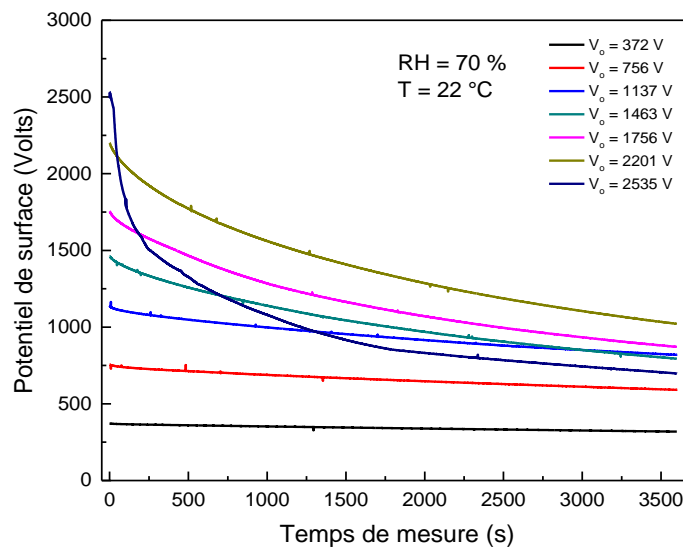


Figure III.13 : Déclin de potentiel de surface enregistré sur des films de PI pour différents niveaux de chargement V_o (T = 22 °C, RH = 70 %).

Pour un niveau élevé du taux d'humidité RH = 70 %, on remarque que le taux de décroissance du potentiel de surface D_r en % ($D_r = \left(\frac{V_o - V_t}{V_o}\right) * 100$, où V_t est le potentiel de surface mesuré après $t = 3600$ s) est plus important pour tous les niveaux de chargement par rapport au faible taux d'humidité relative ([figure III.14](#)). La décroissance du potentiel de surface est assez significative particulièrement au début du déclin de potentiel ([figure III.13](#)). De plus, un phénomène de croisement des courbes communément appelé *cross-over* de potentiel de surface a été observé et se produit très tôt (le phénomène de *cross-over* à faible humidité relative apparaît au temps tardif du déclin), confirmant l'existence de l'injection de charges de haut niveau durant le déclin. Le phénomène de *cross-over*, observé dans plusieurs travaux pour différents matériaux isolants [[S.Sahli2003](#),[L.Herous2009](#)], a été attribué au fait que l'injection de charges déposées dans le volume du polymère dépend principalement de la

quantité de charges déposée par décharge couronne et partiellement des charges dissociées des molécules d'eau.

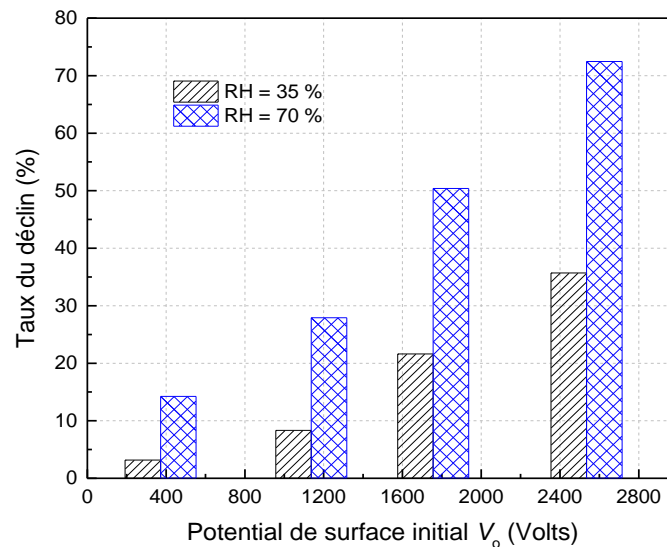


Figure III.14 : Taux du déclin de potentiel de surface en fonction du potentiel initial V_0 pour deux différentes valeurs du taux d'humidité relative.

Afin de bien illustrer l'effet de l'humidité relative sur le déclin du potentiel de surface des films de PI chargés, nous présentons sur la [figure III.15](#) les résultats de la variation du déclin de potentiel de surface enregistrés pour différentes valeurs du taux d'humidité relative RH variant de 35 à 90 % à une température fixe d'environ 22 °C et une tension de grille appliquée V_g d'environ 2000 V.

Les résultats montrent que le taux du déclin de potentiel de surface augmente avec l'augmentation de l'humidité relative à l'intérieur de la chambre climatique ([figure III.16](#)) ; la décroissance du potentiel de surface s'accroît et devient de plus en plus importante au fur et à mesure que le taux d'humidité relative augmente. Les valeurs du taux de déclin pour une faible valeur d'humidité relative (RH = 35 %) diffèrent significativement de celles enregistrées pour une humidité relative plus élevée (RH = 90 %). Par exemple, pendant 1 heure du temps de mesure, l'échantillon de PI chargé à 35 % d'humidité relative présente un taux du déclin d'environ 22 %, tandis que l'échantillon de PI chargé à 90 % d'humidité relative présente un taux du déclin d'environ 70 %. Les résultats indiquent que la présence de la vapeur d'eau dans le matériau améliore l'injection de charges et par conséquent accélère la décroissance du potentiel de surface. L'augmentation du taux du déclin du potentiel de surface est liée à la dissociation des molécules de l'eau absorbées sous l'effet du champ

électrique élevé. L'hydrolyse des groupes hydrophiles dans le film PI tels que les groupes amine et carbonyle en acide polyamique (PAA, un précurseur du PI) va briser la chaîne moléculaire, ce qui peut améliorer la mobilité des porteurs de charges conduisant à l'augmentation de la conductivité du film de PI [B.X.Du2016].

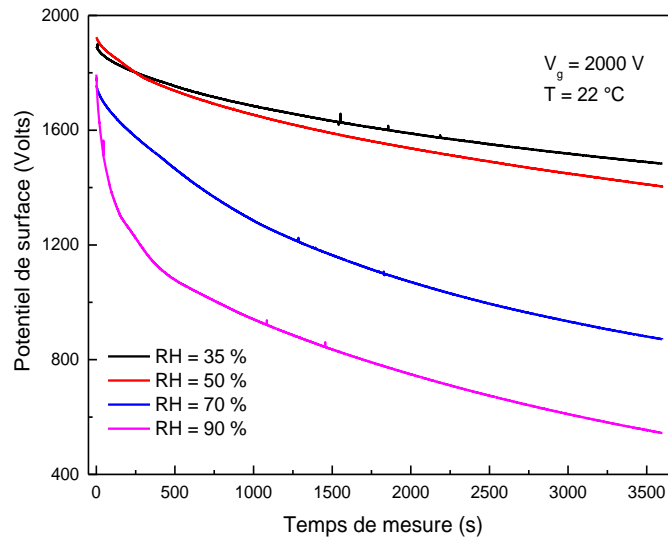


Figure III.15 : Courbes de déclin de potentiel de surface obtenues à différents niveaux d'humidité relative ($V_g = 2000 \text{ V}$).

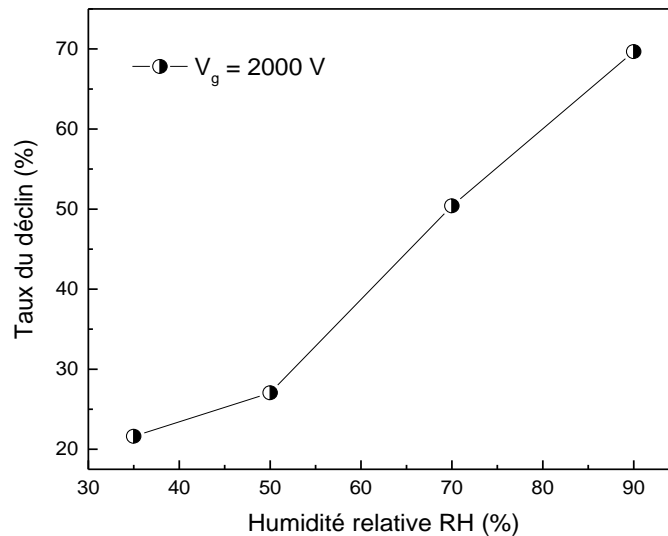


Figure III.16 : Taux du déclin de potentiel de surface en fonction de l'humidité relative RH ($V_g = 2000 \text{ V}$).

III.5. Mesure du courant de charge

Selon Molinié et *al.* [P.Molinié1999], les mesures du courant de charge lors du processus de chargement peuvent compléter les mesures du déclin de potentiel de surface afin d'obtenir plus d'informations sur le mécanisme du transport de charges dans les matériaux diélectrique.

Les courants de charge mesurés dans les films de PI pendant le chargement négatif par décharge couronne sont donnés sur la [figure III.17](#), pour trois différentes valeurs de la tension de grille appliquée (1200, 2000 et 2800 V). Les mesures ont été effectuées dans les mêmes conditions d'humidité relative $RH = 35\%$ et de température $T = 22\text{ °C}$, afin d'obtenir une bonne corrélation entre les différentes mesures.

La mesure du courant de charge pendant le processus de chargement de films de PI par effet couronne est déduite à partir de la tension aux bornes d'une résistance non inductive de $1\text{ M}\Omega$. Les mesures sont enregistrées à l'aide d'un électromètre de type Keithly (Keithly, modèle 6517A) commandé par PC par le biais d'une carte d'interface IEEE-488. La tension de pointe V_p est toujours supérieure de 4 kV à la tension de grille.

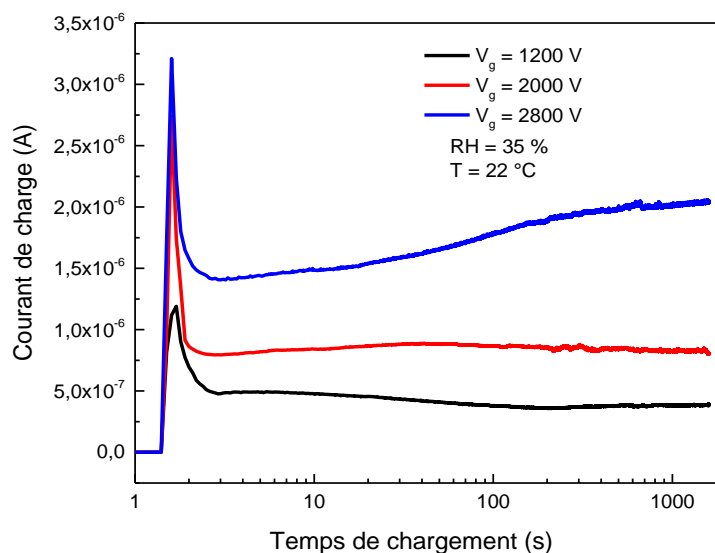


Figure III.17 : Evolution du courant de charge en fonction du temps de chargement pour trois différents niveaux de chargement de films de PI ($RH = 35\%$).

Nous avons remarqué que la dépendance temporelle du courant de chargement ne conserve pas la même évolution lorsqu'on fait varier la tension de grille appliquée. Les mesures du courant de charge montrent un pic initial dû à la charge de la capacité du film

(croissance initiale rapide du courant) [P.Molinié1999]. Pour deux valeurs de tensions de grille 1200 et 2000 V, le courant permanent (état stationnaire du courant de charge) est atteint après un courant transitoire rapide observé pour des temps courts. Cependant, le courant en régime permanent n'apparaît pas pour un niveau de chargement (tension de grille) élevé de 2800 V (le courant de charge augmente lentement avec le temps de chargement après une diminution significative (figure III.17)). Nous avons également noté que le pic initial du courant augmente avec l'augmentation de la tension de grille appliquée (la valeur du pic initial de courant mesurée est d'environ $1.2 \cdot 10^{-6}$ A à une tension de grille de 1200 V et augmente aux alentours de $3.2 \cdot 10^{-6}$ A pour une tension de grille de 2800 V). Ces résultats montrent que la quantité de charges déposées sur le film de PI dépend directement du niveau de la haute tension de chargement appliquée.

La figure III.18 montre la variation du courant de chargement enregistrée sur des films de PI pour deux différentes valeurs du taux d'humidité relative (RH = 35 et 90 %) et une tension de grille appliquée négative d'environ 2000 V.

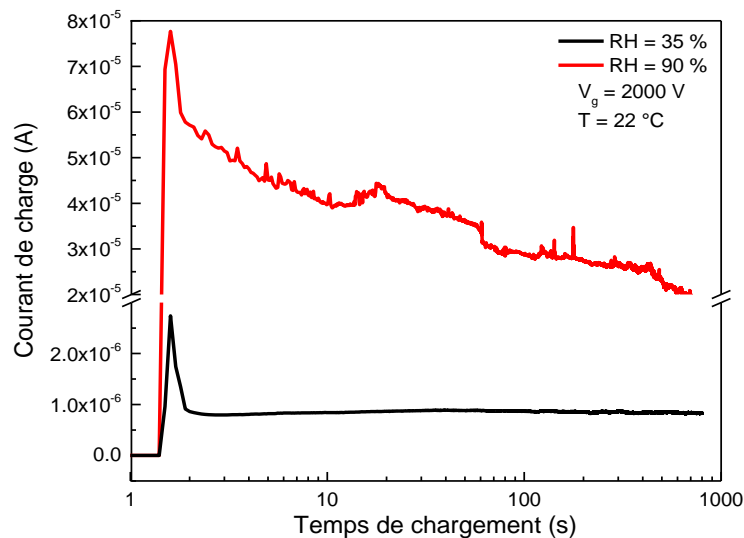


Figure III.18 : Variation temporelle du courant de charge en fonction du temps de chargement pour deux différentes valeurs du taux d'humidité relative ($V_g = 2000$ V).

Lorsqu'on augmente l'humidité relative, le pic initial du courant augmente et aucun courant en régime permanent n'apparaît (le courant de charge diminue avec le temps de chargement). Les résultats des mesures du courant de charge sont en bon accord avec l'évolution du déclin de potentiel de surface (figure III.15)). Cet effet est probablement dû à

l'augmentation de la mobilité des ions, résultant de la dissociation des molécules de l'eau sous l'effet du champ électrique élevé [H.Nouri2012].

III.6. Caractéristique de la distribution d'énergie des pièges

Afin de mieux comprendre l'influence des niveaux de chargement et d'humidité relative sur le comportement dynamique du déclin de potentiel de surface, la distribution de la densité de pièges en fonction du niveau d'énergie a été étudiée. En général, le déclin du potentiel de surface est associé au processus de piégeage et de dé-piégeage des porteurs de charges. Ce dernier est étroitement lié à la distribution d'énergie des pièges dans les polymères. Le tracé du produit de la dérivée du potentiel et du temps $tdV/dt = f(\log t)$ peut donner directement des informations sur la distribution de la densité de charges piégées dans les matériaux isolants [B.Tabti2014,H.Sjöstedt2009,P.Molinié2005]. Cette méthodologie permet de représenter des phénomènes lents qui resteraient indétectables en utilisant la méthode standard $V_s = f(t)$. Les caractéristiques $tdV/dt = f(\log t)$ dépendent du moment où les charges s'échappent des pièges. L'énergie de démarcation E_m dépendante du temps a été définie par Simmons et Tam [J.G.Simmons1973], comme la frontière entre les pièges vides et occupés. Avec l'augmentation du temps, l'énergie de démarcation E_m s'éloigne des pièges peu profonds près de la bande de conduction vers les pièges profonds. La relation entre le niveau d'énergie des pièges E_T et le temps du déclin est définie comme suit [J.G.Simmons1973, P.K.Watson1992,P.K.Watson1990,P.Llovera2004] :

$$E_T = E_c - E_m = k_B T \ln(\nu_{ATE} t) \quad (\text{III.1})$$

où E_c est le niveau d'énergie de la bande de conduction, k_B est la constante de Boltzmann ($k_B = 8.617342 \cdot 10^{-5}$ eV/K), T est la température ($T = 295$ K), ν_{ATE} est la fréquence des tentatives de sauts (attempt-to-escape frequency) et t le temps du déclin.

La dépendance du potentiel de surface $V_s = f(t)$ est décrite par une courbe décroissante dans le temps, qui peut être exprimée par la somme des exposants comme suit :

$$V_s(t) = \sum_{i=1}^n A_i \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \quad (\text{III.2})$$

où $V_s(t)$ est l'évolution du potentiel de surface en fonction du temps et τ_i le temps de relaxation.

Généralement, les pièges peu profonds et profonds sont susceptibles de contribuer au processus de dé-piégeage [G.Chen2009]. Par conséquent, une fonction exponentielle double

peut être utilisée pour ajuster les courbes du déclin de potentiel de surface pendant des temps plus longs [J.Hao2018] :

$$V_s(t) = A_{fast} \exp\left(-\frac{t}{\tau_{fast}}\right) + A_{slow} \exp\left(-\frac{t}{\tau_{slow}}\right) \quad (\text{III.3})$$

où A_{fast} et A_{slow} représentent le potentiel de surface initial après chargement dû aux charges capturées par les pièges peu profonds et profonds, respectivement et τ_{fast} et τ_{slow} représentent le temps de relaxation des charges capturées par les pièges peu profonds et profonds, respectivement. A l'instant $t = 0$, $A_{fast} + A_{slow} = V_o$ (V_o est le potentiel initial dû à la densité des charges déposées à la surface du film de PI après dépôt de charges par décharge couronne).

L'équation (III.3) permet de décrire l'évolution du potentiel de surface en fonction du temps de mesure pour des valeurs numériques des paramètres de simulation A_{fast} , A_{slow} , τ_{fast} et τ_{slow} déterminées préalablement (les données du déclin de potentiel de surface ont été ajustées avec une fonction exponentielle double par l'équation (III.3) et les paramètres correspondants ont été définis). Ces paramètres sont ajustés après plusieurs itérations de manière à obtenir la meilleure régression sur l'évolution du déclin de potentiel de surface. Nous avons utilisé le logiciel Origin pour l'ajustement des courbes du déclin de potentiel de surface dans notre travail.

III.6.1. Analyse du déclin de potentiel de surface pour différents niveaux de chargement initial

Comme on peut le voir sur la figure III.19, les données de test enregistrées sont en bon accord avec la courbe de régression utilisant une fonction exponentielle double sur tout le domaine temporel de la simulation exploré pour un déclin typique du potentiel de surface de $V_o \approx 1892$ V. Le déclin initial rapide du potentiel de surface doit être attribué au dé-piégeage des charges des pièges peu profonds, tandis que le déclin suivant plus lent du potentiel de surface est dû au dé-piégeage des charges des pièges profonds. Comme mentionné dans les références [J.Li2015,H.Mallem2018], les charges capturées dans des pièges profonds se dissipent généralement lentement, tandis que les charges capturées dans des pièges peu profonds s'échappent rapidement des pièges.

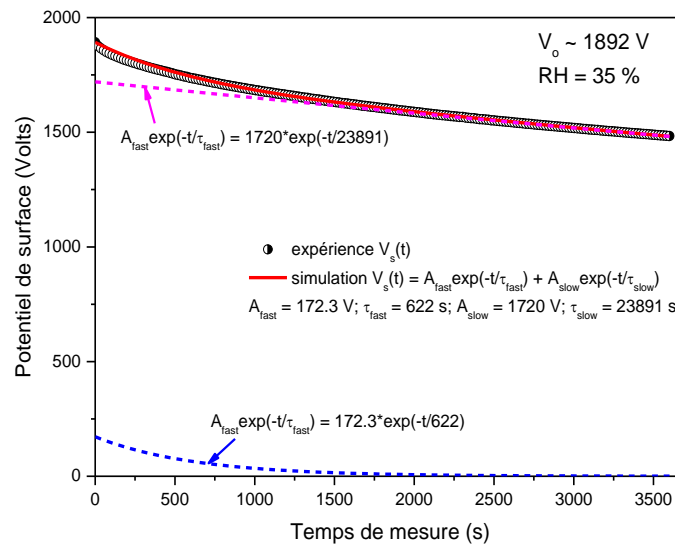


Figure III.19 : Déclin typique du potentiel de surface pour $V_0 \approx 1892$ V.

Les résultats et les paramètres de la simulation du déclin de potentiel de surface des films de PI pour trois différentes valeurs du potentiel de surface initial (1158, 1892 et 2646 V et $RH = 35\%$) sont montrés sur la [figure III.20](#) et le [Tableau III.1](#). Un bon accord est observé entre les résultats expérimentaux et les résultats de simulation sur tout le domaine temporel de la simulation exploré pour les trois différentes valeurs du potentiel de surface initial (le coefficient de détermination R^2 pour tous ces résultats de simulation est supérieur à 99 %).

Le comportement du déclin de potentiel de surface est contrôlé par le déclin des charges piégées dans des pièges à la fois peu profonds et profonds pour différentes valeurs du niveau de chargement. Le [Tableau III.1](#) montre que le temps de relaxation des pièges de charges peu profonds τ_{fast} et profonds τ_{slow} diminue avec l'augmentation du niveau de chargement. La vitesse du déclin liée aux pièges de charges peu profonds est plus grande que celle liée aux pièges profonds, ce qui signifie que les pièges de charges peu profonds décroissent toujours plus vite que les pièges de charges profonds. Les potentiels de surface initiaux après chargement dus aux charges capturées par les pièges peu profonds A_{fast} et profonds A_{slow} augmentent avec l'augmentation du niveau de chargement. Ces résultats peuvent être expliqués par l'augmentation de la proportion de pièges de charges peu profonds et profonds avec l'augmentation du niveau de chargement.

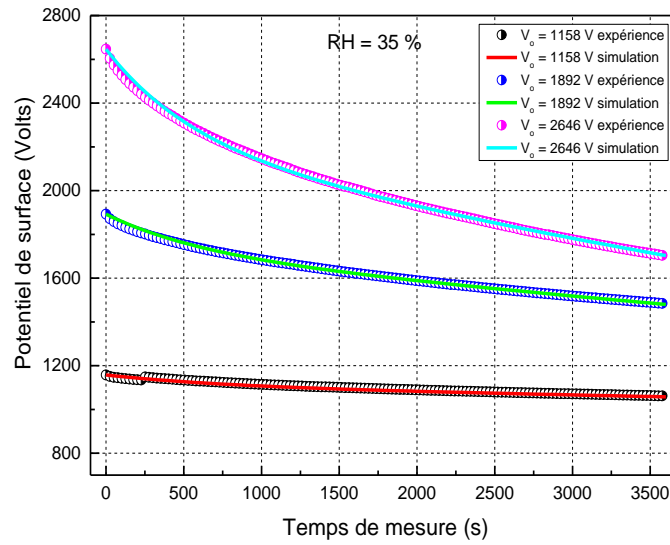


Figure III.20 : Résultats de la simulation du déclin de potentiel de films de PI pour différentes valeurs du potentiel initial.

V_o (V)	Equation de regression $V_s(t)$	τ_{fast} (s)	τ_{slow} (s)	(R-carré) R^2
1158	$V_s(t) = 50 \exp(-t/769) + 1107.8 \exp(-t/76923)$	769	76923	0.99934
1892	$V_s(t) = 172.3 \exp(-t/622) + 1720 \exp(-t/23891)$	622	23891	0.99719
2646	$V_s(t) = 420 \exp(-t/556) + 2226.2 \exp(-t/13423)$	556	13423	0.99964

Tableau III.1 : Paramètres de simulation selon l'équation (III.3) pour différentes valeurs du potentiel de surface initial.

La distribution de charges piégées déduite de la caractéristique du déclin de potentiel de surface mesurée dans un film de PI chargé négativement par décharge couronne pour trois différentes valeurs du niveau de chargement en fonction du niveau d'énergie des pièges dans un air relativement sec (RH = 35 %) est représentée sur la figure III.21.

Les paramètres de simulation montrés sur le Tableau III.1 et le modèle de pièges double (équation d'ajustement exponentiel double) [J.Li2015,H.Mallem2018] ont été utilisés pour calculer la distribution des charges piégées dans un film de PI. Les niveaux d'énergie des pièges sont calculés en utilisant l'équation (III.2) et la fréquence des tentatives de sauts été supposée égale à $\nu_{ATE} = 10^{12} \text{ s}^{-1}$ [Z.Ziari2011].

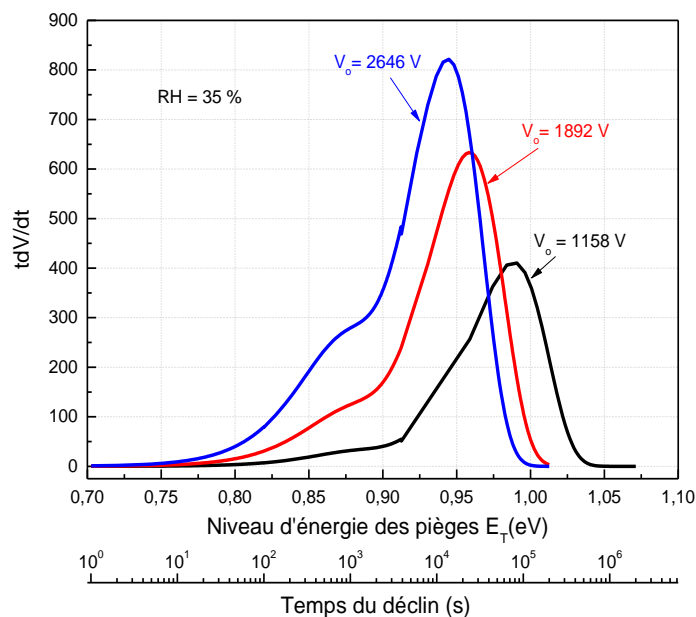


Figure III.21 : Distribution de la densité des charges piégées déduite du déclin de potentiel de surface dans des films de PI pour trois différentes valeurs du niveau de chargement.

Nous observons à partir de la [figure III.21](#) que la forme de la distribution de la densité de charges piégées en fonction du niveau d'énergie des pièges pour un potentiel de surface initial de 1892 V, est en bon accord avec les résultats rapportés précédemment pour le film de PI [\[B.X.Du2016\]](#). Le niveau de chargement initial a une grande influence sur la distribution des charges piégées. Lorsque le niveau de chargement augmente de 1158 à 2646 V, la densité de pièges maximale augmente tandis que le niveau d'énergie des pièges correspondant à la densité de pièges maximale diminue. La durée nécessaire aux charges pour s'échapper des pièges (intersection entre la courbe et l'axe des temps [\[B.X.Du2016\]](#)) diminue avec l'augmentation du niveau de chargement ([figure III.21](#)). Les résultats montrent que la cinétique du déclin de potentiel de surface est significativement affectée par le niveau de chargement, influant fortement le transport de charges. Par ailleurs, deux pics localisés à des différents niveaux d'énergie de pièges sont clairement observés sur la [figure III.21](#), ce qui est cohérent avec notre supposition de pièges peu profonds et profonds. Ces résultats sont en bon accord avec l'hypothèse proposée par d'autres travaux [\[B.X.Du2016, J.Li2015, H.Mallem2018, T.C.Zhou2011, Y.Han2018\]](#). Selon leurs résultats rapportés, dans chaque courbe, le pic avec un niveau d'énergie de pièges plus faible correspond aux charges capturées par les pièges peu profonds, tandis que, le pic avec un niveau d'énergie de pièges plus élevé correspond aux charges capturées par les pièges profonds. Le pic de pièges peu profonds est clairement observé pour un film de PI chargé à un potentiel de surface initial élevé

($V_o = 2646$ V) mais il n'est pas bien visible pour un film de PI chargé à un faible potentiel de surface initial ($V_o = 1158$ V).

Afin d'approfondir l'étude de la caractéristique de distribution d'énergie des charges piégées peu profonds et profonds, les courbes de distribution d'énergie des pièges illustrées sur la [figure III.21](#) sont divisées en deux pics distincts. La [figure III.22](#) montre la distribution typique de pièges pour un potentiel de chargement initial $V_o \approx 1892$ V à titre d'exemple pour montrer la manière de la division du pic. Comme le montre la [figure III.22](#), les pics des pièges peu profonds et profonds sont clairement indiqués.

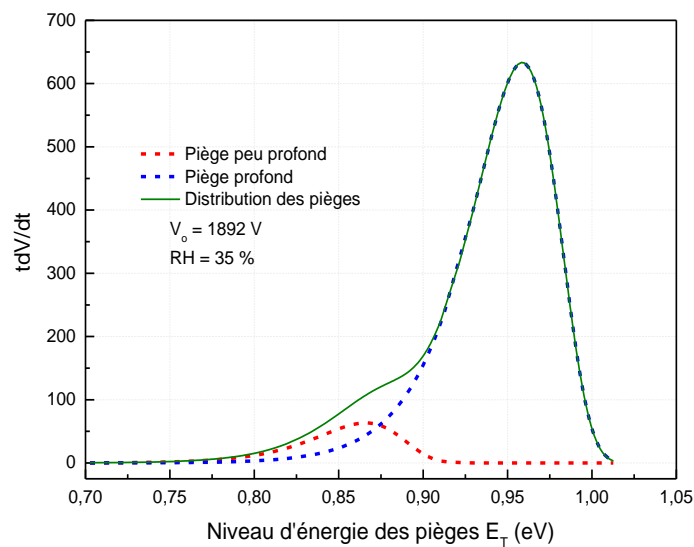


Figure III.22 : Distribution d'énergie des charges piégées des films de PI déduite de la mesure du déclin de potentiel de surface.

La distribution de charges piégées dans des pièges peu profonds et profonds à différentes valeurs du niveau de chargement initial sont représentées séparément sur les [figures III.23\(a\)](#) et [\(b\)](#), respectivement. On peut clairement voir que la densité des pièges peu profonds et profonds augmente avec l'augmentation du niveau de chargement initial. La densité des pièges de charges peu profonds est inférieure à celle des pièges de charges profonds quelle que soit la valeur du niveau de chargement. La [figure III.23\(a\)](#) montre que la propagation du niveau d'énergie peu profond est comprise entre 0.72 et 0.92 eV pour les trois différentes valeurs du potentiel de surface initial. L'augmentation du potentiel électrique appliqué induit une petite diminution du centre du niveau d'énergie des pièges peu profonds. Les pics de densité des pièges peu profonds sont situés à 0.871, 0.866 et 0.863 eV pour des niveaux de chargement de 1158, 1892 et 2646 V, respectivement. Simultanément, sur la

figure III.23(b), la propagation du niveau d'énergie des pièges profonds est de 0.84 à 1.05 eV pour $V_o = 1158$ V et de 0.79 à 1 eV pour $V_o = 2646$ V. Le centre du niveau d'énergie des pièges profonds diminue avec l'augmentation du niveau de chargement. Les valeurs des niveaux d'énergie des pièges étaient de l'ordre de 0.988 eV pour 1158 V, 0.959 eV pour 2892 V et 0.944 eV pour 2646 V. Il est clair que la profondeur moyenne du piège des charges piégées pour 1158 V est plus profonde que celle relative à 2646 V. Ces résultats montrent que la tension de chargement améliore le taux de remplissage des charges dans les pièges, ce qui conduit à l'amélioration du déclin de potentiel de surface.

La probabilité de dé-piégeage des charges piégées P_{de} est calculée comme suit [J.Li2015] :

$$P_{de} = v_{ATE} \exp\left(-\frac{E_T}{k_B T}\right) \quad (\text{III.4})$$

Les densités de charges piégées dans les pièges peu profonds et profonds se déplacent vers des niveaux d'énergie inférieurs lorsque le niveau de chargement augmente, indiquant une augmentation de la probabilité de dé-piégeage des porteurs de charges P_{de} (la diminution du niveau d'énergie E_T se traduira par la promotion de la probabilité de dé-piégeage). Cela signifie que les charges de surface accumulées pourraient facilement se dissiper, induisant un taux du déclin du potentiel de surface plus élevé.

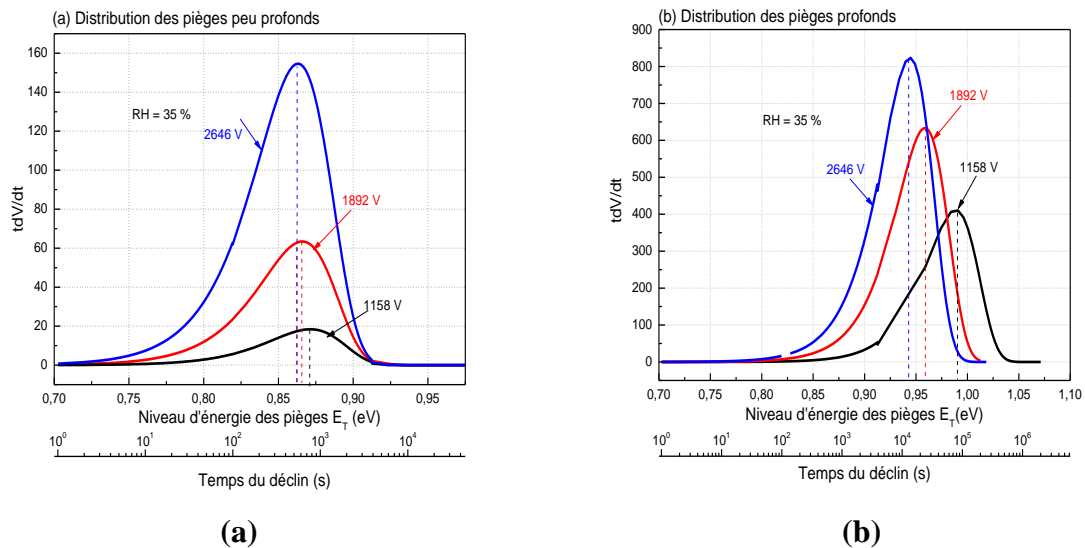


Figure III.23 : Distribution des charges piégées peu profondes (a) et profondes (b) des films de PI pour différentes valeurs du niveau de chargement initial.

III.6.2. Analyse du déclin de potentiel de surface pour différents niveaux d'humidité relative

Les résultats de simulation du déclin de potentiel de surface dans les films de PI et les paramètres de simulation pour différentes valeurs du taux d'humidité relative allant de 35 à 90 % sont illustrés sur la [figure III.24](#) et le [Tableau III.2](#), respectivement. Un bon accord est observé entre les résultats expérimentaux et les résultats de la simulation sur tout le domaine temporel de simulation exploré pour différentes valeurs du taux d'humidité relative (le coefficient de détermination R^2 pour tous ces résultats de simulation est supérieur à 99 %).

Le [Tableau III.2](#) montre que les temps de relaxation τ_{fast} et τ_{slow} pour les films de PI chargés à faible taux d'humidité (RH = 35 %) et à fort taux d'humidité (RH = 90 %) diffèrent remarquablement. De faibles valeurs du temps de relaxation pour des échantillons chargés à une humidité élevée sont apparemment caractérisées par la pénétration d'humidité dans le volume du film de PI. La quantité de charges piégées dans des pièges peu profonds A_{fast} augmente tandis que la densité de charges piégées dans des pièges profonds A_{slow} diminue avec l'augmentation de l'humidité relative. Comme $A_{fast} + A_{slow} = V_o$, la quantité de charges piégées dans des pièges profonds A_{slow} a une tendance complètement différente. Ces résultats peuvent être expliqués par l'augmentation de la proportion de charges piégées dans des pièges peu profonds avec l'augmentation de l'humidité relative.

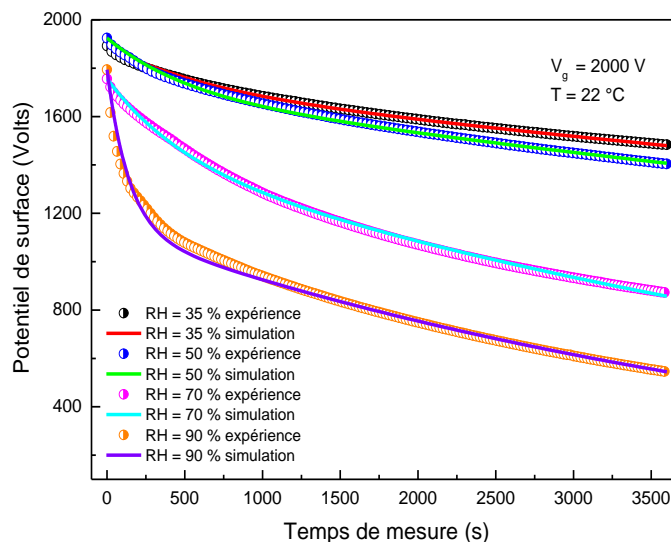


Figure III.24 : Résultats de simulation des courbes du déclin de potentiel de surface de films de PI obtenus à différentes valeurs du taux d'humidité relative RH ($V_g = 2000$ V).

RH (%)	équation de régression $V_s(t)$	$\tau_{fast}(s)$	$\tau_{slow}(s)$	(R-carré) R^2
35	$V_s(t) = 172.3 \exp(-t/622) + 1720 \exp(-t/23891)$	622	23891	0.99719
50	$V_s(t) = 229.4 \exp(-t/513) + 1695 \exp(-t/19308)$	513	19308	0.99497
70	$V_s(t) = 315 \exp(-t/476) + 1441 \exp(-t/6929)$	476	6929	0.9999
90	$V_s(t) = 660.6 \exp(-t/139) + 1133 \exp(-t/4918)$	139	4918	0.99826

Tableau III.2 : Paramètres de simulation selon l'équation (III.3) pour différentes valeurs du taux d'humidité relative.

Les distributions d'énergie des pièges dans les films PI chargés négativement par décharge couronne avec différentes valeurs du taux d'humidité relative sont illustrées sur la figure III.25. La distribution de pièges est calculée en utilisant les paramètres de régression donnés dans le Tableau III.2 et le modèle de pièges double pour étudier les comportements dynamiques du potentiel de surface de films de PI à différentes valeurs du taux d'humidité relative.

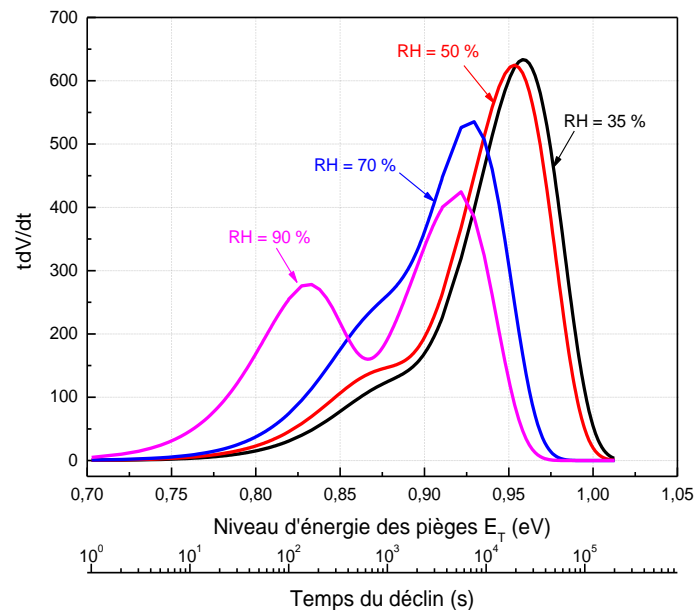


Figure III.25 : Distribution de la densité des charges piégées déduite du déclin de potentiel de surface dans des films de PI pour différentes valeurs du taux d'humidité relative RH (%).

L'augmentation de l'humidité relative de 35 à 90 % induit une augmentation de la densité de charges piégées dans des pièges peu profonds et une diminution de la densité de charges piégées dans des pièges profonds. La densité de pièges profonds reste supérieure à celle de pièges peu profonds quelle que soit la valeur de l'humidité relative. Nous avons

également remarqué que la forme de la distribution de la densité de charges piégée est modifiée pour $RH = 90\%$ (le pic de densité de charges piégée dans des pièges peu profonds apparaît clairement à 90% d'humidité relative). De plus, la position des pics liés aux pièges profonds et peu profonds se déplace vers des niveaux d'énergie inférieurs lorsque l'humidité relative augmente, indiquant la présence de pièges peu profonds. Ces derniers résultats suggèrent l'augmentation de la probabilité de dé-piégeage des porteurs de charges et l'augmentation de la conductivité du film. En effet, l'augmentation de l'injection de charges avec l'augmentation de l'humidité relative peut aider les charges à traverser plus facilement les pièges et donc entraînant la diminution du niveau d'énergie des pièges.

Afin d'illustrer la densité maximale du niveau d'énergie des pièges peu profonds et profonds, nous avons présenté séparément sur les figures III.26(a) et (b) la distribution de l'énergie des pièges peu profonds et profonds, respectivement. Il y a eu un changement significatif dans la distribution d'énergie des pièges dans l'air humide ($RH = 90\%$) par rapport à l'air relativement sec ($RH = 35\%$). Pour la distribution des pièges peu profonds, la figure III.26(a) montre que la propagation du niveau d'énergie peu profond se situe entre 0.72 et 0.93 eV pour $RH = 35\%$ et entre 0.7 et 0.88 eV pour $RH = 90\%$. Le centre du niveau d'énergie des pièges peu profonds diminue avec l'augmentation de l'humidité relative RH . Lorsque l'humidité relative est augmentée ($RH = 90\%$), le changement dans le centre du niveau d'énergie des pièges lié aux pièges peu profonds est plus élevé par rapport aux valeurs trouvées pour une faible humidité relative, expliquant le changement observé dans la forme de la distribution de la densité de charges piégées pour $RH = 90\%$ (figure III.25). Donc, l'humidité relative élevée joue un rôle important dans la modification des propriétés des pièges peu profonds. Pour les pièges profonds (figure III.26(b)), le centre du niveau d'énergie lié aux pièges profonds diminue avec l'augmentation de l'humidité relative. Les valeurs des niveaux d'énergie des pièges étaient de l'ordre de 0.959 eV en air relativement sec et de 0.918 eV en air humide. La différence de profondeur de piège (ou d'énergie d'activation) entre les échantillons d'essai à deux différentes valeurs du taux d'humidité (air relativement sec et humide) suggère que les sites de pièges sont modifiés en raison de l'augmentation de l'humidité relative. La diminution de l'énergie du piège avec l'augmentation de l'humidité relative convainc le nombre croissant de charges piégées dans des pièges peu profonds A_{fast} (Tableau III.2). Ces résultats indiquent que la vapeur d'eau absorbée dans le film de PI affecte le transport des charges d'espace.

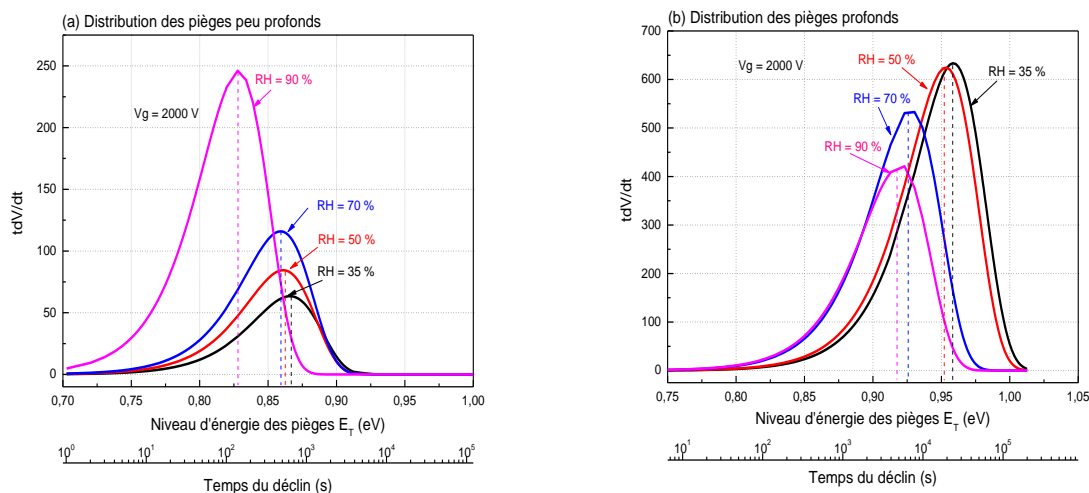


Figure III.26 : Distribution de la densité des charges piégées dans des pièges peu profonds et profonds des films de PI pour différentes valeurs du taux d'humidité relative.

Comme mentionné dans les références [T.C.Zhou2011,W.W.Shen2013], les pièges de charges sont formés par des défauts physiques dans la région amorphe et des défauts chimiques comme les résidus chimiques des chaînes macromoléculaires. Les défauts physiques dépendent principalement des pièges peu profonds qui sont associés au nombre de charges capturées par les pièges peu profonds (charges piégées dans des pièges peu profonds), tandis que, les défauts chimiques dépendent principalement des pièges profonds qui sont associés au nombre de charges capturées par les pièges profonds (charges piégées dans des pièges peu profonds) [G.Chen2009,J.Hao2018,T.C.Zhou2011]. Généralement, il existe trois états de l'eau dans les polymères (libre, modérément lié et fortement lié). Le film de PI aromatique contient une grande variété de groupes chimiques tels que l'éther (C–O–C), le cycle phényle (C–H), le groupe carbonyle (C=O), les cycles benzène, le groupe imide (C–N) et les groupes d'acide carboxylique COOH [Z.Ziari2013,B.X.Du2013,E.A.Plis2019]. Le mécanisme fondamental qui permet d'expliquer l'effet de l'humidité relative sur les caractéristiques du déclin de potentiel de surface est l'absorption d'eau en phase vapeur due à l'interaction entre les molécules d'eau dans le volume et ces groupes polaires. En conséquence, les lacunes d'hydrogène chargées négativement (dans les cycles benzéniques et les groupes carboxyles COOH) et les groupes NH^+ chargés positivement se forment comme des porteurs de charges libres offrant une conductivité plus élevée [A.M.Kamalov2016,K.Kaneko2005,S.Yasufuku2003]. La présence de molécules d'eau (modérément liées et fortement liées) crée également de nouveaux niveaux de piégeage pour les porteurs de charges [A.M.Kamalov2016,M.E.Borisova2018] résultant de la rupture induite par l'hydrolyse des imides cycliques dans le PI [B.X.Du2016,B.X.Du2015].

III.7. Dépendance en champ de la conductivité intrinsèque

En utilisant la mesure de la décroissance du potentiel de surface, il est possible d'estimer la conductivité intrinsèque des films de PI.

Selon la loi actuelle de Kirchhoff, le taux de densité de charge de surface $\sigma_s(C/m^2)$ est déterminé par la densité de courant de surface, la densité de courant de volume du matériau et la densité de courant de neutralisation des charges.

$$\frac{d\sigma_s(t)}{dt} = -j_s(t) - j_b(t) - j_g(t) \quad (\text{III.5})$$

où j_s est la densité de courant due à la conduction de surface, j_b est la densité de courant due à la conductivité de volume et j_g la densité de courant causée par les ions gazeux arrivant à l'interface gaz-solide et neutralisant les charges de surface.

Des travaux antérieurs effectués sur les distributions spatiales du potentiel de surface des films de PI mesurées à différents temps du déclin ont bien montré que la valeur moyenne du potentiel de surface diminue progressivement avec le temps en conservant à peu près la même forme du profil [Z.Ziari2011]. Dans ce cas, aucun étalement latéral de charge n'a été observé. Les phénomènes de diffusion qui peuvent résulter du gradient de concentration et des effets de champ électrique tangentiel n'ont pas contribué au déclin du potentiel de surface dans ce cas. De plus, la conservation de la forme indique qu'il n'y avait pas de neutralisation significative de la charge par les ions atmosphériques [D.K.DasGupta1992]. De plus, selon Llovera et al. [P.Llovera2004], deux phénomènes physiques peuvent être théoriquement responsables du retour de potentiel : l'injection de charges et la polarisation dipolaire lente. La comparaison entre le déclin et le retour de potentiel montre que la valeur de la chute de potentiel est supérieure à celle du retour [Z.Ziari2011]. La faible valeur du potentiel de retour par rapport à la chute de potentiel avant neutralisation suggère que la relaxation dipolaire peut être faible et ne joue donc pas un rôle important dans le processus du déclin.

Dans notre cas, la conduction de surface et la neutralisation de charges par les ions atmosphériques sont négligeables. Par conséquent, en éliminant le premier et le dernier terme de l'équation (III.5), le taux de densité de charge de surface peut être exprimé comme suit [S.Alam2019] :

$$\frac{d\sigma_s(t)}{dt} = -j_b = -\gamma \frac{V_s(t)}{L} \quad (\text{III.6})$$

où γ est la conductivité diélectrique, $V_s(t)$ est le taux de potentiel de surface et L l'épaisseur du film.

Une relation entre les variations du déclin de potentiel de surface $V_s(t)$ en configuration du circuit ouvert (fournie par la sonde de Monroe vibrante de mesure) et la densité de charge de surface $\sigma_s(C/m^2)$ peut être définie par l'équation suivante [S.Alam2019,D.Min2012, J.R.S.S.Kumara2016] :

$$V_s(t) = \frac{\sigma_s(t).L}{\epsilon_0 \epsilon_r} \quad (\text{III.7})$$

où $\epsilon_0 = 8.854187817 \times 10^{-12}$ F/m est la permittivité du vide et $\epsilon_r = 3.4$ la permittivité relative du matériau. En combinant les équations (III.6) and (III.7), la relation entre la conductivité intrinsèque et le taux du déclin de potentiel de surface peut être obtenue comme suit [S.Alam2019,J.R.S.S.Kumara2016,R.Coelho2001] :

$$\gamma = -\frac{\epsilon_0 \epsilon_r}{V_s(t)} \frac{dV_s(t)}{dt} \quad (\text{III.8})$$

La dépendance en champ électrique de la conductivité intrinsèque volumique, pour trois différentes valeurs du potentiel de surface initial (1158, 2892 et 2646 V) avec une humidité relative d'environ 35 % ($T = 22$ °C) est montrée sur la figure III.27.

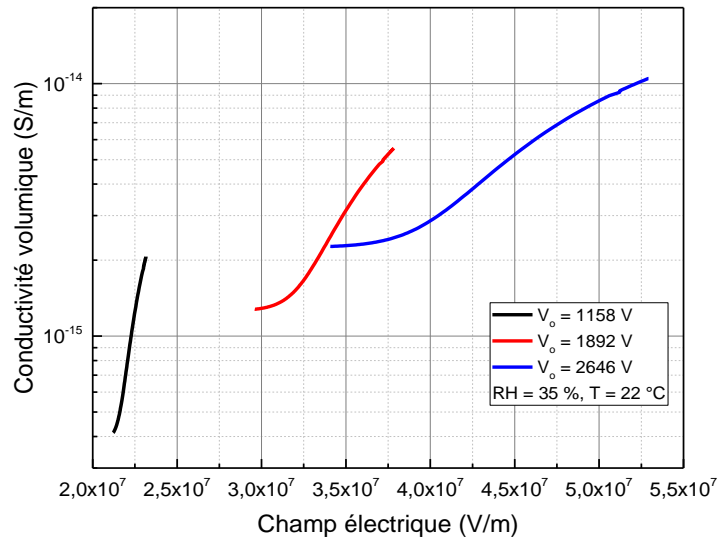


Figure III.27 : Dépendance en champ de la conductivité volumique de films de PI pour différentes valeurs du niveau de chargement (RH = 35 %).

Nous observons que les valeurs de la conductivité volumique obtenues sont en bon accord avec celles généralement rapportées dans la littérature sur les films de PI dans la

gamme d'intensité du champ électrique explorée [D.Min2012]. Nous remarquons également que la conductivité volumique du film PI augmente avec l'augmentation de l'intensité du champ électrique qui est liée au champ électrique à l'intérieur du matériau. Les valeurs de conductivité se décalent vers des valeurs plus élevées du champ électrique indiquant une augmentation de la conductivité électrique du film. Ce résultat confirme l'hypothèse selon laquelle le déclin du potentiel de surface est principalement contrôlé par la conduction volumique. La dépendance en champ de la conductivité volumique observée peut se produire en raison du transport de charges à travers le matériau qui est considéré comme étant associé au piégeage et au dé-piégeage des porteurs de charges.

La figure III.28 montre la dépendance en champ électrique de la conductivité électrique du film de PI déduite du déclin de potentiel de surface pour quatre différentes valeurs du taux d'humidité relative (RH = 35, 50, 70 et 90 %) avec une tension de grille négative appliquée V_g d'environ 2000 V.

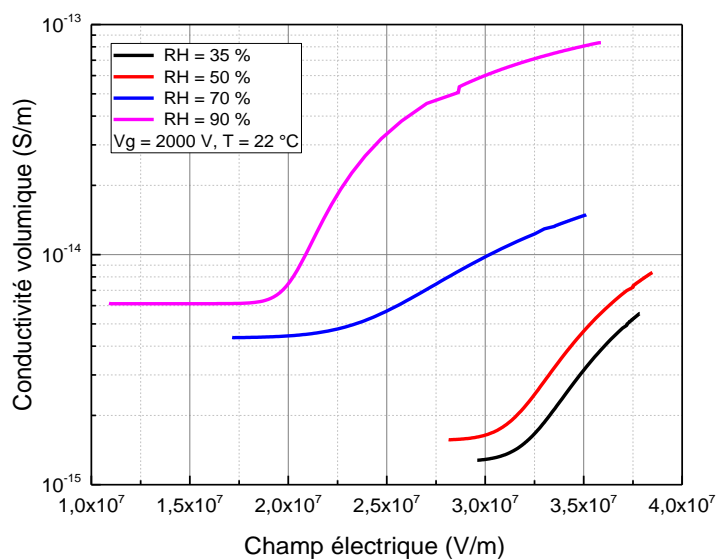


Figure III.28 : Dépendance en champ électrique de la conductivité volumique de film de PI pour différentes valeurs du taux d'humidité relative ($V_g = 2000$ V).

Nous constatons que les dépendances de $\gamma(E)$ pour différentes valeurs du taux d'humidité relative sont assez différentes, suivant le comportement des courbes du déclin de potentiel de surface présentées sur la figure III.15. La conductivité volumique du film de PI augmente avec l'augmentation du taux d'humidité relative (la conductivité calculée à 90 % d'humidité relative est environ 10 fois supérieure à celle calculée à 35 % d'humidité relative). Cette différence est principalement liée à la distribution énergétique et spatiale des pièges

dans les films de PI. Galichin et *al.* [N.A.Galichin2007] ont également confirmé l'augmentation de la conductivité à un taux d'humidité relative élevé. Nous avons également noté sur la [figure III.28](#) que la conductivité volumique augmente plus clairement à une humidité relative élevée lorsque l'intensité du champ électrique est élevée. Ceci s'explique par le fait que les molécules de l'eau libres dans la structure de PI améliorent la mobilité des porteurs provoquant l'augmentation de la conductivité volumique [A.M.Kamalov2016] (la dissociation des molécules de l'eau fournit une forte concentration de protons pouvant influencer la conductivité du film de PI), ce qui conduit à l'augmentation du taux du déclin de potentiel de surface.

III.8. Conclusion

Les effets des deux niveaux du potentiel de chargement initial V_0 et de l'humidité relative sur les caractéristiques du déclin de potentiel de surface des films de Kapton HN PI chargés par effet couronne et les mesures du courant de charge ont été étudiés expérimentalement dans ce chapitre.

En utilisant différents niveaux du potentiel de chargement, les résultats que nous avons obtenus indiquent que la décroissance du potentiel de surface est fortement affectée par l'humidité relative. Le taux du déclin du potentiel de surface augmente avec l'augmentation de l'humidité relative.

Les évolutions du courant de charge sont bien corrélées avec les évolutions du déclin de potentiel de surface. L'augmentation de l'humidité relative et du potentiel de chargement initial V_0 induit une augmentation du niveau de courant conduisant à l'augmentation du taux de déclin de potentiel de surface.

La distribution de la densité de l'énergie des pièges dans un film de PI calculée par le modèle de pièges double montre une augmentation de la densité des pièges peu profonds ainsi qu'une diminution de la densité des pièges profonds lorsque l'humidité relative augmente. L'augmentation de la tension de chargement et du niveau d'humidité relative induit un déplacement de la distribution des pièges peu profonds et profonds vers des niveaux d'énergie inférieurs, indiquant une augmentation de la probabilité de dé-piégeage des porteurs de charges et par conséquent une augmentation de la conductivité électrique.

Références du chapitre III

- [S.Alam2019] S. Alam, Y.V. Serdyuk, S.M. Gubanski, “Field-dependent electric conductivities of silicone rubbers deduced from measured currents and surface potential decay characteristics”, *International Journal of Polymer Analysis and Characterization*, Vol. 24, No. 1, pp. 54-62, 2019.
- [F.Beloucif2017] F. Beloucif, “Analyse et prédiction des seuils d’apparition des décharges couronnes dans les gaz isolants en haute tension”, Thèse de Doctorat, Université 8 Mai 1945 Guelma, Octobre 2017.
- [M.E.Borisova2018] M.E. Borisova, A.M. Kamalov, L.D. Orlov, V.E. Smirnova, “Charge relaxation in partially crystalline R-BAPB polyimides under conditions of elevated humidity”, *St. Petersburg State Polytechnical University Journal : Physics and Mathematics*, Vol. 11, No. 2, pp. 88-95, 2018.
- [A.Bouteffaha2016] A. Bouteffaha, “Etude expérimentale et numérique de la décharge couronne dans des configurations d’électrodes de types « triode »”, Thèse de Doctorat, Université Djillali Liabes de sidi Bel-Abbes, 2016.
- [G.Chen2009] G. Chen, Z. Xu, “Charge trapping and detrapping in polymeric materials”, *Journal of Applied Physics*, Vol. 106, No. 12, 123707 (5pp), 2009.
- [R.Coelho2001] R. Coelho, B. Aladenize, N. Cornet, “On the transient potential in insulators”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 8, No. 5, pp. 760-770, October 2001.
- [D.K.DasGupta1992] D.K. Das Gupta, “Electrical properties of surfaces of polymeric insulators”, *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, Vol. 27, pp. 909-923, October 1992.
- [B.X.Du2013] B.X. Du, Jie Li, Wei Du, “Surface charge accumulation and decay on direct-fluorinated polyimide/Al₂O₃ nanocomposites”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 20, No. 5, pp. 1764-1771, October 2013.
- [B.X.Du2015] B.X. Du, Y.G. Guo, “Effect of Surface fluorination on dielectric properties and surface charge behavior of water absorbed polyimide film”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 22, No. 3, pp. 1369-1375, June 2015.
- [B.X.Du2016] B.X. Du, Z.Y. He, Qiang Du, “Effects of water absorption on surface charge and dielectric breakdown of polyimide/Al₂O₃ nanocomposite films”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 23, No. 1, pp. 134-141, February 2016.
- [N.A.Galichin2007] N.A. Galichin, M.E. Borisova, “The influence of elevated humidity on the stability of the electret state in polyimide films”, *Russian Electrical Engineering*, Vol. 78, No. 3, pp. 129-132, 2007.
- [Y.Han2018] Y. Han, S. Li, D. Min, “Trap energy distribution in polymeric insulating materials through surface potential decay method”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 25, No. 2, pp. 639-648, April 2018.
- [J.Hao2018] J. Hao, R. Zou, R. Liao, L. Yang, Q. Liao, “New method for shallow and deep trap distribution analysis in oil impregnated insulation paper based on the space charge detrapping”, *Energies*, Vol. 11, No. 2, 271 (16pp), 2018.
- [L.Herous2009] L. Herous, M. Remadnia, M. Kachi, M. Nemamcha, “Decay of electrical charges on polyethylene terephthalate surface”, *Journal of Engineering Science and Technology, Review*, Vol. 2, No. 1, pp. 87-90, 2009.

[M.Kachi2014] M. Kachi, L. Dascalescu, “Mécanismes d’écoulement des charges à la surface des polymères granulaires”, *Mediterranean Journal of Modeling and simulation*, MJMS 02, pp. 001-007, 2014.

[A.M.Kamalov2016] A.M. Kamalov, M.E. Borisova, “The influence of moisture on charge relaxation in modified polyimide films”, *St. Petersburg Polytechnical University Journal : Physics and Mathematics*, Vol. 2, No. 3, pp. 188-192, 2016.

[K.Kaneko2005] K. Kaneko, T. Ozaki, E. Nakane, T. Mizutani, “Effects of absorbed water on space charge and conduction phenomena in polyimide films”, *IEEE Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP’05)*, Nashville, TN, USA, pp. 657-660, 2005.

[J.R.S.S.Kumara2016] J.R.S.S. Kumara, Y.V. Serdyuk, S.M. Gubanski, “Surface potential decay on LDPE and LDPE/Al₂O₃ nano-composites: Measurements and modeling”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 23, No. 6, pp. 3466-3475, December 2016.

[J.Li2015] J. Li, F. Zhou, D. Min, S. Li, R. Xia, “The energy distribution of trapped charges in polymers based on isothermal surface potential decay model”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 22, No. 3, pp. 1723-1732, June 2015.

[P.Llovera2004] P. Llovera, P. Molinié, “New methodology for surface potential decay measurements: Application to study charge injection dynamics on polypropylene films”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 11, No. 6, pp. 1049-1056, December 2004.

[H.Mallem2018] H. Mallem, Z. Ziari, S. Sahli, “Temperature effect on electrical characteristics of negative DC corona charged polyimide films”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 25, No. 2, pp. 421-427, April 2018.

[H.Mallem2019] H. Mallem, “Etude de l’effet de la température sur les variations du potentiel de surface d’un film de polyimide soumis à une décharge couronne”, *Thèse de Doctorat, Université Frères Mentouri, Constantine 1, Juillet 2019.*

[H.Mellouki2019] H. Mellouki, “Charge et décharge des matériaux isolants”, *Thèse de Doctorat, Université 8 Mai 1945 Guelma, 2019.*

[D.Min2012] D. Min, M. Cho, A.R. Khan, S. Li, “Surface and volume charge transport properties of polyimide revealed by surface potential decay with genetic algorithm”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 19, No. 2, pp. 600-608, April 2012.

[P.Molinié1999] P. Molinié, “Charge injection in corona-charged polymeric films : potential decay and current measurements”, *Journal of Electrostatics*, Vol. 4, pp. 265-273, 1999.

[P.Molinié2005] P. Molinié, “Measuring and modeling transient insulator response to charging: the contribution of surface potential studies”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 12, No. 5, pp. 939-950, October 2005.

[H.Nouri2012] H. Nouri, N. Zouzou, E. Moreau, L. Dascalescu, Y. Zebboudj, “Effect of relative humidity on current-voltage characteristics of an electrostatic precipitator”, *Journal of Electrostatics*, Vol. 70, No. 1, pp. 20-24, 2012.

[E.A.Plis2019] E.A. Plis, D.P. Engelhart, R. Cooper, W.R. Johnston, D. Ferguson, R. Hoffmann, “Review of radiation-induced effects in polyimide”, *Applied Sciences*, Vol. 9, No. 10, 1999 (23pp), 2019.

- [A.Reguig2017] A. Reguig, “Contribution à l’étude expérimentale et numérique de la décharge couronne dans différents types de configurations d’électrodes”, Thèse de Doctorat, Université Djillali Liabes de sidi Bel-Abbes, Juin 2017.
- [M.Remdania2007] M. Remdania, M. Nemamcha, L. Herous, “Etude du déclin de potentiel d’une surface chargée par une décharge électrique de type couronne”, 4th International Conference on Computer Integrated Manufacturing CIP’2007, Sétif, Algeria, 03-04 November 2007.
- [K.Rouagdia2015] K. Rouagdia, “Analyse de la dynamique des charges à la surface des polymères”, Thèse de Doctorat, Université 8 Mai 1945 Guelma, Décembre 2015.
- [S.Salhi2003] S. Salhi, A. Bellel, Z. Ziari, A. Kahlouche, Y. Segui, “Measure and analysis of potential decay in polypropylene films after negative corona charge deposition”, Journal of Electrostatics, Vol. 57, No. 2, pp. 169-181, 2003.
- [W.W.Shen2013] W.W. Shen, H.B. Mu, G.J. Zhang, J.B. Deng, D.M. Tu, “Identification of electron and hole trap based on isothermal surface potential decay model”, Journal of Applied Physics, Vol. 113, 083709 (6pp), February 2013.
- [J.G.Simmons1973] J.G. Simmons, M.C. Tam, “Theory of isothermal currents and the direct determination of trap parameters in semiconductors and insulators containing arbitrary trap distributions”, Physical Review B, Vol. 7, No. 8, pp. 3706-3713, 1973.
- [H.Sjöstedt2009] H. Sjöstedt, S.M. Gubanski, Y.V. Serdyuk, “Charging characteristics of EPDM and silicone rubbers deduced from surface potential measurements”, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 16, No. 3, pp. 696-703, June 2009.
- [B.Tabti2014] B. Tabti, B. Yahiaoui, B. Bendahmane, L. Dascalescu, “Surface potential decay dynamic characteristics of negative-corona-charged fibrous dielectric materials”, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 21, No. 2, pp. 829-835, April 2014.
- [R.E.Vosteen1983] R.E. Vosteen, R. Bartnikas, “Electrostatic charge measurements”, in Engineering Dielectrics, “Electrical properties of solid insulating materials : Molecular structure and electrical behavior”, Chapitre 6, ASTM STP 783, pp. 481-489, 1983.
- [P.K.Watson1990] P.K. Watson, “The energy distribution of localized states in polystyrene, based on isothermal discharge measurements”, Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 23, pp. 1479-1484, 1990.
- [P.K.Watson1992] P.K. Watson, F.W. Schmidlin, R.V. Ladonna, “The trapping of electrons in polystyrene”, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 27, No. 4, pp. 680-686, August 1992.
- [S.Yasufuku2003] S. Yasufuku, “Dielectric and thermoanalytical behavior and spectroscopic and kinetic evaluation of water in heat-resistant electrical insulating films”, IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 19, No. 6, pp. 23-39, 2003.
- [T.C.Zhou2011] T.C. Zhou, G. Chen, R.J. Liao, Z. Xu, “Charge trapping and detrapping in polymeric materials: Trapping parameters”, Journal of Applied Physics, Vol. 110, No. 4, 043724 (6pp), 2011.
- [Z.Ziari2011] Z. Ziari, S. Sahi, A. Bellel, Y. Segui, P. Raynaud, “Simulation of surface potential decay of corona charged polyimide”, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 18, No. 5, pp. 1408-1415, October 2011.

[Z.Ziari2013] Z. Ziari, I. Nouicer, S. Sahli, S. Rebiai, A. Bellel, Y. Segui, P. Raynaud, “Chemical and electrical properties of HMDSO plasma coated polyimide”, *Vacuum*, Vol. 93, pp. 31-36, July 2013.

Chapitre IV

Etude et simulation d'une décharge couronne en configuration pointe-plan

Chapitre IV : Etude et simulation d'une décharge couronne en configuration pointe-plan

IV.1. Introduction

La décharge couronne est un phénomène de décharge électrique partielle qui nécessite deux électrodes très dissymétriques. Elle se produit quand un champ électrique à la surface de l'électrode couronne dépasse un seuil d'ionisation provoquant la décomposition des atomes d'air en ions, électrons et molécules métastables [G.Karman2013,S.Karman2009]. La décharge couronne est devenue un domaine actif de recherche en raison de ses diverses applications industrielles utiles, telles que le traitement de surfaces des polymères, la protection de l'environnement, la séparation électrostatique, la décontamination et la stérilisation des surfaces des polymères, la dépollution, la génération d'ozone et les écrans plasma. Elle a plusieurs configurations selon le domaine d'applications. Parmi les configurations utilisées pour générer une décharge couronne, citons les configurations pointe-plan, multi pointes-plan, fil-plan, fil-cylindre, etc... [Y.Bourek2016,N.Tran2008,P.Sattari2014,J.Chen2002,M.Quast2009,A.Bendaoud2008,A.Bouteffaha2015].

Du fait de sa grande utilité dans différents domaines cités précédemment, plusieurs travaux ont été réalisés dans le cadre de la modélisation de la décharge couronne pour améliorer la compréhension des processus fondamentaux des décharges électriques dans les gaz en particulier dans l'air [K.Adamiak2004,K.P.Sattari2010,A.Settaouti2011]. Le développement de la décharge électrique jusqu'au claquage dépend d'un ensemble de phénomènes physiques complexes, il est régi par des mécanismes fortement non-linéaires et multi-échelles, à la fois dans le temps et dans l'espace [Y.Bourek2016].

L'objectif de ce chapitre est la simulation par COMSOL Multiphysics d'une décharge couronne positive en configuration pointe-plan en utilisant un modèle mathématique se basant sur l'approximation dérive-diffusion afin de comprendre le mécanisme et les phénomènes physiques de la décharge couronne positive continue dans l'air.

Dans ce chapitre, nous présentons le modèle de la décharge couronne que nous avons utilisé ainsi que les résultats de la simulation en 2D axisymétrique d'une décharge couronne en configuration pointe-plan. Ce modèle permet de résoudre l'équation de continuité des particules chargées pour obtenir la densité de chaque espèce (électrons, ions positifs et négatifs), couplé avec l'équation de Poisson afin d'obtenir les distributions spatio-temporelles du potentiel et du champ électrique. Nous avons utilisé pour la résolution du système

d'équations aux dérivées partielles la méthode des éléments finis sous le solveur COMSOL Multiphysics. Notant que ce type de décharge est disponible au sein du Laboratoire Microsystèmes et Instrumentation (LMI) [Z.Ziari2008].

IV.2. Description du modèle de la décharge couronne

La complexité des mécanismes des décharges électriques, nécessite la connaissance et la compréhension des phénomènes physiques responsables du développement d'une décharge électrique. La définition ou le choix d'un modèle pour étudier l'évolution d'une décharge électrique est donc particulièrement délicat à cause de la complexité du phénomène. Le modèle mathématique décrivant une telle décharge électrique doit reproduire aussi finement que possible les phénomènes physiques mis en jeu dans la décharge étudiée. Cette représentation mathématique est liée au choix d'approximations et d'hypothèses qui rendent le problème soluble. La modélisation de la décharge couronne consiste à résoudre numériquement le système d'équations couplées comprenant l'équation de Poisson associée au potentiel électrique, couplée aux équations de conservation des différentes espèces ioniques.

IV.2.1. Les équations du modèle (approximation dérive-diffusion)

Le modèle que nous avons utilisé dans notre travail comporte les équations de continuité, avec l'approximation du champ local, couplées avec l'équation de Poisson, présentées ci-dessous [G.E.Georghiou1999] :

a. Equation de continuité

Pour simuler le développement de la décharge couronne, un modèle fluide a été utilisé pour le transport des espèces. La justification d'un tel choix est que le libre parcours moyen des particules ($< 1 \mu\text{m}$ pour les électrons) est très petit devant les dimensions du système de l'ordre du centimètre [J.C.Mateo-Velez2006].

Les particules interagissent essentiellement entre elles et se comportent comme un fluide. Ainsi, le mouvement des espèces composant le plasma est décrit par un modèle de type dérive-diffusion. Il s'agit d'un système d'équations de convection/diffusion non linéaires avec des termes sources correspondant à la cinétique chimique de la création/destruction des espèces ionisées [G.Quinio2005].

L'équation de continuité représente la conservation de la densité de charge décrivant le premier moment de l'équation de Boltzmann, elle s'écrit sous la forme :

$$\frac{\partial n_k}{\partial t} + \nabla \cdot \Gamma_k = S_k \quad (\text{IV.1})$$

où n_k est la densité de particules chargées (électrons, ions positifs ou négatifs), Γ_k est le flux et S_k le terme source de l'équation de continuité, il rend compte des créations (ionisation) et des pertes (attachement, recombinaison) des particules chargées.

Le flux des particules Γ_k dans l'équation (IV.1) se décompose en deux termes, à savoir les flux de dérive et de diffusion :

$$\Gamma_k = n_k w_k - D_k \nabla n_k \quad (\text{IV.2})$$

Son premier terme donne le flux dû au champ électrique (mouvement de dérive). Le deuxième terme représente le flux dû au gradient de concentration (diffusion).

Le terme source S_k dans l'équation (IV.1) représente les différents processus en terme de taux de réactions, dus aux diverses réactions dans lesquelles les espèces sont détruites ou créées.

Pour un plasma composé d'électrons n_e , d'ions positifs n_p et d'ions négatifs n_n , les équations de continuité sont [P.Seimandi2010,L.Zeghichi2010] :

Equation de continuité pour les électrons :

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} + \nabla \cdot (-n_e w_e - D_e \nabla n_e) = S_e \quad (\text{IV.3})$$

Equation de continuité pour les ions positifs :

$$\frac{\partial n_p}{\partial t} + \nabla \cdot (n_p w_p - D_p \nabla n_p) = S_p \quad (\text{IV.4})$$

Equation de continuité pour les ions négatifs :

$$\frac{\partial n_n}{\partial t} + \nabla \cdot (-n_n w_n - D_n \nabla n_n) = S_n \quad (\text{IV.5})$$

où $n_{e,p,n}$ représentent respectivement la densité des électrons, des ions positifs et des ions négatifs ;

$w_{e,p,n}$ sont respectivement les vitesses de dérive des électrons, des ions positifs et des ions négatifs ;

$D_{e,p,n}$ représentent respectivement les coefficient de diffusion des électrons, des ions positifs et des ions négatifs ;

$S_{e,p,n}$ représentent respectivement le terme source de la production ou perte des électrons, des ions positifs et des ions négatifs.

Les termes sources dans les équations (IV.3), (IV.4) et (IV.5) comme ont été cités précédemment, sont les sommes des réactions qui existent dans le processus de couronne. La création des électrons, des ions positifs et négatifs, est régi par l'impact d'ionisation et le coefficient d'attachement.

Ces réactions sont définies par :

$$S_e = R_o + R_{ion} - R_{rec}^{ei} - R_{att} \quad (IV.6)$$

$$S_p = R_o + R_{ion} - R_{rec}^{ii} - R_{rec}^{ei} \quad (IV.7)$$

$$S_n = R_{att} - R_{rec}^{ii} \quad (IV.8)$$

où R_o est le taux de photo-ionisation, R_{ion} est le taux d'ionisation, R_{att} est le taux d'attachement des électrons sur une particule neutre pour donner des ions négatifs, R_{rec}^{ei} est le taux de recombinaison électron-ion et R_{rec}^{ii} le taux de recombinaison ion-ion.

Le taux d'ionisation R_{ion} est calculé comme suit :

$$R_{ion} = \alpha n_e w_e \quad (IV.9)$$

où α est le coefficient d'ionisation.

Le taux d'attachement des électrons avec les particules neutres est le produit entre le coefficient d'attachement η , la densité d'électron n_e et la vitesse des électrons w_e . Il est donné par l'équation suivante :

$$R_{att} = \eta n_e w_e \quad (IV.10)$$

Les taux de recombinaison ion-ion R_{rec}^{ii} et électron-ion R_{rec}^{ei} sont donnés par les relations suivantes :

$$R_{rec}^{ii} = \beta_{ii} n_p n_n \quad (IV.11)$$

$$R_{rec}^{ei} = \beta_{ei} n_e n_p \quad (IV.12)$$

où β_{ii} et β_{ei} sont respectivement les coefficients de recombinaison ion-ion et électron-ion.

Les coefficients de transport des électrons (mobilité et coefficient de diffusion) ainsi que les coefficients de réaction (coefficients d'ionisation et d'attachement) dépendent de la valeur du champ électrique réduit E/N . Ces coefficients sont obtenus par le code numérique Bolsig Boltzmann [P.Seimandi2010]. A chaque valeur du champ électrique correspond un jeu de valeurs des coefficients de réaction d'ionisation et d'attachement mais également des coefficients de transport des électrons (mobilité et coefficient de diffusion).

Un certain nombre de coefficients sont choisis indépendants du champ électrique. C'est le cas du coefficient de recombinaison ion-ion et des mobilités ioniques.

Le coefficient de diffusion d'ions positifs et négatifs est défini par la formule suivante :

$$D_i = \mu_i k_B \frac{T_i}{q} \quad (\text{IV.13})$$

où T_i , μ_i , k_B et q sont respectivement la température d'ion correspondant, la mobilité des ions, la constante de Boltzmann et la valeur absolue de la charge élémentaire de l'électron ($q = 1.6 \cdot 10^{-19} \text{ C}$).

La température d'ion peut être évaluée par la relation suivante :

$$k_B T_i = k_B T_g + \frac{1}{3} (m_i + m) w_i^2 \quad (\text{IV.14})$$

m_i et m sont respectivement les masses des ions et de la molécule du gaz. T_g est la température de l'air et w_i représente la vitesse de dérive des ions sous l'action du champ électrique.

Quelques paramètres dans notre modèle dépendent de la pression de l'air et de la température, par exemple la densité du gaz N et les mobilités des ions μ_n et μ_p . N est la densité du gaz qui est exprimée par :

$$N = \frac{P}{k_B T} \quad (\text{IV.15})$$

P et T sont respectivement la pression et la température du gaz.

Les valeurs des mobilités ioniques sont généralement divisées par la densité relative de l'air δ calculé comme suit [L.Chen2014] :

$$\delta = \frac{T_o P}{T P_o} \quad (\text{IV.16})$$

La température T_o et la pression P_o sont égales respectivement à 293 K et 1 atm (1 atm = $1.01325 \cdot 10^5$ Pa).

b. Equation de Poisson

La mise en équation d'un problème lié aux décharges électriques serait totalement incomplète si elle ne prenait pas en compte le calcul du champ électrique. Ce dernier apparaît comme une grandeur qui gouverne entièrement l'évolution des densités des espèces chargées à travers l'expression de la vitesse de dérive et du terme source.

L'équation de Poisson établit un rapport entre les variations du potentiel électrostatique ϕ et la densité de charge locale.

$$\nabla \cdot (\epsilon_0 \epsilon_r \nabla \phi) = -q(n_p - n_e - n_n) \quad (\text{IV.17})$$

où ϵ_0 et ϵ_r sont respectivement, la permittivité du vide et la permittivité relative de l'air.

La résolution de l'équation (IV.17) pour une charge d'espace donnée aide à trouver la distribution du potentiel électrique et du champ électrique dans l'espace d'étude. Le champ électrique est obtenu à partir du gradient du potentiel par la relation :

$$E = -\nabla \phi \quad (\text{IV.18})$$

Il est à mentionner, que les équations précédentes décrivant l'évolution de la décharge couronne dans un gaz sont couplées et non- linéaires. Alors il est en général, difficile de les résoudre analytiquement, et cela nécessite de nombreuses hypothèses simplificatrices qui réduisent considérablement la fiabilité de la solution. Par conséquent, la seule façon d'obtenir des résultats significatifs physiquement est d'appliquer les méthodes numériques pour les résoudre. La méthode des éléments finis est l'approche la plus pratique pour le calcul des champs inhomogène et pour les champs contenant des charges d'espace.

IV.2.2. Description du dispositif de décharge couronne pointe-plan

Nous considérons une décharge couronne positive traversant l'air dont la pression initiale est environ de 10^5 Pa et la température est égale à 293 K. La géométrie de la décharge couronne utilisée est de type pointe-plan (pointe = anode ; plan = cathode). L'électrode active est une pointe hyperbolique de rayon de courbure de 50 μm à laquelle nous allons appliquer un potentiel positif continu de $V_p = 3$ kV tandis que l'électrode passive est reliée à la masse. Les électrodes sont distantes de 1 mm. La dissymétrie des électrodes conduit à un champ électrique inhomogène dans l'espace inter-électrode. La géométrie de la pointe est dessinée en utilisant l'équation (IV.19) :

$$\left(\frac{z}{b}\right)^2 + \left(\frac{r}{a}\right)^2 = 1 \quad (\text{IV.19})$$

$\frac{a^2}{b}$ = rayon de courbure, z et r sont les axes de coordonnées.

Les différentes caractéristiques de la décharge couronne pointe-plan sont résumées dans le [Tableau IV.1](#).

Gaz	Air (80 % N ₂ , 20 % O ₂)
Température du gaz	293 K (25 °C)
Pression initiale	10 ⁵ Pa
Tension appliquée à l'anode	3 kV
Paramètres géométriques	
Rayon de courbure de la pointe	50 μm
distance inter-électrodes	1 mm

Tableau IV.1 : Paramètres d'entrée de la simulation d'une décharge couronne positive en configuration pointe-plan.

La géométrie du dispositif de décharge couronne pointe-plan étudié est représentée schématiquement sur la [figure IV.1](#). Cette géométrie est considérée bidimensionnelle (2D axisymétrique) du fait de son invariance par rotation autour de l'axe des électrodes (axe axial z). Le plan de symétrie de cette géométrie est le plan de symétrie de la pointe qui est perpendiculaire au plan.

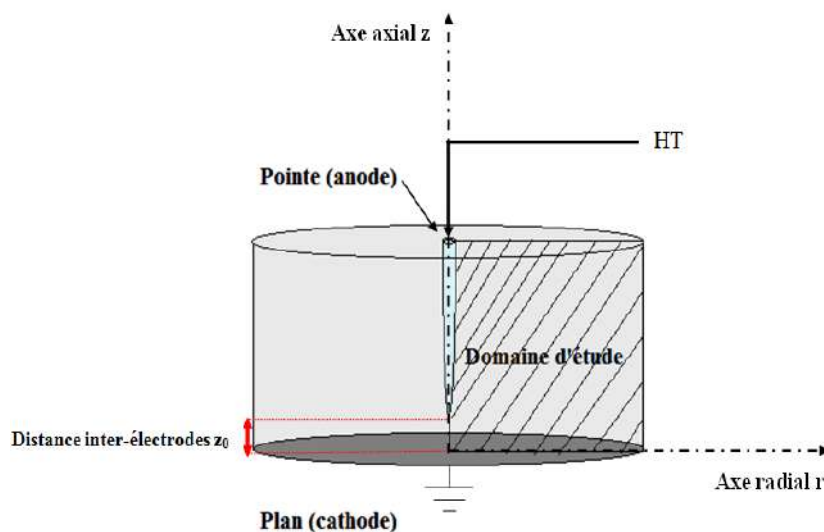


Figure IV.1 : Configuration de décharge couronne pointe-plan.

Après le choix de la physique du modèle, nous construisons la géométrie bidimensionnelle de la décharge couronne pointe-plan à étudier (symétrie suivant l'axe z : plan situé à $z = 0$ et la pointe située en $z = 1$ mm). On définit ensuite les propriétés du domaine choisi. La [figure IV.2](#) représente la géométrie bidimensionnelle construite par COMSOL Multiphysics.

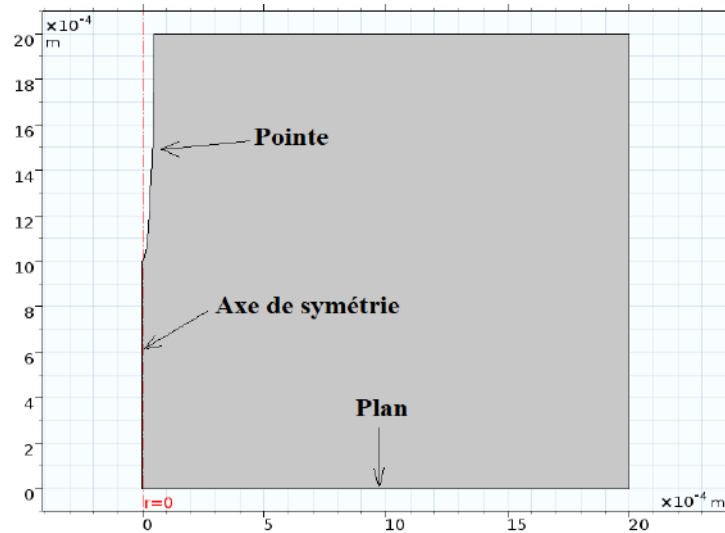


Figure IV.2 : Présentation de la géométrie pointe-plan du modèle.

IV.2.3. Maillage du domaine de calcul

Le maillage est une étape très importante dans la simulation d'une décharge électrique se produisant entre deux électrodes pointe-plan. La [figure IV.3](#) montre le maillage de la configuration étudiée.

La distribution inhomogène du champ électrique dans la géométrie pointe-plan est un problème critique pour la modélisation de phénomène de la décharge couronne. Le logiciel COMSOL est basé sur la méthode des éléments finis. Un maillage triangulaire très fin doit être utilisé dans les régions où le champ électrique est très élevé afin d'obtenir une solution précise. Le maillage doit avoir une distribution non-uniforme dans le domaine d'étude. Pour cela, des éléments triangulaires très fins se forment près de la pointe et de l'axe de symétrie et du plan (un maillage très fin est utilisé autour de la partie pointue de la pointe, le long de la ligne de symétrie axiale et le long de la ligne de la pointe perpendiculaire à la terre). La taille des éléments augmente de manière progressive dans le reste du domaine (un maillage grossier est utilisé dans le reste du domaine). Le maillage utilisé dans le modèle est caractérisé par une taille minimale de l'élément triangulaire de $4 \mu\text{m}$, une taille maximale de $2 \cdot 10^{-4}$ m avec un nombre total des éléments triangulaires de 1811.

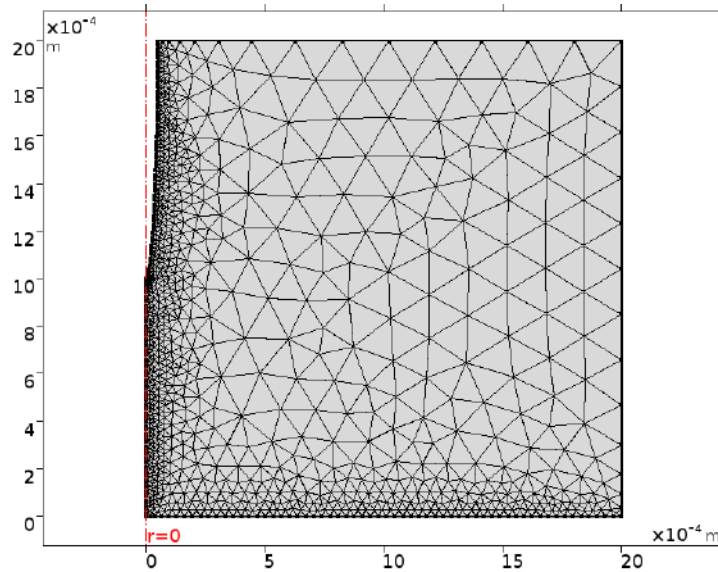


Figure IV.3 : Représentation schématique du maillage de la géométrie étudiée.

IV.2.4. Les conditions aux limites

Pour la résolution numérique d'un problème, il faut bien définir les conditions aux limites. Ces conditions concernant le potentiel V sont évidentes physiquement et mathématiquement : le potentiel V est constant sur les deux électrodes (conditions de Dirichlet sur les deux électrodes). Les conditions de Neumann sont toujours proposées sur l'axe de symétrie et les frontières ouvertes.

Il est important de noter qu'en réalité les conditions imposées aux frontières ouvertes sont artificielles. Pour cette raison, ces frontières doivent être suffisamment loin de l'axe de symétrie (c'est-à-dire loin de la zone chargée), pour minimiser l'impact de ces frontières sur le champ électrique.

L'équation de Poisson est résolue avec des conditions aux limites : $V = 3000$ V à l'électrode active (anode), $V = 0$ V à l'électrode reliée à la masse (cathode) et $\frac{\partial V}{\partial r} = 0$ le long de l'axe de symétrie. A la frontière ouverte, la charge est supposée nulle. Les conditions convenables sont spécifiées pour chaque frontière comme indiqué dans le [Tableau IV.2](#).

Les conditions initiales sont données par :

$$n_e = n_p = N_{max} \exp\left(-\frac{(r-r_0)^2}{2s_0^2} - \frac{(z-z_0)^2}{2s_0^2}\right) \quad (\text{IV.20})$$

où $N_{\max} = 10^{15} \text{ m}^{-3}$, $r_0 = 0 \text{ }\mu\text{m}$ et $z_0 = 1 \text{ mm}$ (les coordonnées de la pointe), $s_0 = 25 \text{ }\mu\text{m}$ (le rayon de distribution initiale), $n_n = 0 \text{ m}^{-3}$ (la densité initiale des ions négatifs) [Y.Zhuang2011,X.Wang2012].

Modèle d'application	Convection et diffusion n_e	Convection et diffusion n_p	Convection et diffusion n_n	Electrostatique V
Electrode de pointe	Flux convectif	$n_p = 0$	Flux convectif	3000
Ligne de symétrie axiale	Symétrie axiale	Symétrie axiale	Symétrie axiale	Symétrie axiale
Frontières ouvertes	Flux convectif	Flux convectif	Flux convectif	$\vec{n}_n \cdot (\vec{\epsilon}\vec{E}) = 0$
Electrode de masse	$n_e = 0$	Flux convectif	$n_n = 0$	$V = 0$

Tableau IV.2 : Conditions aux limites du modèle.

La figure IV.4 montre la distribution spatiale de la densité initiale des électrons n_e et des ions positifs n_p en utilisant l'équation (IV.20).

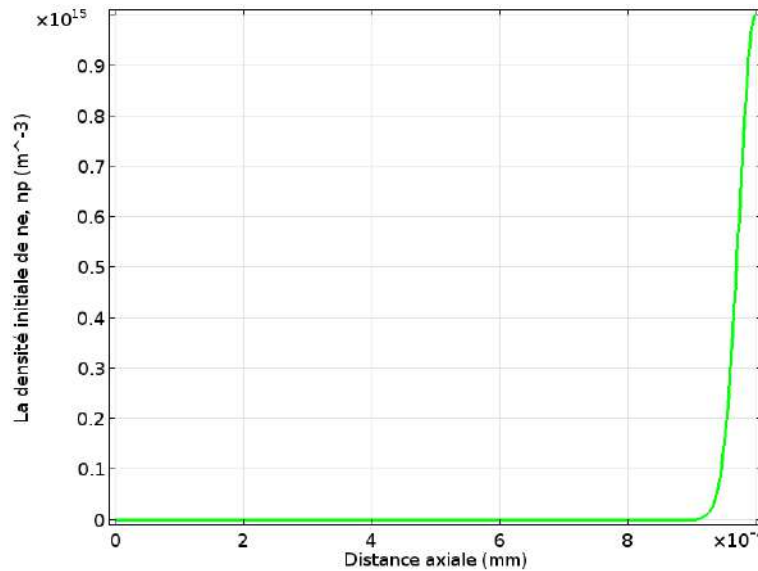


Figure IV.4 : Distribution spatiale de la densité initiale des électrons n_e et des ions positifs n_p .

IV.2.5. Coefficients de transport et de réaction

Nous utilisons le code Bolsig [P.Seimandi2010] pour un gaz d'air composé de 80 % de N_2 et de 20 % d' O_2 pour déterminer les coefficients de transport (mobilité et coefficient de diffusion) et de réaction (ionisation et attachement) des électrons. Ce code fait l'hypothèse que les électrons sont en équilibre local avec le champ électrique. Cela suppose que les électrons acquièrent instantanément l'énergie cinétique apportée par le biais d'un champ électrique. Le code de Bolsig permet d'obtenir les coefficients électroniques en fonction du champ électrique réduit E/N , où E est l'intensité du champ électrique et N est la densité totale du gaz ($N = 2.5 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$ à pression atmosphérique). Les réactions d'ionisation considérées dans l'air mènent à la formation des espèces N_2^+ et O_2^+ (réaction de collision entre électrons et molécules) regroupées dans un terme global de production d'espèces chargées positives. Les réactions d'attachement mènent à la formation des espèces O^- et O_2^- regroupées dans un terme global de production d'espèces chargées négatives.

Les coefficients de réaction et de transport fournis par le code de Bolsig [P.Seimandi2010] qui ont été pris en considération dans notre modèle sont représentés sur les figures IV.5 et IV.6. Les coefficients d'ionisation (α/N) en m^{-1} et d'attachement (η/N) en m^{-1} (figure IV.5), de l'énergie électronique (D/μ) en eV et de la vitesse de dérive des électrons (w_e) en m/s (figure IV.6).

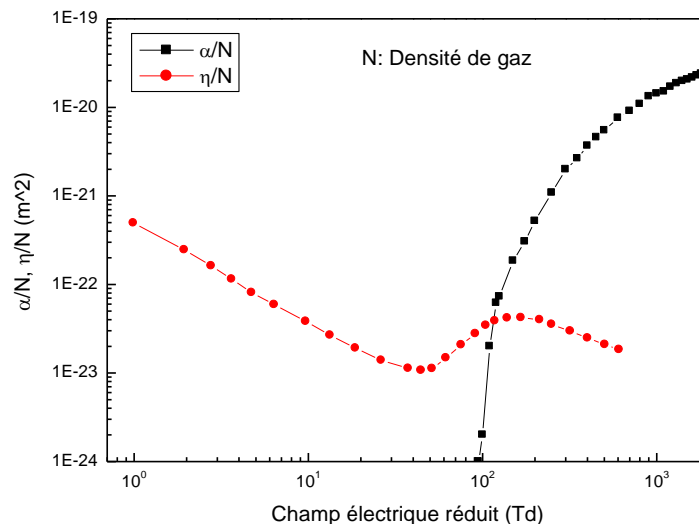


Figure IV.5 : Coefficients d'ionisation (α/N) et d'attachement (η/N) déterminés par le code de Bolsig [P.Seimandi2010].

Nous observons sur la [figure IV.5](#) que l'importance du coefficient d'ionisation α par rapport au coefficient d'attachement η apparaît clairement lorsque le champ électrique est suffisamment intense. Pour un champ électrique réduit de l'ordre de 100 Td, les deux coefficients α et η sont égaux ce qui implique que la consommation d'électrons par attachement électronique égale leur libération par impact. Lorsque le champ électrique devient plus intense, le coefficient d'attachement décroît légèrement, tandis que le coefficient d'ionisation α continue à augmenter très rapidement avec l'augmentation du champ électrique réduit. L'attachement électronique est supérieur à l'ionisation seulement dans les zones de champ électrique faible (< 100 Td (25 kV/cm)).

Sur la [figure IV.6](#), nous remarquons que l'énergie d'électron (D/μ) ainsi que la vitesse de dérive des électrons (w_e) augmentent avec l'augmentation du champ électrique réduit.

La mobilité des ions positifs et négatifs est indépendante du champ électrique. Selon la référence [[G. Karman2013](#)], la mobilité des ions positifs est de l'ordre de 2.10^{-4} m²/V.s alors que pour les ions négatifs, la mobilité est de l'ordre de $2.7.10^{-4}$ m²/V.s.

Le taux de photo-ionisation R_o est de l'ordre de $1.7.10^7$ m⁻³s⁻¹.

Le taux de recombinaison ion-ion est défini par la relation suivante :

$$\beta_{ii} = 2.10^{-12} \left(\frac{300}{T_i} \right)^{1.5} [m^{-3}s^{-1}] \quad (IV.21)$$

où la température des ions T_i est calculée par l'équation ([IV.14](#)).

Le taux de recombinaison électron-ion β_{ei} de l'équation ([IV.12](#)), dépend principalement de la structure des ions (une structure simple comme N₂⁺, O₂⁺, NO⁺ où bien une structure complexe comme N₄⁺, O₄⁺, N₂O₂⁺). Dans notre cas, le taux de recombinaison électron-ion β_{ei} est de l'ordre de 5.10^{-14} m⁻³s⁻³.

IV.3. Résultats de la simulation

La résolution du système d'équations aux dérivées partielles par la méthode des éléments finis sous le solveur COMSOL Multiphysics permet de déterminer les variations dans l'espace inter électrodes : du potentiel électrique, du champ électrique, des densités d'espèces chargées (électrons, ions positifs et ions négatifs).

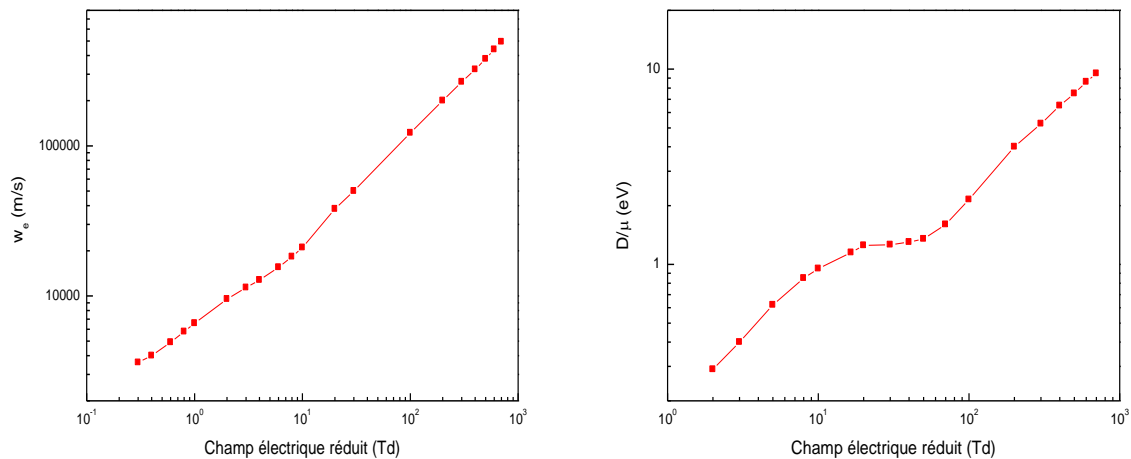


Figure IV.6 : Energie D/μ et vitesse des électrons w_e déterminées par le code de Bolsig [P.Seimandi2010].

IV.3.1. Distribution du potentiel électrique et du champ électrique

La distribution spatiale du potentiel électrique en configuration pointe-plan est illustrée sur la [figure IV.7](#). La tension appliquée à la pointe est de l'ordre de 3 kV et la distance inter-électrode est de l'ordre de 1 mm.

Nous remarquons clairement que la valeur maximale du potentiel électrique obtenue est de 3 kV au niveau de la pointe. Après, le potentiel électrique décroît en s'éloignant de la pointe jusqu'à s'annuler à l'anode qui est reliée à la masse ([figure IV.7\(a\)](#)). Au voisinage de la pointe, les lignes équipotentielles présentées sur la [figure IV.7\(b\)](#), ont une très forte courbure et sont plus serrées en se rapprochant de la pointe. Il est très important de localiser et montrer les lignes équipotentielles car tout rapprochement des lignes équipotentielles est associé à une augmentation de l'intensité du champ électrique. Les régions équipotentielles très proches les unes des autres et sont susceptibles de déclencher la décharge électrique dans l'intervalle inter-électrodes [Y.Bourek2016]. Ce résultat est confirmé par l'évolution du champ électrique le long de l'axe de symétrie ([figure IV.8](#)).

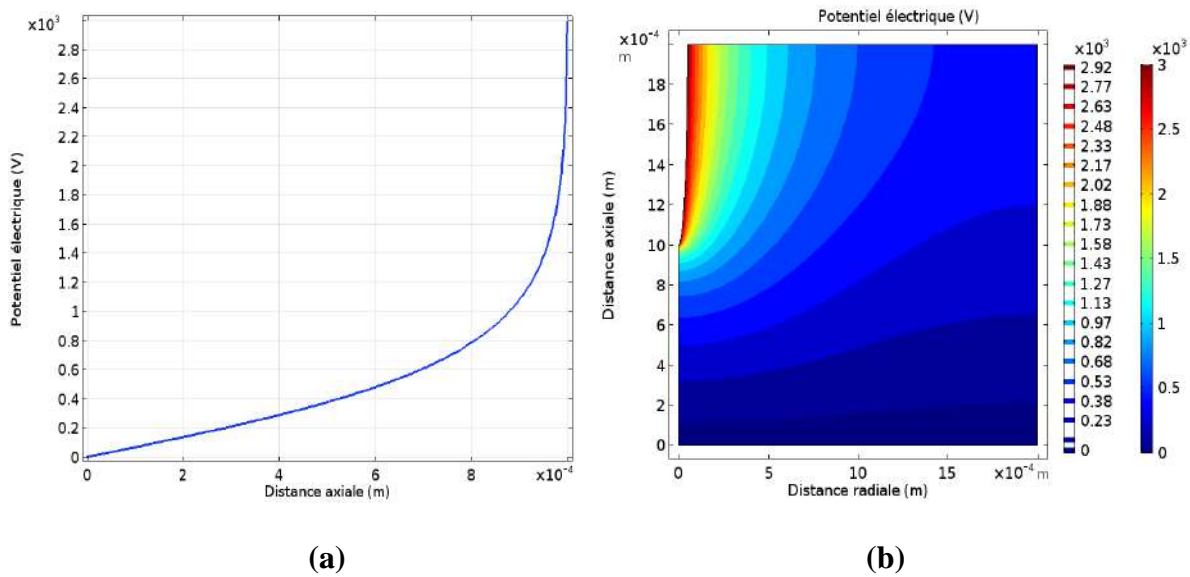


Figure IV.7 : Variation du potentiel électrique en configuration pointe-plan : distance inter-électrodes = 1 mm ; rayon de courbure de la pointe = 50 μm .

La répartition du champ électrique dans l'espace inter-électrode est le facteur le plus important pour l'amorçage de la décharge couronne en configuration pointe-plan, car il influence son apparition et ses caractéristiques électriques. La répartition du champ électrique dépend de la configuration des électrodes. Elle change d'une configuration à une autre en fonction du rayon de courbure de la pointe et de la longueur de l'intervalle inter-électrodes. La connaissance de la grandeur du champ électrique appliqué dans l'intervalle avant la formation de la charge d'espace est donc nécessaire.

L'évolution du champ électrique présentée sur la [figure IV.8](#) montre une distribution inhomogène du champ électrique le long de l'axe de symétrie. Il est plus intense au niveau de la pointe (sa valeur maximale est de l'ordre de $2.16 \cdot 10^8$ V/m pour une tension appliquée de 3 kV). Après, il décroît brutalement en fonction de la distance inter-électrodes jusqu'à s'annuler à l'électrode de masse. Cette distribution du champ électrique suffit cependant à déclencher une décharge électrique où le champ électrique qui règne au voisinage de la pointe est responsable de l'ionisation de l'air. Les ions présents dans cette zone peuvent être positifs ou négatifs. En effet, l'espace inter-électrodes peut être considéré comme divisé en deux zones : une zone d'ionisation près de la pointe où le champ électrique est très élevé et une zone de dérive où le champ électrique est suffisamment faible.

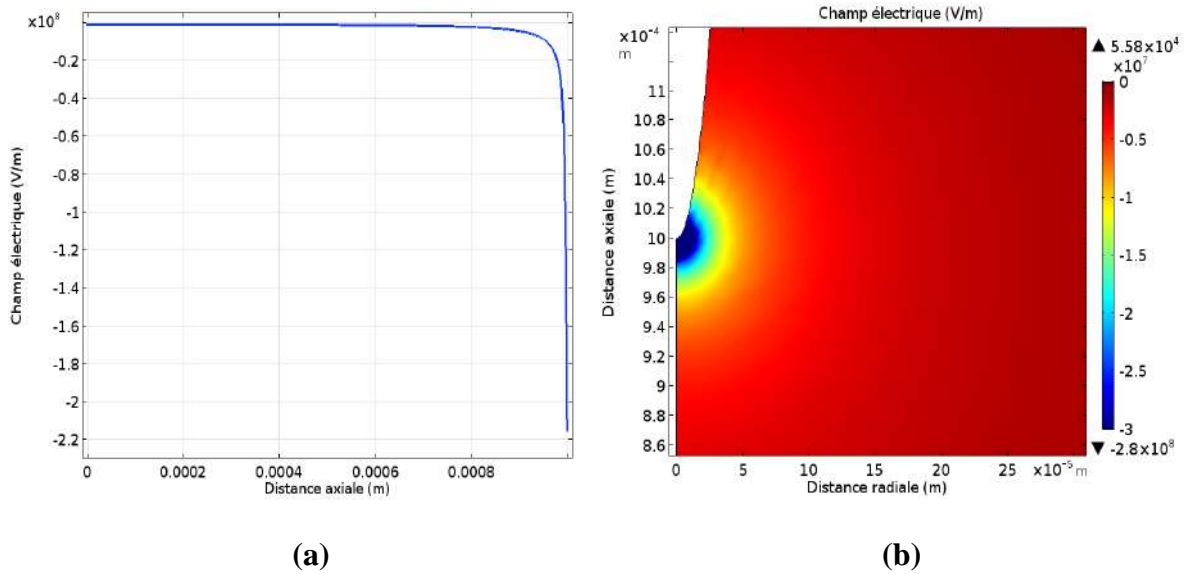


Figure IV.8 : Distribution du champ électrique en configuration pointe-plan le long de l'axe de symétrie : distante inter-électrodes = 1 mm ; rayon de courbure de la pointe = 50 μm .

La figure IV.9 représente la distribution du champ électrique le long de l'axe de symétrie en présence de la charge d'espace après un temps de simulation de 0.1 ns.

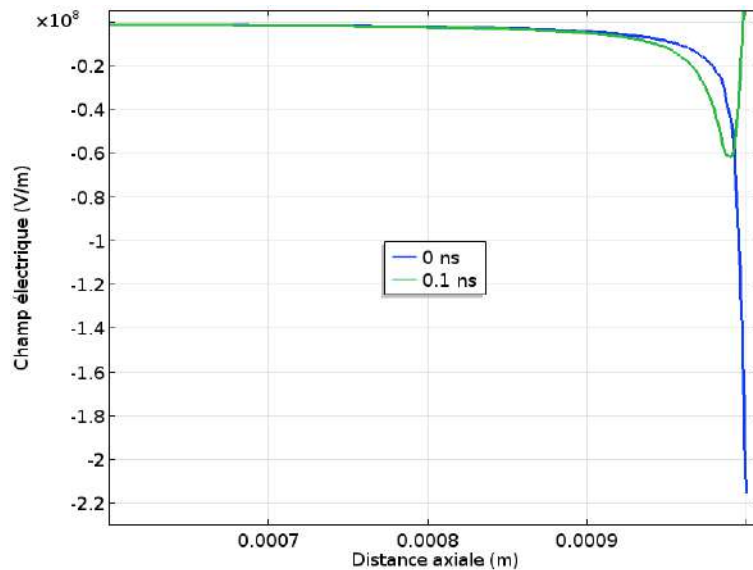


Figure IV.9 : Distribution du champ électrique appliqué et du champ électrique de la charge d'espace le long de l'axe de symétrie.

Pour $0.9 \text{ mm} < z$ (distance axiale) $< 1 \text{ mm}$, nous remarquons une variation claire de l'évolution du champ électrique. Cette variation montre le déclenchement de la décharge couronne et la formation du streamer au voisinage de la pointe. Des électrons et des ions positifs se créent, les électrons vont être attirés par la pointe laissant d'arrière eux des ions

positifs qui représentent la tête du streamer. La charge d'espace modifie la répartition du champ électrique, il devient maximum non plus sur la pointe mais juste devant la charge d'espace ionique. Pour $z < 90$ mm, le champ électrique initial est égal au champ électrique dû à la charge d'espace ; ceci est expliqué par l'absence de la charge d'espace dans la zone de dérive ainsi que de son influence.

La [figure IV.10](#) représente l'évolution du potentiel électrique le long de l'axe de symétrie à différents instants indiqués sur la courbe.

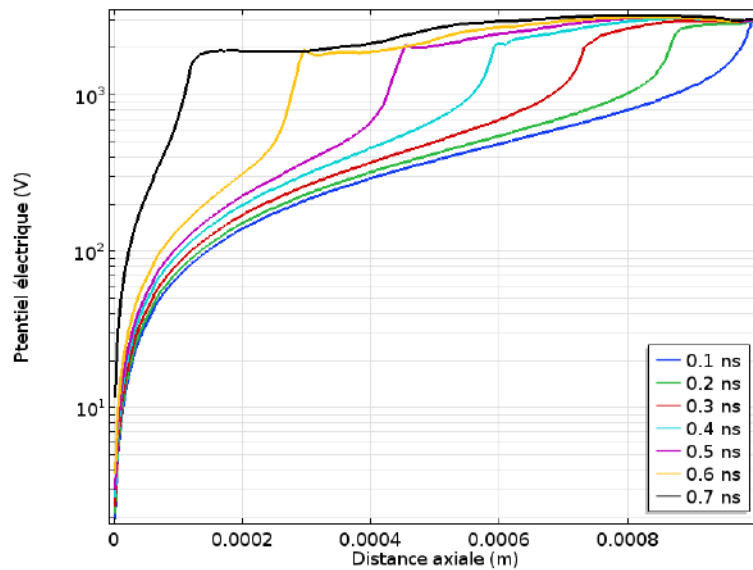


Figure IV.10 : Evolution du potentiel électrique le long de l'axe de symétrie pour différents temps de simulation : le potentiel appliqué à la pointe est de l'ordre de 3 kV.

Pour un temps fixé, nous remarquons que le potentiel électrique reste pratiquement constant sur une certaine distance. Après, le potentiel électrique décroît jusqu'à s'annuler à l'électrode de masse. Cependant, les surfaces équipotentielles représentées sur la [figure IV.11](#), sont très proches les unes des autres dans l'espace inter-électrodes pour différents temps de simulation. Ce rapprochement des lignes équipotentielles est associé à l'augmentation du champ électrique le long de l'axe de symétrie. Ce résultat est confirmé par la distribution du champ électrique le long de l'axe axial de symétrie pour différents temps de simulation ([figures IV.12](#) et [IV.13](#)).

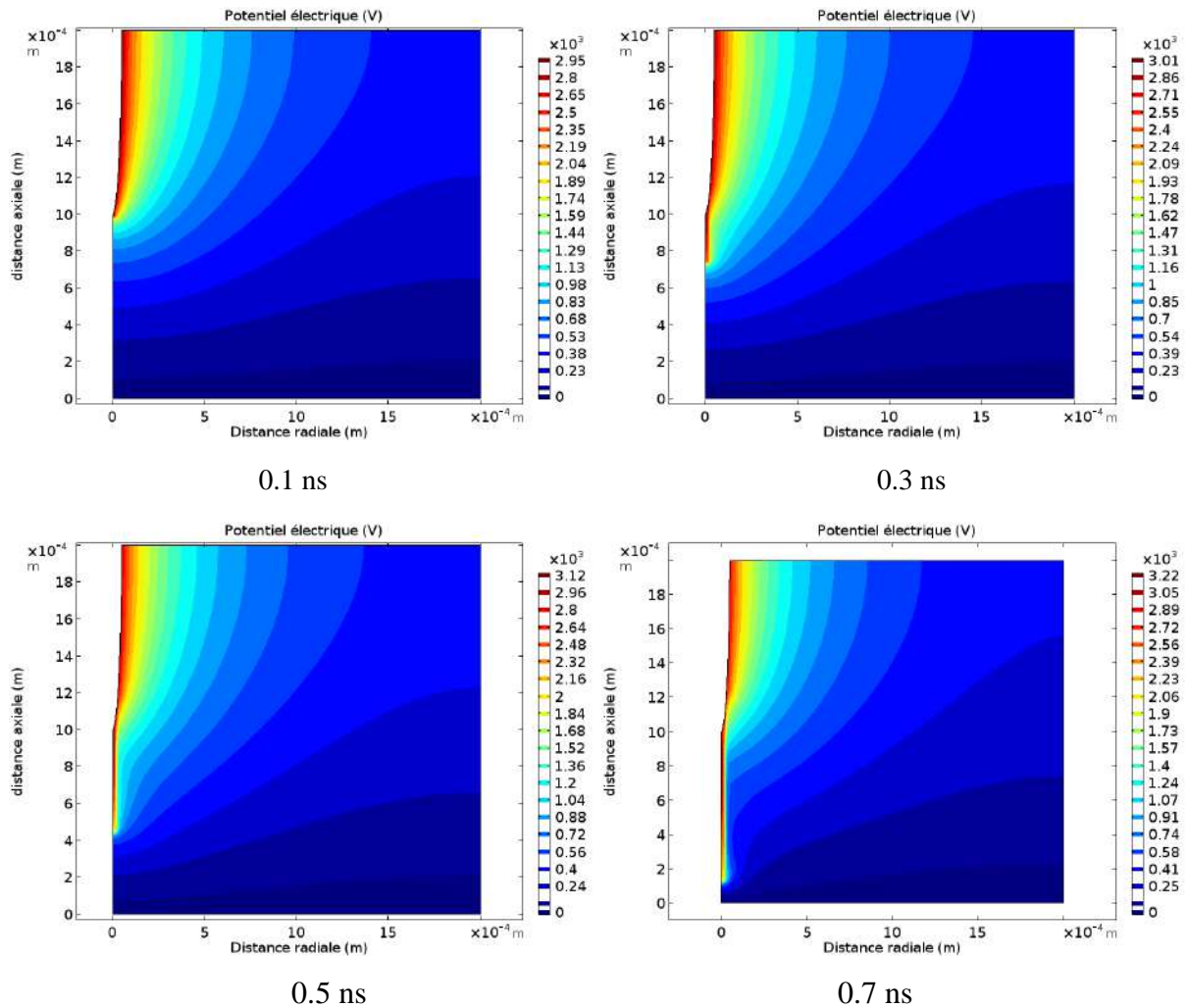


Figure IV.11 : Distribution des lignes équipotentielles le long de l'axe de symétrie pour différents instants de simulation.

La figure IV.12 représente la distribution du champ électrique le long de l'axe de symétrie à différents instants de simulation. Nous remarquons que le streamer ne commence à se propager le long de l'axe de symétrie qu'après sa formation à 0.1 ns (figure IV.13). Le champ électrique prend la forme d'un ensemble de pics et sa valeur maximale varie dans la gamme $(4-6) \cdot 10^7$ V/m lorsque le temps de simulation varie entre 0.1 et 0.7 ns (le champ électrique au front du streamer est toujours inférieur au champ électrique initial). Nous remarquons aussi que le champ électrique est quasiment nul dans la région où le potentiel électrique est pratiquement constant.

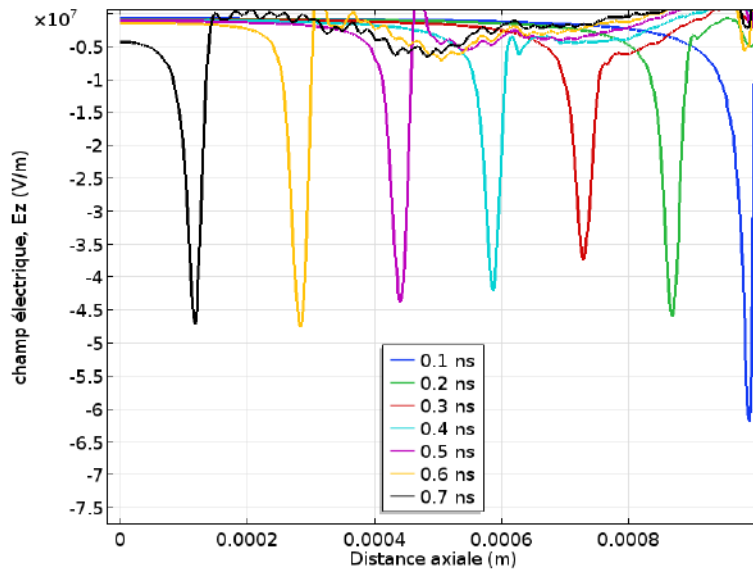


Figure IV.12 : Evolution du champ électrique le long de l'axe de symétrie pour différents instants de simulation.

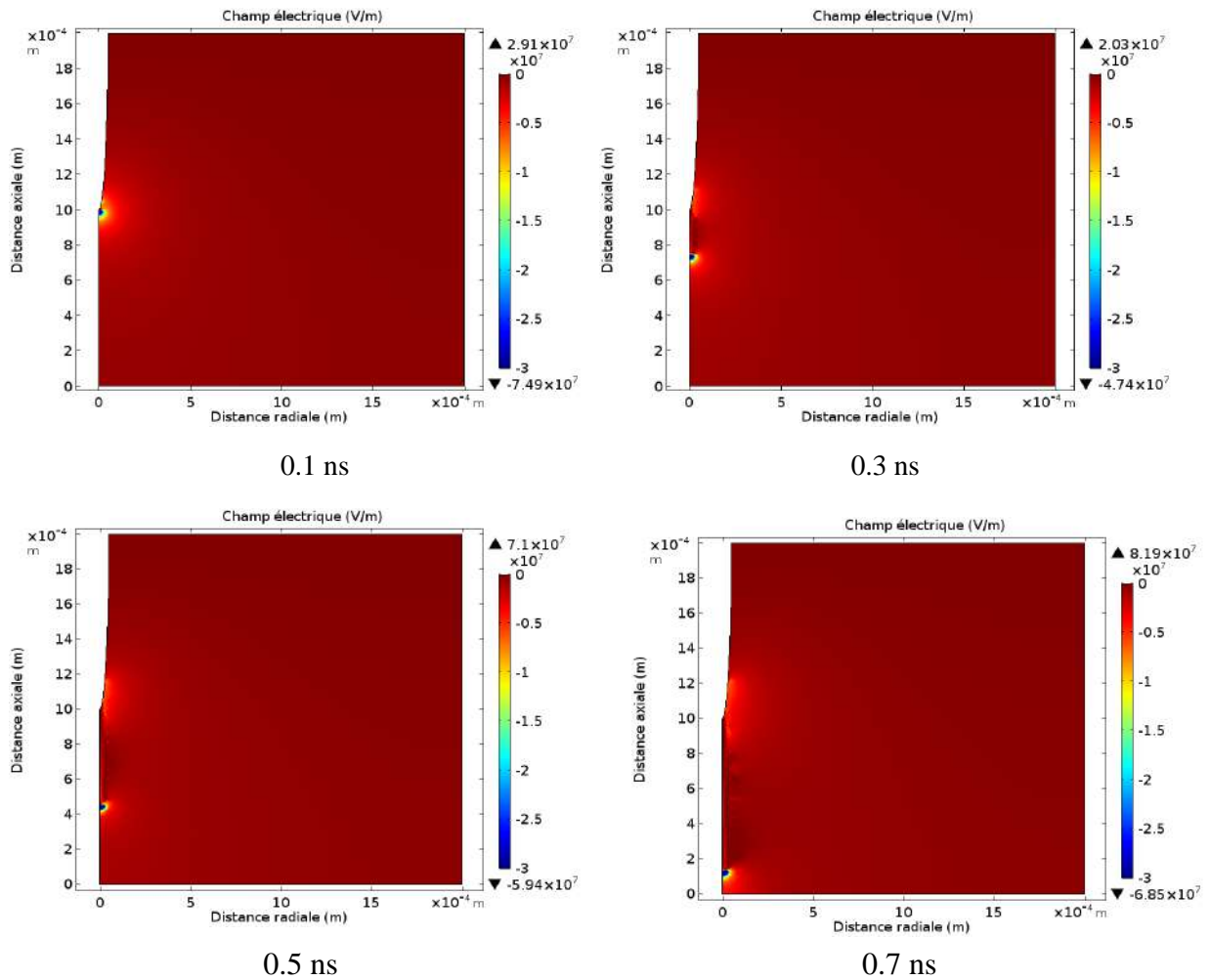


Figure IV.13 : Propagation du streamer électrique le long de l'axe de symétrie pour différents instants de simulation.

IV.3.2. Densités des espèces chargées

Les distributions spatiales de la densité des électrons, des ions positifs et négatifs à un potentiel électrique appliqué à la pointe de l'ordre de 3 kV pour différents instants de simulation le long de la symétrie axiale sont représentées sur les figures IV.14, IV.15 et IV.16.

Sur la figure IV.14, nous avons présenté la distribution spatiale de la densité des électrons pour différents instants de simulation. Nous remarquons que la densité électronique est très élevée au voisinage de la pointe, puis sa valeur se stabilise autour de la valeur moyenne $0.4 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ lorsque le temps de simulation est supérieur à 0.2 ns. Ce résultat est confirmé par la distribution du champ électrique au voisinage de la pointe (zone d'ionisation) où sa valeur est suffisamment intense pour ioniser l'air. Dans cette région, l'ionisation est supérieure à l'attachement électronique (zone de multiplication électronique). Le processus d'attachement des électrons joue également un rôle dans la formation d'une densité de charge d'électrons légèrement inférieure. Les électrons sont capables de répondre rapidement à la variation du champ électrique en raison de leur faible masse et de leur forte mobilité (figure IV.12). Nous remarquons aussi que la densité des électrons s'étale progressivement lorsque le temps de simulation augmente (la distance d'étalement augmente lorsqu'on augmente le temps de simulation).

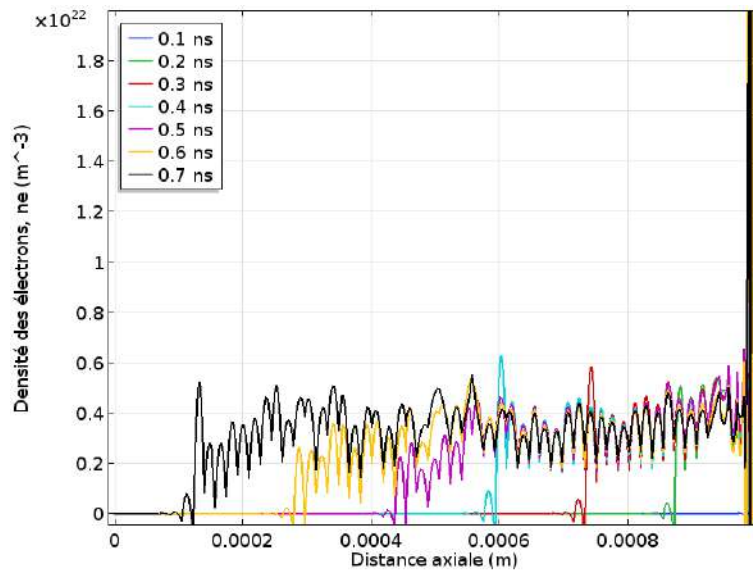


Figure IV.14 : Distribution de la densité des électrons le long de l'axe de symétrie.

La figure IV.15 représente la variation spatio-temporelle de la densité des ions positifs le long de l'axe de symétrie. Nous remarquons que la densité des ions positifs a la même

variation que la densité des électrons. Nous remarquons également la création du nuage d'ions positifs (appelé charge d'espace) lors de l'application d'une tension DC. Situé en $z = 0.1$ mm, sa densité est de $0.4 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$. L'instant suivant à 0.4 ns, ce nuage s'est déplacé vers l'électrode de masse pour atteindre une distance $z = 0.4$ mm avec une densité de $0.3 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$. Ce nuage d'ions poursuit sa trajectoire vers la cathode (figure IV.15) où l'on voit que la densité des ions positifs est très étalée vers la zone cathodique (zone de dérive) avec l'augmentation du temps de simulation. Nous constatons aussi que la densité des ions positifs s'étale progressivement en même temps que la densité des électrons.

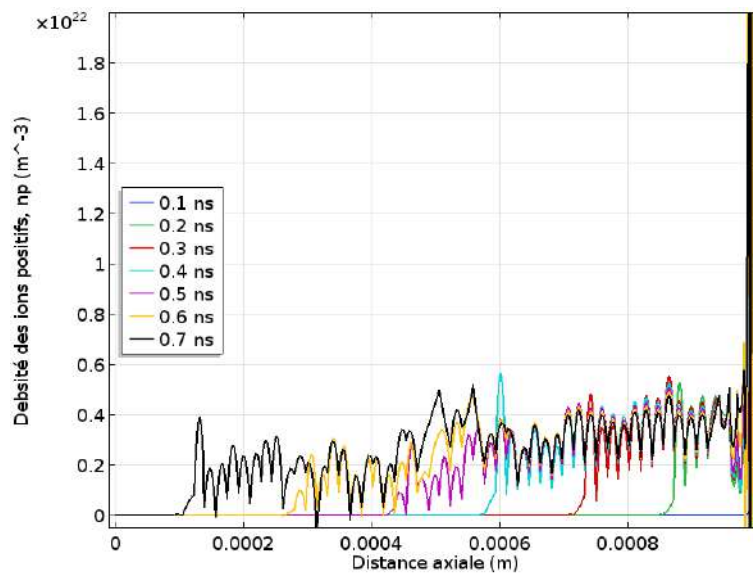


Figure IV.15 : Distribution de la densité des ions positifs le long de l'axe de symétrie.

La figure IV.16 montre la distribution de la densité des ions négatifs le long de l'axe de symétrie. Les résultats montrent que les ions négatifs sont concentrés dans la région anodique (zone d'ionisation) où ils sont produits avec une densité qui augmente avec l'augmentation du temps de simulation. Nous remarquons aussi que la densité des ions négatifs est inférieure à celle des ions positifs dans la même région.

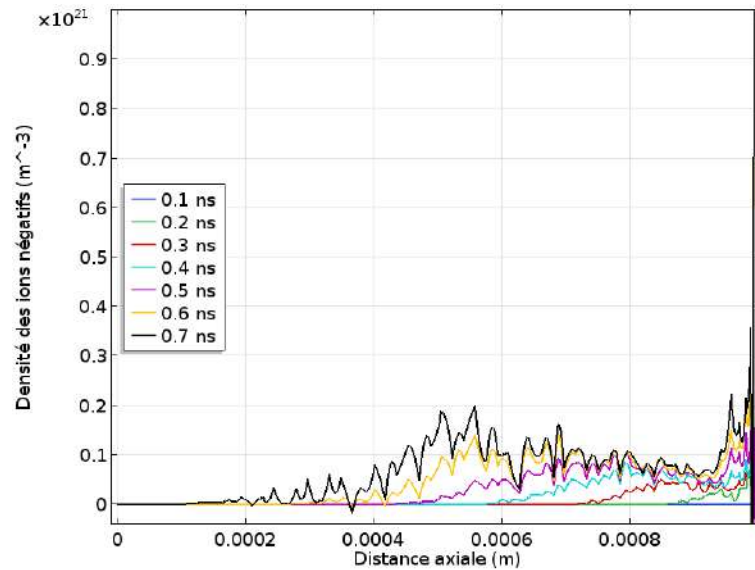


Figure IV.16 : Distribution de la densité des ions négatifs le long de l'axe de symétrie.

La figure IV.17 représente la distribution de la densité de charge totale le long de l'axe de symétrie pour différents instants de simulation. Nous remarquons que la densité de charge totale est élevée au voisinage de la pointe où le champ électrique est le plus élevé. La densité de charge totale s'étale avec l'augmentation du temps de simulation.

Les résultats démontrent dans le cas d'une décharge couronne en configuration pointe-plan que le champ électrique qui est apparu à proximité de l'électrode couronne a une influence sur l'apparition de la décharge couronne. On observe la création de deux régions lors de la décharge couronne : la première correspond à une zone active d'ionisation située au voisinage de la pointe où le champ électrique est suffisamment intense pour ioniser l'air. L'effet d'ionisation est dominé dans la zone d'ionisation et des avalanches électroniques se développent. La seconde, appelée zone de dérive est caractérisée par un champ trop faible pour permettre l'ionisation du milieu où les ions positifs (de mêmes polarité que le potentiel appliqué à la pointe) formés dans la zone de décharge active dérivent vers l'électrode de masse. Les effets de pertes d'électrons par attachement et recombinaison compensent les phénomènes d'ionisation. Les décharges s'amorcent ainsi à la pointe sous l'effet du champ électrique très intense qui y règne et leur évolution est caractérisée par la propagation de canaux ionisés appelés streamers [O.Hennane2011].

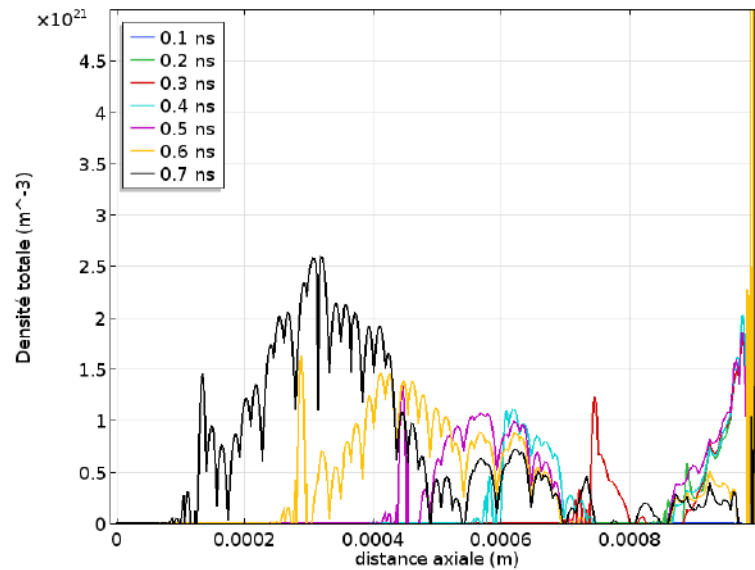


Figure IV.17 : Distribution de la densité de charge totale le long de l'axe de symétrie.

IV.4. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté l'ensemble des équations qui vont nous permettre de modéliser la décharge couronne en configuration pointe-plan. Le modèle mathématique basé sur l'approximation dérive-diffusion que nous avons utilisé est composé d'un système d'équations de continuité pour les espèces chargées (électrons et ions positifs et négatifs), couplé avec l'équation de Poisson. Nous avons également présenté les conditions aux limites utilisées pour la résolution du système d'équations aux dérivées partielles ainsi que les coefficients de transport (mobilité et coefficient de diffusion) et de réaction (coefficients d'ionisation et d'attachement) utilisés comme données de base dans notre modèle. Enfin, nous avons présenté les résultats de notre simulation, en termes de variation dans l'espace inter-électrodes du potentiel, du champ électrique et des densités de charges (électrons, ions positifs et négatifs).

Références du chapitre IV

- [K.Adamiak2004] K. Adamiak, P. Atten, "Simulation of corona discharge in point-plane configuration", *Journal of Electrostatics*, Vol. 61, No. 2, pp. 85-98, June 2004.
- [A.Bendaoud2008] A. Bendaoud, A. Tilmatine, K. Medles, M. Rahli, M. Huzau, L. Dascalescu, "Characterization of dual corona-electrostatic electrodes for electrostatic processes applications", *IEEE Transactions on Industry Applications*, Vol. 44, No. 3, pp. 692-698, 2008.
- [Y.Bourek2016] Y. Bourek, "Etude de la décharge électrique par l'intelligence artificielle", Thèse de Doctorat, Université de Batna 2, Novembre 2016.
- [A.Bouteffaha2015] A. Bouteffaha, A. Bendaoud, A. Tilmatine, K. Medles, M. Plopeanu, L. Dascalescu, "Experimental and numerical characterization of corona discharge generated by a triode electrode system", *IEEE Transactions on Industry Applications*, Vol. 51, No. 3, pp. 2513-2519, May 2015.
- [J.Chen2002] J. Chen, J.H. Davidson, "Electron density and energy distribution in the positive DC corona: Interpretation for corona-enhanced chemical reactions", *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, Vol. 22, No. 2, pp. 199-224, 2002.
- [L.Chen2014] L. Chen, "Etude expérimentale de la décharge couronne pour le traitement de l'air intérieur : COV et Particule", Thèse de Doctorat, Université Grenoble Alpes, 2019.
- [G.E.Georghiou1999] G.E. Georghiou, R. Morrow, A.C. Metaxas, "The theory of shortgap breakdown needle point-plane gaps in air using finite-difference and finite-element methods", *Journal of Physics D : Applied Physics*, Vol. 32, pp. 1370-1385, 1999.
- [O.Hennane2012] O. Hennane, "Étude de l'influence de la charge d'espace sur la dynamique des particules neutres dans une décharge pointe plan", Mémoire de Magister, Université Abou Bekr Belkaïd, Tlemcen, 2012.
- [G.Karman2013] G. Karman, "Simulation and analysis of corona currents in large scale coaxial geometry due to triangular voltages," Diploma work in the Master Program Electric Power Engineering, Chalmers University of Technology, Gothenburg, Sweden, 2013.
- [S.Kumara2009] S. Kumara, Y.V. sedyuk, S.M. Gubanski, "Charging of polymeric Surfaces by positive impulse corona", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 16, No. 3, pp. 726-733, 2009.
- [J.C.Matéó-Vélez2006] J.C. Matéo-Vélez, "Modélisation et simulation numérique de la génération de plasma dans les décharges couronnes et de son interaction avec l'aérodynamique", Thèse de Doctorat, ONERA – Centre de Toulouse, Décembre 2006.
- [M.Quast2009] M. Quast, N.R. Lalic, "Streamer propagation in point-to-plane geometry", *The proceedings of the COMSOL Conference*, Milan, 2009.
- [G.Quinio2005] G. Quinio, "Modélisation numérique de la génération d'un plasma d'air dans un écoulement aérodynamique", Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier - Toulouse III, Décembre 2005.
- [P.Sattari2010] P. Sattari, G.S.P. Castle, K. Adamiak, "FEM–FCT-based dynamic simulation of corona discharge in point–plane configuration", *IEEE Transactions on Industry Applications*, Vol. 46, No. 5, Sept.-Oct. 2010.

- [P.Sattari2011] P. Sattari, “FEM-FCT based dynamic simulation of Trichel pulse corona discharge in point-plane configuration”, PhD Thesis, University of Western Ontario, London, Ontario, Canada, 2011.
- [P.Seimandi2010] P. Seimandi, “Modélisation mathématique et numérique de décharges couronnes pour le contrôle d'écoulement”, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier – Toulouse III, 2010.
- [A.Settaouti2011] A. Settaouti, L. Settaouti, “Numerical simulation of positive corona discharge in air”, International Journal of Engineering Systems Modelling and Simulation, Vol. 3, No. 3/4, pp. 148-154, November 2011.
- [N.Tran2008] N. Tran, I.O. Golosnoy, P.L. Lewin, G. E. Georghiou, “Numerical modelling of positive surface streamer in air”, Proceedings 17th International Conference on Gas Discharges and Their Applications, Cardiff, Wales, 2008.
- [X.Wang2012] X. Wang, C. Yao, C. Sun, Q. Yang, X. Zhang, “Numerical modelling of mutual effect among nearby needles in a multi-needle configuration of an atmospheric air dielectric barrier discharge”, Energies, Vol. 5, No. 5, pp. 1433-1454, 2012.
- [L.Zeghichi2010] L. Zeghichi, “Etude d'une décharge électrique par la méthode de Monte Carlo”, Mémoire de Magister, Université de Batna, 2010.
- [Y.Zhuang2011] Y. Zhuang, G. Chen, M. Rotaru, “Numerical modelling of needle grid electrodes for negative surface corona charging system”, Journal of Physics : Conference Series, Vol. 310, No. 1, 2011.
- [Z.Ziari2008] Z. Ziari, “Etude de l'effet d'un traitement par plasma froid sur les propriétés de surface d'un film de Polymère”, Thèse de Doctorat, Université Mentouri de Constantine, 2008.

Conclusion générale

Conclusion générale

Le sujet de notre thèse de doctorat s'inscrit dans le cadre général de l'étude de l'influence de l'exposition de films minces de polyimide à une décharge couronne sur leurs propriétés électriques en vue de leur utilisation dans le biomédical. L'étude de l'effet de cette exposition a été menée en termes de capacité de chargement électrostatique de la surface des films et de leur capacité à évacuer les charges implantées. La technique du déclin de potentiel de surface a été utilisée pour mesurer la distribution d'énergie des pièges afin d'étudier la charge d'espace dans ce matériau isolant. Notre travail avait pour objectif :

- l'étude de l'effet du taux d'humidité relative et du niveau de chargement sur les propriétés électriques des films de Kapton HN polyimide en utilisant les techniques de mesures du déclin de potentiel de surface et du courant de charge.
- l'étude et la simulation d'une décharge couronne positive en configuration pointe-plan en utilisant un modèle mathématique basé sur l'approximation dérive-diffusion.

En utilisant différents niveaux du potentiel de chargement, les résultats que nous avons obtenus indiquent que la décroissance du potentiel de surface est fortement affectée par l'humidité relative. Le taux du déclin de potentiel de surface dans un environnement humide est plus élevé que celui dans un environnement relativement sec en raison du processus de dissociation des molécules de l'eau sous l'effet du potentiel électrique élevé appliqué.

Les évolutions du courant de charge sont bien corrélées avec les évolutions du déclin de potentiel de surface. L'augmentation de l'humidité relative et du potentiel de chargement initial V_0 induit une augmentation du niveau de courant conduisant à l'augmentation du taux de déclin de potentiel de surface.

La distribution de la densité de l'énergie des pièges dans un film de PI calculée par le modèle de pièges double (analyse de l'ajustement exponentiel double des mesures du déclin de potentiel de surface) montre une augmentation de la densité des pièges peu profonds ainsi qu'une diminution de la densité des pièges profonds lorsque l'humidité relative augmente. L'augmentation de la tension de chargement et du niveau d'humidité relative induit un déplacement de la distribution des pièges peu profonds et profonds vers des niveaux d'énergie inférieurs, indiquant une augmentation de la probabilité de dé-piégeage des porteurs de charges et par conséquent une augmentation de la conductivité électrique.

Le modèle mathématique basé sur l'approximation dérive-diffusion que nous avons utilisé est composé d'un système d'équations de continuité pour les espèces chargées (électrons, ions positifs et négatifs), couplé avec l'équation de Poisson. Ces équations aux dérivées partielles sont mises en œuvre dans le cadre de l'étude de la configuration pointe-plan afin de bien comprendre le comportement de la décharge couronne. Nous avons utilisé pour la résolution du système d'équations aux dérivées partielles la méthode des éléments finis sous le solveur COMSOL Multiphysics. Les coefficients de réaction et de transport des électrons, les coefficients d'ionisation et d'attachement, l'énergie électronique et la vitesse de dérive des électrons, sont déterminés à l'aide du code numérique Bolsig pour un gaz d'air. Ce code permet d'obtenir les coefficients électroniques en fonction du champ électrique réduit.

Les résultats de la simulation de notre modèle, en termes des distributions spatio-temporelles des espèces chargées (électrons, ions positifs et négatifs), du potentiel et du champ électrique ont été présentés. Nous constatons la création du nuage d'ions positifs (appelé charge d'espace) lors de l'application d'une tension DC. Ce nuage d'ions se déplace vers la zone cathodique (zone de dérive) lorsque le temps de simulation augmente. L'étalement des ions positifs en fonction du temps de simulation est similaire à l'étalement des électrons. Les ions négatifs sont concentrés dans la région anodique (zone d'ionisation) avec une densité inférieure à celle des ions positifs dans la même région.

Les résultats que nous avons obtenus dans ce travail ont montré que le polyimide est sensible à la présence de molécules d'eau. L'influence de cette dernière sur ses propriétés électriques peut limiter son utilisation comme biomatériau. Afin de minimiser cet inconvénient, une amélioration des propriétés physiques, chimiques et biochimiques de sa surface est nécessaire. En effet, sa surface constitue le lieu où se produisent les interactions entre le matériau étranger (implant) et le milieu biologique et les réactions qui en résultent. Pour cela, ce travail peut être complété par l'étude de l'influence du traitement de la surface d'un film de polyimide par une couche mince sur l'écoulement de charges électrostatiques implantées par décharge couronne dans le but d'améliorer l'interaction de l'implant avec l'environnement biologique et de protéger au mieux l'implant contre toute attaque corrosive sur une période la plus longue possible. Ce traitement va consister à recouvrir la surface d'une couche d'un matériau bioactif : comme l'oxyde d'aluminium Al_2O_3 , ou bien faire un traitement de surface par plasma pour changer sa nature surfacique (d'une surface hydrophile à une surface hydrophobe).

Liste des travaux de l'auteur

Liste des publications et communications de l'auteur

Publications Internationales

1- N. Amieur, Z. Ziari, S. Sahli, "Traps energy distribution in Kapton HN polyimide films through surface potential decay model under humidity conditions", Journal of Electrostatics, Vol. 109, 103551 (9pages), January 2021, ISSN : 0304-3886

DOI : <https://doi.org/10.1016/j.elstat.2021.103551>

<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304388621000024>

2- Z. Ziari, H. Mallem, N. Amieur, S. Sahli, "Current Characteristics in Corona Charged Polyimides Films", Dielectric Materials and Applications (ISyDMA'2016), Materials Research Proceedings, Vol. 1, pp. 171-174, July 2016, ISSN : 2474-3941, ISBN : 978-1-945291-18-0

DOI : <http://dx.doi.org/10.21741/9781945291197-43>

<http://www.mrforum.com/product/dielectric-materials-and-applications/>

Communications Internationales

1- N. Amieur, Z. Ziari, S. Sahli, "Surface potential behavior of corona charged polyimide films under controlled humidity conditions", 2019 1st International Conference on Sustainable Renewable Energy Systems and Applications (ICSRESA), December 04-05, 2019, Tebessa, Algeria

ISBN : 978-1-7281-5356-8 (978-1-7281-5356-8/19/\$31.00 ©2019 IEEE)

DOI : [10.1109/ICSRESA49121.2019.9182543](https://doi.org/10.1109/ICSRESA49121.2019.9182543)

URL : <https://ieeexplore.ieee.org/document/9182543?denied=>

2- N. Amieur, Z. Ziari, S. Sahli, "Simulation of a Positive dc Corona Discharge in a Needle-Plane Electrode Configuration", 2018 3th International Conference on Electrical Sciences and Technologies in Maghreb (CISTEM), October 28-31, 2018, Algiers, Algeria

ISBN : 978-1-5386-4988-6 (978-1-5386-4988-6/18/\$31.00 ©2018 IEEE)

DOI : [10.1109/CISTEM.2018.8613595](https://doi.org/10.1109/CISTEM.2018.8613595)

URL : <https://ieeexplore.ieee.org/document/8613595>

3- N. Amieur, Z. Ziari, S. Sahli, "Influence of Environmental Humidity on the Electrical Properties of Kapton HN Polyimide Films", 11^{ème} Conférence de la Société Française d'Electrostatique (SFE) 2018, 29-31 Août, 2018, Grenoble, France

ISBN : 979-10-699-2465-9

<https://sfe2018.sciencesconf.org>

Titre : *Contribution à l'étude de l'influence d'une décharge couronne sur les propriétés de films minces de polyimide en vue de leur utilisation dans le biomédical*

Résumé :

Dans ce travail, une étude expérimentale et une analyse des effets de l'humidité relative de l'air (RH %) sur les mécanismes de transport des charges électriques dans des films de PI ont été présentés. L'évolution du déclin de potentiel de surface après dépôt de charges par décharge couronne négative a été étudié et analysé en examinant les caractéristiques tdV/dt pour obtenir directement des informations sur la distribution de l'énergie de pièges dans les films de PI pour différents niveaux d'humidité relative. La méthode de calcul de la distribution de la densité de pièges en fonction du niveau d'énergie est basée sur l'analyse de lissage exponentiel double des mesures du déclin de potentiel de surface. Les résultats indiquent que pour différents niveaux de chargement, le potentiel de surface décroît plus rapidement dans un environnement humide que dans un environnement relativement sec. Le courant de chargement enregistré confirme l'interprétation des mesures du déclin de potentiel de surface. La distribution des pièges peu profonds et profonds se déplace vers des niveaux d'énergie inférieurs, indiquant une augmentation de la conductivité électrique du film.

Un modèle a été développé pour la simulation d'une décharge couronne positive continue dans une configuration pointe-plan à pression atmosphérique. Les variations spatio-temporelles du champ électrique, des électrons, des ions positifs et négatifs ont été étudiées.

Mots clés : conductivité électrique, décharge couronne, déclin de potentiel de surface, distribution de la densité de charges piégées, polyimide.

Title : *Contribution to the study of the influence of a corona discharge on the polyimide thin films properties in view of their use in biomedical*

Abstract :

In this work, an experimental study and analysis of the effects of environmental relative humidity (RH %) on the transport mechanisms of electrical charges in PI films have been presented. The evolution of the surface potential decay after negative corona charge deposition have been investigated and analyzed by examining the tdV/dt characteristics to straightly obtain information about trap energy distribution in PI films for different relative humidity levels. The calculating method of trap energy distribution is based on the double exponential fitting analysis of surface potential decay measurements. The results indicate that for different charging voltage levels, the surface potential decays faster in humid air than in relatively dry ones. The recorded corona charging current confirms the interpretation of surface potential decay measurements. Both shallow and deep trap distribution moves towards lower energy levels, indicating an increase in the film's electrical conductivity.

A model has been developed for the simulation of a positive corona discharge in a needle-plane configuration at atmospheric pressure. The spatial-temporal variations of the electric field, the electrons, positive and negative ions have been investigated.

Keyword : electrical conductivity, corona discharge, surface potential decay, trap energy distribution, polyimide.

عنوان : المساهمة في دراسة تأثير تفريغ كورونا على خواص أغشية البوليميد الرقيقة في ضوء استخدامها في الطب الحيوي

ملخص :

في هذا العمل تم عرض دراسة تجريبية وتحليل لتأثيرات الرطوبة النسبية للهواء (RH %) على آليات نقل الشحنات الكهربائية في أغشية البوليميد. تم دراسة تغيرانخفاض الكمون السطحي بعد ترسيب الشحنات الكهربائية بتفريغ كورونا السالبة وتحليلها عن طريق فحص خصائص tdV/dt للحصول على معلومات مباشرة حول توزيع طاقة المصيدة في أغشية البوليميد لمستويات الرطوبة النسبية المختلفة. تعتمد طريقة حساب توزيع كثافة المصيدة بدلالة مستوى الطاقة على تحليل التنعيم الأسي المزدوج لقياسات انخفاض الكمون السطحي. تشير النتائج إلى أنه لمختلف مستويات الشحن، ينخفض الكمون السطحي بشكل أسرع في الهواء الرطب مما كان عليه في جو جاف نسبياً. يؤكد تيار الشحن المسجل تفسير قياسات انخفاض الكمون السطحي. يتحرك كل من التوزيع الضحل والعميق للمصادر نحو مستويات طاقة أقل، مما يشير إلى زيادة في الناقلية الكهربائية للغشاء.

تم تطوير نموذج لمحاكاة تفريغ كورونا الإيجابي المستمر في الهندسة إبرة-سطح في الضغط الجوي. تمت دراسة التغيرات المكانية والزمانية للمجال الكهربائي والإلكترونات والأيونات الموجبة والسالبة.

الكلمات الرئيسية : الناقلية الكهربائية، تفريغ كورونا، انخفاض الكمون السطحي، توزيع طاقة المصيدة، بوليميد.