



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 :87/D3C/2019

Série :05/Elec/2019

THÈSE

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

Option : **Micro et Nanotechnologies**

Par :

***Hala* MALLEM**

THÈME :

**Étude de l'effet de la température sur les variations
du potentiel de surface d'un film de polyimide
soumis à une décharge couronne**

Soutenue le : **22 / 07 / 2019**

Devant le jury :

Président : Saida REBIAI

Prof. Univ. Frères Mentouri Constantine 1

Rapporteur : Zehira ZIARI

Prof. Univ. Frères Mentouri Constantine 1

Examineurs :

Abdelhamid BENHAYA

Prof. Univ. Mustapha Ben Boulaid Batna 2

Azzedine BELLEL

Prof. Univ. Frères Mentouri Constantine 1

Douniazed MEZDOUR

Prof. Univ. Med Seddik Benyahia Jijel

Invité : Salah SAHLI

Prof. Univ. Frères Mentouri Constantine 1

Travail effectué au Laboratoire Microsystèmes et Instrumentation (LMI), Faculté des Sciences de la Technologie,
Département d'Electronique, Université Frères Mentouri Constantine 1, Route de Ain El Bey - 25017, Constantine, Algérie.

Dédicaces

Je dédie ce travail

A mes chers parents, pour tous leurs sacrifices, leur amour, leur tendresse, leur soutien et leurs prières tout au long de mes études.

*A mes chères sœurs, **Ahlem, Houda, Karima**, qui n'ont pas cessé de me conseiller, encourager et soutenir tout au long de mes études. Que dieu les protège et leur offre la chance et le bonheur.*

*A mon fiancé **Youcef**, qui a partagé avec moi tous les moments d'émotions lors de la réalisation de ce travail. Il m'a chaleureusement supporté et encouragé tout au long de mon parcours.*

*A ma chère amie **Sarah** qui m'a toujours encouragée, et à qui je souhaite plus de succès*

A tous ceux qui j'aime

Merci d'être toujours là pour moi.

MALLEM HALA

Remerciements

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

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.

J'adresse également mes remerciements à ma directrice de thèse **Z. ZIARI**, Professeur au Département d'Electronique de l'Université Frères Mentouri Constantine 1 pour son aide, sa patience, son esprit critique, ses compétences infinies et surtout son écoute et sa disponibilité. Elle a toujours été là pour me soutenir et me conseiller au cours de l'élaboration de cette thèse.

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 sa douceur et son éternel sourire.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers **Mme S. REBIAI**, Professeur au Département d'Électronique, de l'Université Frères MentouriConstantine1 pour l'honneur qu'elle m'a fait en acceptant la présidence du jury de soutenance de ma thèse.

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 soutien, son aide appréciable et ses conseils bénéfiques.

Que **Mr A. BENHAYA**, Professeur à l'Université Mustapha Ben Boulaid de Batna et **Mme D. MEZDOUR**, Professeur à l'Université M^{ed} Seddik Benyahia de Jijel, trouvent ici l'expression de mes plus vifs remerciements pour avoir accepté de participer au jury de soutenance et pour l'intérêt qu'ils ont bien voulu porter à ce travail.

Mes vifs remerciements à **Mr S. MOUISSAT**, Maître Assistant Classe A au Département d'Électronique de l'Université Frères Mentouri Constantine 1 et mon collègue du Laboratoire LMI **Mr Y. Fermi**, qui n'ont pas manqué de m'apporter leur aide tant appréciable et bénéfique.

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

Table des Matières

Chapitre I : Etat de l'art

Introduction générale	1
I.1. Introduction	6
I.2. Les polymères	6
I.2.1. Structure chimique d'un polymère	7
I.2.2. Structure physique d'un polymère	8
a. Structure semi-cristalline	9
b. Structure amorphe	10
I.2.3. Présentation du matériau étudié	10
a. Polyimide aromatique (Kapton)	11
b. Caractéristique et utilisation industrielle du PI	11
I.3. Charge d'espace	12
I.3.1. Mécanismes de chargement électrique de la surface des isolants	14
I.3.2. Chargement électrostatique par décharge couronne	14
I.3.3. Processus de chargement dans une configuration triode	16
I.3.4. Phénomènes physiques intervenant dans le processus du déclin de potentiel de surface	17
a. Conduction de surface	17
b. Polarisation de l'échantillon	18
c. Neutralisation par le gaz	18
d. Phénomènes piézoélectriques	18
e. Injection de charges	19
I.4. Théorie sur les phénomènes d'évolution du déclin de potentiel de surface	19
I.4.1. Théorie des bandes d'énergie (piégeage dans le diélectrique)	19

I.4.2. Mécanismes élémentaires du transport de charges	21
I.4.2.1. Mécanismes d'injection de charges dans l'interface électrode-isolant	21
I.4.2.2. Mécanismes contrôlés par le volume de l'isolant	22
I.4.2.3. Conduction ionique	23
I.5. Conclusion	24
Références bibliographiques du chapitre I	25

Chapitre II : Caractérisation électrique des films de polyimide

II.1. Introduction	29
II.2. Démarche expérimentale	29
II.2.1. Poste de chargement par décharge couronne	31
II.2.2. Poste de mesure du potentiel de surface	33
II.2.3. Système de régulation de la température du substrat	35
II.2.4. Banc de balayage automatique	37
II.3. Mesure de l'évolution du potentiel de surface	41
II.3.1. Mesure du déclin de potentiel de surface	41
a. Influence du niveau de chargement	42
b. Influence de la température du substrat	44
II.3.2. Mesure de la distribution spatiale du potentiel de surface	47
II.3.3. Mesure du retour de potentiel de surface	53
II.3.4. Mesure du courant de charge	56
II.4. Analyse du déclin de potentiel de surface pour différentes températures	59
II.5. Conclusion	64
Références bibliographiques du chapitre II	66

Chapitre III : Modélisation du déclin de potentiel de surface des films de polyimide pour différentes températures

III.1. Introduction	70
----------------------------	-----------

III.2. Modélisation	71
III.2.1. Modèle bipolaire	71
III.2.2. Description du modèle physique	73
III.2.3. Equations du modèle élaboré	74
III.2.4. Piégeage, dépiégeage et recombinaison de charges	76
III.2.5. Equations de l'injection et extraction des charges	76
III.2.6. Calcul du courant externe	77
III.3. Méthodes numériques	78
III.3.1. Géométrie et grille de discrétisation	78
III.3.2. Résolution de l'équation de continuité	78
III.3.3. Choix de l'algorithme	79
III.3.4. Résolution de l'équation de Poisson	81
III.3.5. Organigramme général du modèle	83
III.4. Résultats de la simulation	85
III.4.1. Analyse de la sensibilité des paramètres du modèle	85
a. Variation de la mobilité	86
b. Variation du coefficient de piégeage	90
c. Variation du coefficient de dépiégeage	93
d. Discussion	94
III.4.2. Validation du modèle de simulation à partir de mesures expérimentales du déclin de potentiel de surface	95
a. Profils de densité de charges	97
b. Flux d'injection	103
c. Champ électrique	104
d. Taux de recombinaison	107
e. Discussion	108
III.5. Conclusion	110

Références bibliographiques du chapitre III	111
Conclusion générale	114
Liste des publications et communications de l'auteur	116

Introduction générale

Introduction générale

Les polymères occupent une place très importante en tant qu'isolants électriques dans l'industrie électrique et électronique grâce à leurs excellentes propriétés thermoélectriques et mécaniques. Ils sont utilisés comme diélectriques dans une grande variété de composants et de systèmes, tels que les câbles, les condensateurs, les machines électriques, les revêtements, etc. Au cours du temps, la conception des systèmes a évolué avec une tendance à l'augmentation des champs électriques appliqués aux isolations ainsi qu'un accroissement de leur température de fonctionnement [1, 2]. Cette évolution exige une amélioration des facteurs limitatifs de l'utilisation des isolants dans les systèmes. Les polymères isolants sont alors soumis à des contraintes thermoélectriques pouvant conduire à l'accumulation de charges électriques qui peuvent conduire à des décharges électrostatiques responsables de la rupture diélectrique de l'isolant et donc à la perte totale ou partielle du fonctionnement des équipements électriques et électroniques [3, 4]. La charge électrique piégée dans l'isolant peut, quant à elle, déformer la structure du matériau par force électromécanique et modifier les propriétés conductrices de ce dernier [5]. D'autre part, elle peut aussi modifier la distribution du champ électrique et renforcer celui-ci dans certaines régions [6]. Il est donc extrêmement important d'étudier l'effet des conditions environnementales telles que la température, l'humidité et la pression sur les propriétés électriques et les phénomènes de transport de charges électriques dans les matériaux isolants et particulièrement les polymères [2, 7, 8]. Ces conditions ont une influence significative sur les caractéristiques d'accumulation de charge d'espace, affectant le site et la distribution en profondeur du piège, ce qui entraîne une faible isolation électrique. Il est bien connu que toute modification des niveaux des pièges à charges peut avoir des effets importants sur l'accumulation de charges, le transport des porteurs et la conductivité dans le polymère [9].

Des techniques d'étude de la distribution de la charge et le transport dans les isolants telles que l'onde de pression (LIPP (Laser induced pressure pulse), PEA (Pulsed Electro Acoustic)) ou onde thermique (TSM (Thermal Step Method), FLIMM (Focused Laser Intensity Modulation Method), FLAMM (Focused Laser Acoustic Modulation Method)) ont été très largement développées et améliorées au cours des dernières années [10, 11]. Ces techniques sont assez complexes et parfois difficiles à mettre en œuvre, elles nécessitent un traitement mathématique lourd pour extraire les résultats et elles sont limitées pour les films minces [4, 12].

Après l'apparition des sondes électrostatiques fiables notamment celle à "condensateur vibrant" de type Trek ou Monroe, l'étude ainsi que la modélisation du potentiel de surface sont devenues essentielles dans le développement des systèmes de copie et d'impression électrostatique ainsi que l'étude des électrets et des propriétés de stockage stable de la charge dans un matériau ainsi que les systèmes d'isolation du génie électrique [12, 13, 14]. Elles permettent de caractériser l'état de charge des films isolants obtenus par excès de charges, notamment ceux qui ont subi un dépôt de charges par décharge couronne, ainsi que l'évaluation du potentiel de surface en circuit ouvert. La technique du déclin de potentiel de surface est largement répandue depuis une quarantaine d'années car elle est simple à mettre en œuvre, performante pour les faibles épaisseurs et permet d'étudier facilement les propriétés électriques et la compréhension des phénomènes de transport de charges électriques dans les polymères [15, 16]. L'avantage de cette technique est de mesurer le potentiel de surface sans contact avec la surface chargée et donc sans aucune modification physique de cette surface. La technique de mesure du potentiel de surface a donné lieu à divers développements tels que les mesures du déclin de potentiel de surface [14, 17] et les cartographies du potentiel de surface [13, 18] ainsi que les mesures du retour de potentiel qui apparaît après neutralisation des charges [19, 20].

L'objectif de ce travail consiste à faire une étude expérimentale sur l'effet de la température du substrat sur les propriétés électriques d'un film de polymère de type polyimide PI (appelé communément le Kapton) préalablement chargé par décharge couronne générée dans une configuration pointe-grille-surface. Ce matériau offre de bonnes propriétés mécaniques et électriques, une résistance à la température élevée (400 °C), une bonne tolérance à la température (-269 °C) et une résistance au rayonnement, ce qui le rend utile dans les applications de la microélectronique, du nucléaire et de l'aérospatiale [21, 22, 23]. Ces bonnes propriétés sont liées à sa structure aromatique. La première partie de l'étude consiste à suivre l'évolution temporelle du potentiel de surface de ce matériau avec l'augmentation de la température. La deuxième partie est consacrée à faire une modélisation numérique unidimensionnelle de la cinétique d'écoulement de charges électrostatiques afin de mettre en évidence l'effet de la température sur les différents paramètres de notre modèle qui contrôlent les mécanismes de transport de charges dans ces films.

Ce manuscrit est structuré en trois chapitres :

Le premier chapitre exposera l'état de l'art sur les polymères en mettant l'accent sur le PI (matériau utilisé dans notre travail) et sur la charge d'espace dans les matériaux

diélectriques ainsi que sur la décharge couronne comme technique de chargement électrostatique de polymères. Des généralités sur les différents mécanismes physiques responsables du déclin de potentiel de surface et sur les phénomènes de conduction dans les polymères seront présentées dans ce chapitre.

Le second chapitre sera consacré dans un premier temps à la présentation de la démarche expérimentale entreprise ainsi que le matériel utilisé dans le cadre de ce travail. Le dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation de la surface des films de PI sera décrit et le système de balayage automatique avec porte substrat chauffant réalisé sera présenté. Au cours des expériences, les échantillons de PI à différentes températures variant de 27 à 80 °C ont été soumis à une décharge couronne négative. Nous exposerons dans un second temps les mesures expérimentales que nous avons menées concernant l'étude de l'influence de la température du substrat sur l'évolution temporelle du potentiel de surface de films de PI chargés par décharge couronne. Les mesures du profil de potentiel sur la surface des films de PI et du retour de potentiel apparaissant après la neutralisation de charges seront également effectuées. De plus, les évolutions du déclin de potentiel de surface seront corrélées aux évolutions temporelles du courant de charges. L'analyse numérique des résultats du potentiel de surface $V_s(t)$, selon l'hypothèse de pièges profonds et peu profonds, afin de déterminer la distribution de la densité des charges piégées pour différentes températures sera également présentée.

Le troisième chapitre sera plus particulièrement consacré à la présentation des résultats relatifs à la modélisation de l'évolution du déclin de potentiel de surface dans le cas de films de PI pour différentes températures allant de 27 à 80 °C en utilisant un modèle bipolaire de transport de charges. Ce modèle est construit à travers un système d'équations aux dérivées partielles composé des équations de continuité couplées à l'équation de Poisson. Dans ce chapitre, nous justifierons les hypothèses que nous avons choisies pour décrire le transport de charges en terme de modélisation. Nous évaluerons d'abord la criticité des paramètres du modèle, afin de connaître l'influence de chacun d'eux sur les résultats de simulation. Cette étape permettra par la suite d'affiner les paramètres du modèle afin d'obtenir la meilleure corrélation avec les résultats expérimentaux du déclin de potentiel de surface pour différentes températures.

Une conclusion générale fera la synthèse des principaux résultats obtenus dans le cadre de cette étude.

Références bibliographiques de l'introduction

- [1] A.P. Viraneva, T.A. Yovcheva, E.S. Pisanova, E.A. Gencheva, G.A. Mekishev, "Analyses of behavior of PP corona electrets stored at low pressure", AIP Conference Proceedings, Vol. 1203, Issue 1, pp. 382-387, 2010.
- [2] Y. Gao, B.X. Du, F.Y. Yan, K. Hou, Z.Y. Liu, J.D. Chai, "Effects of charging temperature and charging time on surface potential decay of PTFE film with back electrode ungrounded", IEEE 14th International Symposium on Electrets, Montpellier, France, pp. 105-106, 28-31 August 2011.
- [3] L. Jianying, Z. Fusheng, M. Daomin, L. Shengtao, "The energy distribution of trapped charges in polymers based on isothermal surface potential decay model", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 22, N°. 3, pp. 1723-1732, 2015.
- [4] F. Mortreuil, "Etude des mécanismes d'injection et de stockage de charges dans un film mince diélectrique par microscopie à sonde de Kelvin (KPFM)", Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III, Paul Sabatier, 2015.
- [5] Y. Long, W. Xuan, W. Yiyong, "Study on evolution of deep charge traps in polyimide irradiated by low-energy protons using photo-stimulated discharge technique", J. Phys. D: Appl. Phys. Vol. 46, 2013.
- [6] 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 de Toulouse III, Paul Sabatier, 2011.
- [7] Y. Späck, S. Kumara and S.M. Gubanski, "Charge decay measurements on a polymeric insulation material under controlled humidity conditions", Nordic Insul. Symp., Trondheim, Norway, pp. 149-152, 2013.
- [8] A.P. Viraneva, T.A. Yovcheva and G.A. Mekishev, "Pressure effect on the polymer electret films", IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., Vol. 20, N°. 5, pp. 1882-1886, 2013.
- [9] L. Yue, X. Wang, Y. Wu, J.L. Cao, Y. Liu, C. Sun and J. Yang, "Study on evolution of deep charge traps in polyimide irradiated by low-energy protons using photo-stimulated discharge technique", J. Phys. D: Appl. Phys. Vol. 46, N°. 14, 145502 (6pp), 2013.
- [10] M. Taleb, "Phénomènes aux interfaces des isolants : Mesure et simulation", Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III, 2011.
- [11] S. Le Roy, "Modélisation numérique des phénomènes de transport électrique dans un isolant polyéthylène sous contrainte électrique", Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III, 2004.
- [12] B. Tabti, "Contributions à la caractérisation des filtres à électret par la mesure du déclin de potentiel de surface", Thèse de Doctorat, Université de Poitiers, Décembre 2011.
- [13] P. Molinié, "Charge injection in corona-charged polymeric films: potential decay and current measurements", Journal of Electrostatics, Vol. 45, N°. 4, pp. 265-273, 1999.
- [14] P. Molinie, "Measuring and modeling transient insulator response to charging: The contribution of surface potential studies", IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol.12, N°. 5, pp. 939-950, 2005.
- [15] P. Llovera, "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.

- [16] G. Charpak, G. Cordurié, J. Lewiner, D. Morisseau, “Méthode de mesure de distributions de charges électriques de surface”, *J. Phys. III, France 3*, pp. 2149-2161, 1993.
- [17] 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, pp. 169-181, 2003.
- [18] E.A. Baum, T.J. Lewis, R. Toomer, “The lateral motion of charges on thin films of polyethylene terephthalate”, *J. Phys. D.*, Vol. 11, pp. 963-977, 1978.
- [19] 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, N°. 6, pp. 1049-1056, 2004.
- [20] K. Yoshino, J. Kyokane, M. Yun, K. Nojima, Y. Inuishi, N. Kashiwagi, “Residual voltage in polyethylene”, *Japan. J. Appl. Phys.*, Vol. 21, pp. 1333-1336, 1982.
- [21] C.E. Sroog, “Polyimides”, *Prog. Polym. Sci.*, Vol. 16, pp. 561-603, 1991.
- [22] P. Molinié, P. Dessante, R. Hanna, T. Paulmier, B. Dirassen, M. Belhaj, D. Payan, N. Balcon, “Polyimide and FEP charging behavior under multienergetic electron-beam irradiation”, *IEEE Trans. Dielect. Electr. Insul.*, Vol. 19, N°. 4, pp. 1215-1220, 2012.
- [23] L.R. Zhou, G.N. Wu, B. Gao, K. Zhou, J. Liu, K.J. Cao, L.J. Zhou, “Study on charge transport mechanism and space charge characteristics of polyimide films”, *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, Vol. 16, pp. 1143-1149, 2009.

Chapitre I

Etat de l'art

Chapitre I : Etat de l'art

I.1. Introduction

L'industrie de polymères est l'un des plus importants secteurs dans les pays développés. Il est maintenant difficile de trouver un aspect de notre vie qui ne soit pas affecté par les polymères. L'industrie électrique et électronique est parmi les plus importants consommateurs des polymères synthétiques avec 8 % de la consommation mondiale annuelle [1]. Ceci est dû en grande partie à la facilité de transformation et de manipulation de ces matériaux. Dans ce secteur, les polymères sont largement utilisés en raison de leurs propriétés thermiques et diélectriques spécifiques, de la flexibilité de leur mise en œuvre et de leur faible coût [2]. Ces propriétés sont étroitement liées à leur structure physico-chimique : la nature chimique de leurs unités constitutives, de leur architecture, et enfin des conditions de leur mise en œuvre.

Dans ce chapitre, nous donnerons en premier lieu quelques notions sur les polymères, sur la charge d'espace dans les matériaux diélectriques ainsi que sur la décharge couronne comme technique de chargement électrostatique de polymères. Des généralités sur les différents mécanismes physiques responsables du déclin de potentiel ainsi que sur les phénomènes de conduction dans les polymères seront présentées dans ce chapitre.

I.2. Les polymères

Un polymère est une longue chaîne organique constituée de la répétition de molécules de base plus petites, dites unités monomériques [3]. Ces dernières sont des molécules organiques comprenant un ou plusieurs atomes de carbone [4]. Les macromolécules diffèrent d'un polymère à l'autre et déterminent en grande partie les propriétés électriques qui dépendent de la nature chimique des unités constitutives de la chaîne et de son architecture. A l'échelle macroscopique, un polymère est considéré comme un matériau homogène, mais à une échelle plus petite, sa structure est beaucoup plus complexe, due au nombre d'atomes constitutifs, à l'arrangement de ces atomes entre eux, et aux paramètres de mise en œuvre [5]. La structure d'une macromolécule, du point de vue nature chimique et du point de vue conformation spatiale, a un rapport essentiel avec les propriétés finales attendues pour l'utilisation du matériau (pur ou composite) élaboré à partir de cette macromolécule. Il existe différents types de polymères caractérisés par des propriétés différentes : certains sont utilisés pour leurs propriétés élastiques, thermiques ou encore électriques.

Dans le domaine électrique et électronique, le champ d'application des isolants organiques solides (les polymères) est étendu : câbles de télécommunication, condensateurs, alternateurs, moteurs électriques. L'utilisation de ces matériaux en tant qu'isolants électriques notamment : câble de transport d'énergie haute et très haute tension (LDPE, HDPE, XLPE), basse tension (PVC, EPR, EPDM, PTFE), dispositifs électroniques et circuits imprimés (PI, PET, époxy), revêtements spatiaux (PTFE, PI) [6], présente plusieurs avantages tels que : d'excellentes propriétés électriques (résistivité, rigidité, permittivité), une bonne tenue mécanique et une stabilité dimensionnelle. Ajoutons à cette liste, la mise en œuvre facile, le faible poids et pour certains la possibilité de recyclage. Hormis les applications électriques, nous pouvons citer leur utilisation dans les emballages, les fibres textiles, la peinture, les adhésifs, les cosmétiques, les pneumatiques, etc....

I.2.1. Structure chimique d'un polymère

La structure chimique du motif monomère est naturellement la caractéristique la plus importante pour un polymère. Il s'agit de la description d'une macromolécule à partir d'atomes, notamment le type d'atomes et leur disposition le long de la chaîne polymère, la nature des groupements terminaux et des substituants, le type et la longueur des ramifications, la masse molaire et l'arrangement spatial. L'association des atomes dans une macromolécule est due à des forces de cohésion de type chimique (covalente ou encore liaison primaire). En complément des liaisons chimiques, il y a toujours des liaisons physiques (liaison secondaire : interaction de Van der Waals) qui maintiennent mutuellement les chaînes macromoléculaires dans l'assemblage et qui agissent entre les segments d'une macromolécule. Cependant, il faut noter que les forces de cohésion chimiques sont beaucoup plus élevées que les forces de cohésion physiques (jusqu'à 10^3 fois). Notons qu'une élévation de température ou l'application de contraintes mécaniques élevées peut entraîner la destruction des liaisons faibles tandis que les liaisons fortes sont conservées (la rupture des liaisons chimiques, plus solide, est plus difficile et irréversible) [7, 8]. Par ailleurs, les propriétés physicochimiques du matériau (par exemple la résistance mécanique, la constante diélectrique, la résistance aux solvants et aux rayonnements etc.) ainsi que les propriétés thermo physiques (par exemple, la température de transition vitreuse, la température de fusion ou de dégradation...) sont conditionnées par la structure chimique du polymère [6].

On distingue deux grandes catégories de réactions chimiques permettant la préparation des polymères : la polymérisation en chaîne ou polyaddition (pour produire par exemple le polyéthylène, le polystyrène, le polypropylène...) et la polymérisation par étapes ou

polycondensation (pour produire par exemple le polyéthylène téréphtalate (PET)) [3]. Lors de la polymérisation, les monomères peuvent s'additionner de manière linéaire, ou former des ramifications. On appelle ces deux types de configurations linéaire et ramifiée [5]. La [figure I.1](#) représente schématiquement les différents types de macromolécules : macromolécule linéaire non ramifiée, ramifiée, enchevêtrée et réticulée [6]. Malheureusement, les polymères "purs" sont fragiles, et ils peuvent subir, sous l'action de diverses sources (chaleur, humidité, lumière...) des dégradations qui se traduisent par une modification de leur structure chimique, et entraînent une altération de leurs propriétés physiques. Ils ne peuvent donc pas être utilisés tels quels lors de leur élaboration. Pour cette raison, les polymères sont généralement mélangés à d'autres substances - charges telles que la silice, des additifs tels que les : antioxydants, des agents de réticulation, des plastifiants, et des colorants, lors de leur élaboration, pour modifier et renforcer leurs propriétés [5]. Ces composés peuvent modifier les propriétés physico-chimiques des polymères, ils sont donc utilisés pour améliorer les propriétés physiques et chimiques des polymères selon leur utilisation.

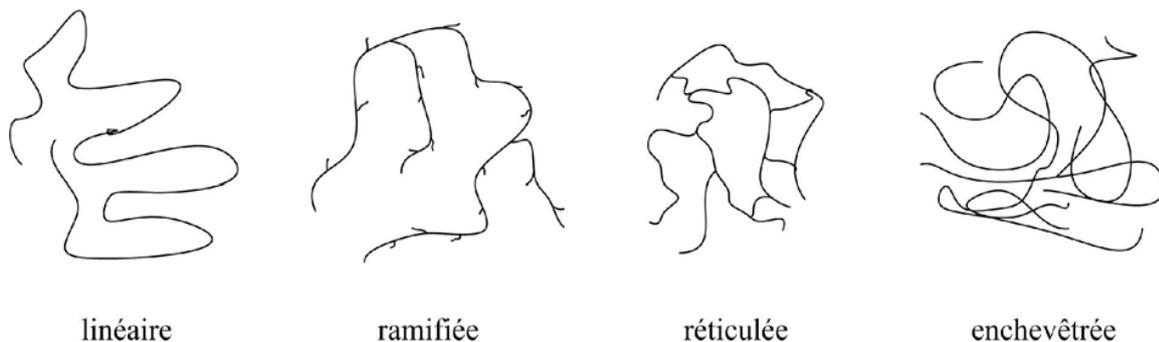


Figure I.1 : Représentation schématique de différents types de macromolécules [9].

I.2.2. Structure physique d'un polymère

La structure physique d'un polymère définit l'architecture ou l'arrangement spatial des atomes et des groupements d'atomes dans une macromolécule, mais aussi ceux des macromolécules les unes par rapport aux autres [5]. Ces macromolécules peuvent s'arranger en se repliant ou par rotation libre autour des axes de liaison, afin d'adopter la conformation qui demande le moins d'énergie. En effet ces différents arrangements peuvent conduire à des structures plus ou moins amorphes ou cristallines et mener ainsi à des propriétés différentes du matériau polymère [6]. Le polyéthylène (PE) par exemple, possède l'une des structures les plus simples de tous les polymères. La [figure I.2](#) montre la disposition spatiale des atomes dans la macromolécule de PE.

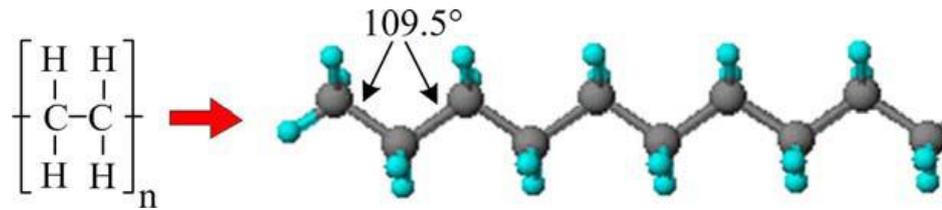


Figure I.2 : Représentation de la disposition spatiale d'une macromolécule du PE [7].

a) Structure semi-cristalline

Les polymères ne sont jamais totalement cristallins et doivent en fait être considérés comme des mélanges de phase cristalline et de phase amorphe. Sous l'influence de certaines actions physiques, des zones ordonnées suivant un réseau périodique, pourront apparaître au sein du polymère. Il existe souvent des irrégularités, comme des ramifications, et le polymère ne cristallise que partiellement. Dans les zones dites cristallines ou zones à structure ordonnées (qui sont caractérisées par l'arrangement et l'orientation parallèle les unes aux autres des chaînes macromoléculaires et entre elles, contrairement à la partie amorphe où il n'existe pas d'arrangement à longue distance) s'établit un réseau d'interaction transversale qui maintiendra la solidité de la structure. Cet alignement des chaînes moléculaires lui donne les propriétés de permittivité et de résistance mécanique [7]. Il est intéressant de noter que le degré de cristallinité a une certaine incidence sur les propriétés physiques des polymères. Plus le taux de cristallinité est grand, plus l'arrangement des chaînes les unes par rapport aux autres est régulier. La structure physique se forme au moment de la fabrication du polymère, et peut être différente selon les conditions de fabrication : température, pression, étirement [10]. En général, les polymères semi-cristallins sont plus rigides et plus résistants aux contraintes mécaniques et thermiques appliquées. A titre d'exemple, le polyéthylène est semi-cristallin et le polystyrène atactique est complètement amorphe [1]. La figure I.3 présente la structure d'un polymère semi-cristallin.

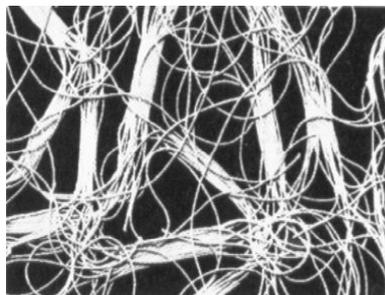


Figure I.3 : Structure d'un polymère semi-cristallin [11].

La structure physique d'un polymère, comme la structure chimique, subit elle aussi un certain désordre sous les influences extérieures (champ électrique, chaleur, impuretés chimiques...) et les conditions de mise en forme et les effets du vieillissement. Les impuretés chimiques altèrent la structure physique du polymère, puisqu'elles distordent la maille cristallographique. Toutes ces distorsions de structure physique créent un désordre au sein de la matrice polymère solide, on l'appellera désordre physique ou conformationnel [7].

b) Structure amorphe

L'état amorphe des matériaux polymères correspond à une structure comparable à celle des liquides caractérisés par l'absence d'ordre à grande distance. Il n'y a pas de distance constante entre les macromolécules et aucune régularité dans l'arrangement et l'orientation de celles-ci dans des zones submicroniques [12]. Dans les structures amorphes, les macromolécules peuvent former des points d'enchevêtrement qui sont inévitables à partir d'une certaine longueur de chaînes macromoléculaires. Les segments des chaînes sont capables de créer une certaine mobilité moléculaire si les espaces libres sont distribués dans tout le volume. La structure amorphe est sensible aux impuretés. La figure I.4 présente la structure d'un polymère amorphe.

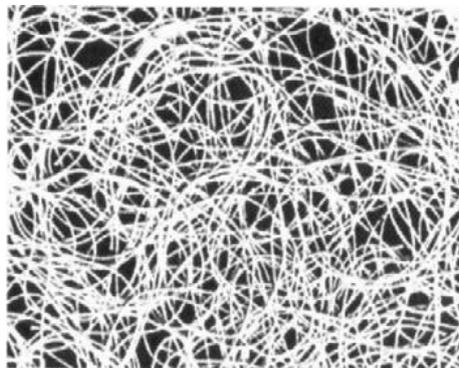


Figure I.4 : Structure d'un polymère amorphe [11].

I.2.3. Présentation du matériau étudié

Les polyimides (PI) constituent une famille de polymères de spécialité en forte croissance, particulièrement recherchés pour des applications dans des environnements hostiles [13]. A cause de leurs excellentes propriétés thermiques, mécaniques et électriques, les PI trouvent d'énormes applications dans de nombreuses technologies, allant de la microélectronique aux matrices à haute température et aux adhésifs pour membranes de séparation de gaz [14, 15]. Ils conservent leurs propriétés mécaniques pendant très longtemps à une température de 200 à 250 °C, et supportent un traitement thermique de plus courte durée

entre 350 °C et 400 °C [16]. La stabilité thermique des polyimides est attribuée à la présence d'un cycle imide inerte et à une interaction élevée entre les chaînes [2], c'est-à-dire une cohésion élevée entre les chaînes polymères. Une structure représentative d'un polyimide est représentée à la [figure I.5](#). En plus de leur stabilité thermique, les films de polyimides ont d'excellentes propriétés mécaniques entre -269 °C et 300 °C, de très bonnes propriétés électriques qui restent stables dans des conditions de forte humidité relative. Ils sont, de plus, insensibles aux solvants organiques et, pour les applications nucléaires et spatiales, ils offrent une excellente résistance aux rayonnements ionisants [16].

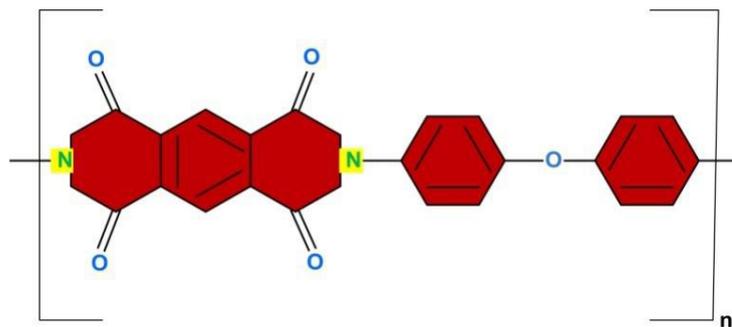


Figure I.5 : Structure chimique du Kapton® [17].

a. 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.6](#)), largement connu sous le nom de Kapton®, a été commercialisé pour la première fois au début des années 1960 [18]. 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 [2]. Leur structure chimique fortement aromatique est responsable de bon nombre de leurs propriétés.

b. Caractéristique et utilisation industrielle du PI (Kapton®)

Dans notre cas, nous avons travaillé sur des films de 50 μm d'épaisseur (Kapton® HN de Goodfellow). Leurs caractéristiques sont :

- 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 ;
- une faible constante diélectrique (3.4) ;

- une grande résistance chimique ;
- une bonne résistance à la radiation ;
- une densité relativement faible (1.53 g/cm^3) ;
- une faible énergie de surface (composante polaire 9 mJ/m^2).

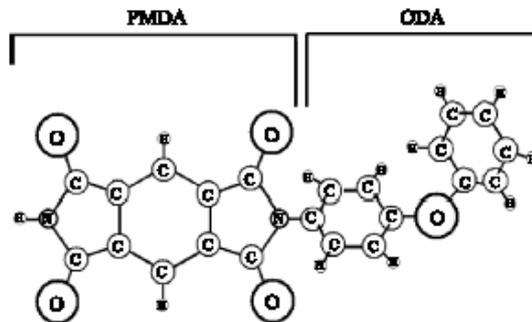


Figure I.6 : Formule chimique du Kapton® [19].

Les applications des polyimides sont très nombreuses, pour des usages très précis pour lesquels leurs propriétés apparaissent indispensables malgré leur prix élevé. Le film Kapton® est utilisé entre autres dans les circuits imprimés flexibles (électronique flexible) non seulement comme film support, mais également sous forme de laminés avec le cuivre pour faire des nappes de conducteurs flexibles ou des supports de circuits intégrés dans le procédé TAB "*Tape Automated Bonding*" [16, 20]. Le Kapton® a été largement utilisé dans l'industrie aéronautique civile et militaire, pour des panneaux et des éléments de structure, entretoises, composites et nids d'abeille, avec renforcements en résine époxy, voire une matrice complète en polyimides [13], en raison de son poids très léger comparé à celui d'autres types d'isolants, ainsi que de ses bonnes caractéristiques d'isolation et de température. Le Kapton® est également utilisé pour surveiller le flux sur les sources de rayons X. Le laboratoire de Jet Propulsion de la NASA a considéré le Kapton® comme un bon support plastique pour les voiles solaires en raison de sa longue durée d'utilisation dans l'environnement spatial [2]. Le Kapton® est également utilisé dans l'industrie mécanique et automobile, notamment dans les compresseurs à gaz, par exemple: vannes et joints d'étanchéité, et pour véhicules spéciaux, quand une haute résistance thermique est nécessaire (paliers, éléments coulissants) [2].

I.3. Charge d'espace

Un isolant parfait pourrait être défini comme un matériau présentant une parfaite pureté de telle sorte que les seules sources de charges internes soient les atomes du réseau (noyaux atomiques et les électrons des couches internes et de valence). En réalité, il n'existe pas d'isolants parfaits. Ainsi, lorsqu'un isolant est soumis à de fortes contraintes (champ

électrique élevé, irradiation, rayonnement solaire UV, variation de température, efforts et frottements mécaniques importants, ou l'exposition à une décharge couronne dans notre cas), un excès de charges électriques apparaîtra dans certaines régions de l'isolant. Ces charges, appelées 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 [7]. Le déplacement de charges provoque des accumulations de charges et l'intensification locale du champ qui peut augmenter localement la contrainte électrique [1]. En effet, la charge d'espace est un facteur majeur dans le comportement diélectrique des isolants (la fiabilité à haute tension, le facteur de dissipation diélectrique en fonction de la température et la fréquence) [1, 17]. Le rôle de la charge d'espace dans le vieillissement diélectrique des isolants fait l'objet d'études approfondies depuis plus de soixante-dix ans [21-23].

Selon les mécanismes de génération (figure I.7), les charges d'espace sont classées en plusieurs types [6] :

- des charges intrinsèques : ions ou charges électroniques contenus initialement dans l'isolant, ou générés soit par électro dissociation 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 ou une décharge couronne.

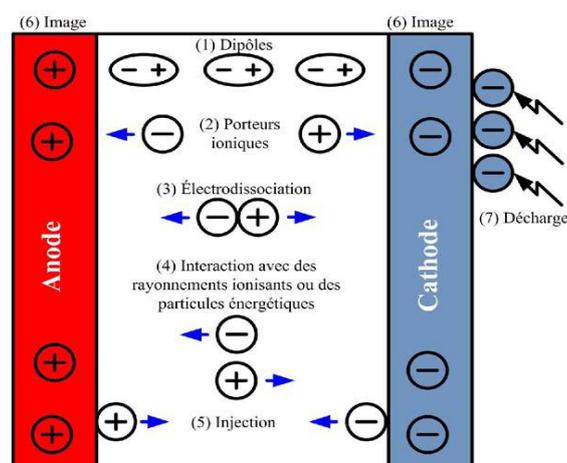


Figure I.7 : Différents mécanismes de génération des charges d'espace [24].

I.3.1. Mécanismes de chargement électrique de la surface des isolants

Un corps chargé électriquement est la manifestation d'une accumulation ou d'une perte de charges électriques. La décharge électrostatique est probablement le phénomène le plus important à appréhender, car il est la principale cause des nuisances dues à l'électricité statique. Ce phénomène traduit l'écoulement des charges électriques qui intervient naturellement après une phase d'accumulation.

Il y a de nombreux modes d'électrisation possibles [25]:

- ✓ par frottement (triboélectricité) ;
- ✓ par contact (transfert direct de charges) ;
- ✓ l'effet corona (ou effet couronne) ;
- ✓ par ionisation (émissions d'ions sous haute tension) ;
- ✓ par influence (à l'aide d'un champ électrique) ;
- ✓ par clivage (fragmentation) ;
- ✓ par effet photoélectrique ;
- ✓ par émission thermoélectronique ;
- ✓ par ballo-électricité (agitation des particules dans un flux de gaz) etc.

Les phénomènes les plus répandus étant l'effet triboélectrique et l'effet corona, nous nous intéressons dans ce travail à la décharge couronne qui correspond au phénomène d'ionisation de l'air proche d'un corps dont le potentiel électrique est très élevé.

I.3.2. Chargement électrostatique par décharge couronne

La décharge couronne est une décharge autoentretenu non destructive, qui peut apparaître lorsqu'une différence de potentiel suffisamment élevée est appliquée entre des électrodes asymétriques, tels que fil-plan ou pointe-plan [26]. La dissymétrie des électrodes conduit à un champ électrique inhomogène dans l'espace inter-électrodes. Une décharge corona est, par définition, une décharge gazeuse dans laquelle la géométrie limite les processus d'ionisation du gaz aux régions d'ionisation à champ élevé situées autour de la ou des électrodes actives [27-29]. Théoriquement, un gaz constitue un isolant parfait lorsqu'il ne contient que des atomes ou des molécules neutres. En pratique, un gaz contient toujours un certain nombre de charges électriques libres dues à l'action de certains agents ionisants extérieurs permanents, tel que le rayonnement cosmique ou bien la radioactivité des substances radioactives présentes dans la terre. Leur densité est relativement faible. L'application d'un champ électrique suffisamment intense, à un gaz, le rend plus ou moins

conducteur et les phénomènes complexes qui se produisent alors portent le nom de la décharge dans les gaz ; ils sont dus à l'apparition d'électrons et d'ions libres [30-32]. Le seuil d'excitation de la décharge couronne dépend de l'existence d'électrons libres d'énergie suffisante pour déclencher le phénomène d'avalanche responsable de l'ionisation du gaz présent entre les deux électrodes. Les électrons sont des agents ionisants effectifs parce que lors des chocs, ils transfèrent toute l'énergie acquise du champ électrique, aux molécules du gaz. L'électrode active peut être une pointe, plusieurs pointes disposées en forme de peigne, ou un fil très fin. La [figure I.8](#) montre une couronne typique de pointe à plan, avec quelques termes couramment utilisés. Dans cette géométrie, la région de champ élevé où la génération de charges se produit, est confinée près de la pointe, ce qui évite le phénomène de claquage. L'intervalle d'aire entre électrodes comporte deux zones : une zone ionisée et une zone de dérive. La plus grande partie de la distance pointe-plan est soumise à un champ suffisamment faible pour qu'aucune génération de charges n'y soit possible, seul le transport de la charge créée près de la pointe pourra s'y produire [33]. Au voisinage de l'électrode pointue, le champ est suffisamment élevé pour provoquer l'ionisation de l'air et les charges qui en résultent sont entraînées vers l'électrode à faible champ. Le diélectrique est posé sur le plan de masse, sous l'action du champ électrique, il reçoit des charges de même polarité que l'électrode couronne (pointe) [34].

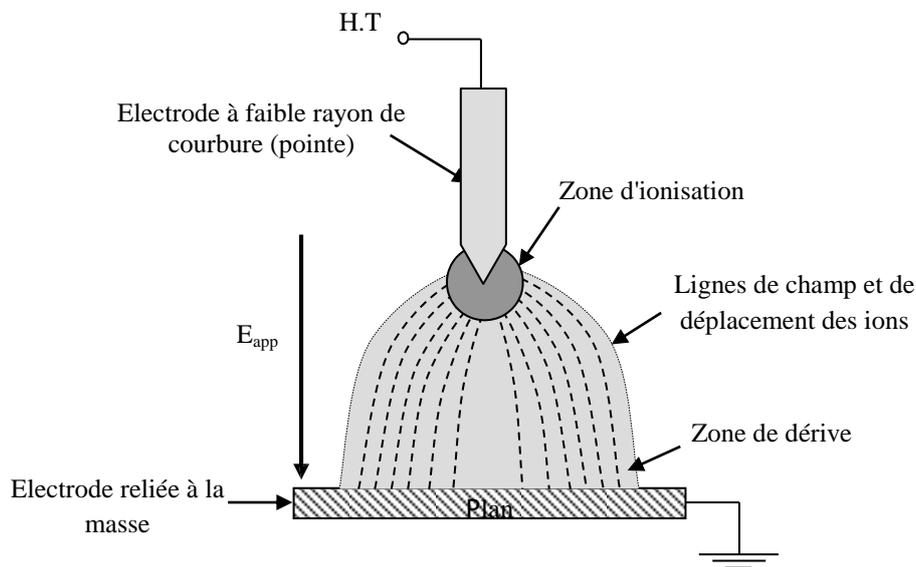


Figure 1.8 : Configuration pointe-plan pour le dépôt de charges [26].

Les techniques de spectrométrie ont été utilisées par plusieurs auteurs [35-37] pour identifier les types d'ions générés dans les décharges couronnes positives et négatives selon la

polarité de la tension appliquée. Par exemple, dans l'air à pression atmosphérique et à une humidité relative comprise entre 40 à 60 %, dans le cas d'une décharge positive, des ions positifs seront formés tels que $(H_2O)_nH^+$, NO^+ et NO_3^+ . D'autres espèces d'ions peuvent apparaître à des faibles taux d'humidité tels que $(H_2O)_nNO^+$ et $(H_2O)_nNO_2^+$ [38, 39]. Ces ions seront neutralisés en acceptant des électrons lorsqu'ils atteignent le diélectrique, laissant ainsi une couche de trous piégés au-dessous de la surface libre du matériau. Par contre, pour la décharge négative des ions négatifs seront formés tels que CO_3^- , CO_4^- , O_3^- et O_2^- , ainsi que d'autres ions hydratés $(H_2O)_nCO_3^-$ à 50 % d'humidité relative [38, 39]. Une fois que ces ions atteignent la surface libre du diélectrique, ils seront neutralisés en cédant leurs électrons et une couche d'électrons piégés est formée juste au-dessous de la surface libre du diélectrique. La décharge couronne produit aussi des espèces neutres excitées comme l'ozone et l'oxyde d'azote (O_3 , O_2 , N_2) [40-42].

I.3.3. Processus de chargement dans une configuration triode

Les dispositifs pointe plan traditionnellement utilisés pour charger les échantillons polymères offrent moins de contrôle sur l'uniformité des charges de surface. Afin d'obtenir des valeurs plus élevées de charges de surface et plus de contrôle sur leur uniformité, on insère entre le diélectrique et l'électrode couronne une grille conductrice portée à un potentiel plus faible et de même polarité que le potentiel appliqué à l'électrode active [39]. Cette grille 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 [38]. Un agencement simple de la triode corona est illustré sur la [figure I.9](#).

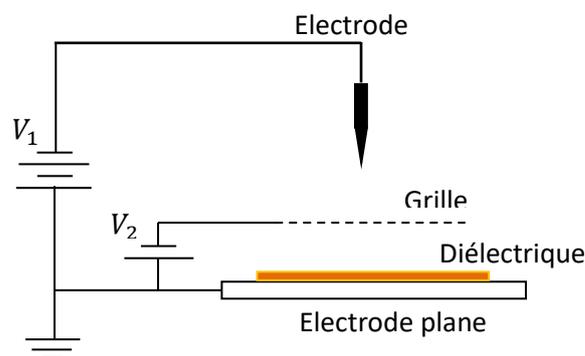


Figure I.9 : Dispositif à triode de chargement par effet couronne.

I.3.4. Phénomènes physiques intervenant dans le processus du déclin de potentiel de surface

Plusieurs phénomènes physiques interviennent simultanément dans le déclin du potentiel de surface [41,42]. C'est pourquoi, l'interprétation et la modélisation des courbes d'évolution du potentiel de surface au cours du temps [41, 43-45] nécessite une connaissance de ces mécanismes et qui sont :

- conduction de surface ;
- polarisation de l'échantillon ;
- neutralisation par le gaz ;
- phénomène piézoélectrique ;
- injection de charges.

Nous allons rappeler brièvement les différentes causes physiques possibles du déclin de potentiel de surface. La figure I.10 résume schématiquement les différents processus qui peuvent contribuer au déclin du potentiel de surface.

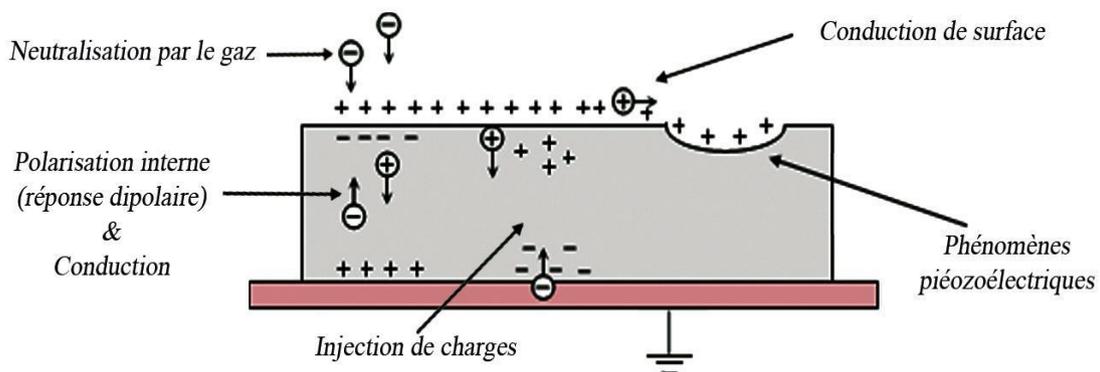


Figure I.10 : Différents processus qui peuvent contribuer au déclin du potentiel de surface [39].

a. Conduction de surface

La conduction de surface constitue une des causes du déclin. Elle est observée surtout dans les cas d'échantillons épais et vieillis par décharges couronnes [42, 46]. 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. Dans les matériaux isolants désordonnés que sont les polymères, en dehors de conditions particulières d'activation (par la température, le champ, le rayonnement), la conduction proprement dite se manifeste surtout sous forme de conduction de surface [44]. Grâce à la présence de l'oxygène, l'ensemble de la surface présente une

structure différente sous forme de couche dégradée fortement oxydée [42]. Les propriétés physico-chimiques de cette couche sont très différentes de celle du matériau initial. Il en résulte une importante conductivité de surface. L'évolution de cette surface est assez complexe et dépend de plusieurs paramètres tels que la structure de l'isolant et le mode de vieillissement [42, 47, 48].

b. Polarisation de l'échantillon

Plusieurs études [49, 50] ont montré que les phénomènes de polarisation sont responsables pour une partie du déclin de potentiel et parfois même pour expliquer à eux seuls le déclin. Le champ appliqué par les charges déposées en surface oriente les dipôles déjà existants (pour le cas des matériaux dipolaires) ou crée des dipôles dans le volume qui provoquent une charge en surface de signe opposé [38]. Les dipôles les plus proches de la surface s'orientent de telle manière qu'ils viennent compenser la charge surfacique. Ce phénomène est généralement caractérisé par une sensibilité de la constante diélectrique avec la température [12].

c. Neutralisation par le gaz

La neutralisation des charges déposées sur la surface de l'isolant par les charges libres provenant directement de l'atmosphère environnant le matériau, est un autre processus qui peut contribuer au déclin de potentiel de surface. Lors du dépôt de charges, 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 [51]. Ce qui entraîne une réduction du potentiel de surface. La concentration en ions libres, la force du champ électrique au voisinage de l'échantillon chargé et les profondeurs d'énergie de l'état de surface sont des facteurs critiques qui déterminent l'efficacité de la décroissance de la charge de surface due à la neutralisation des gaz [52].

d. Phénomènes piézoélectriques

L'effet piézoélectrique est un processus physique qui peut contribuer au déclin du potentiel de surface d'un matériau. 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 [38]. Sous l'effet d'un champ électrique, la structure piézoélectrique sera le siège de champs de déformations et de contraintes induites. De plus, la charge déposée sur

la surface crée une force sur le matériau qui subit une contraction de son volume, cela se traduit alors par l'apparition d'une polarisation électrique à la surface [41]. D'autre part, une contraction mécanique de volume du matériau sous l'effet de la pression électrostatique, peut avoir une influence sur le potentiel de surface [43].

e. Injection de charges

Le phénomène d'injection de charges à partir de la surface du matériau isolant 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. La plupart des modèles décrivant le déclin du potentiel développés dans la littérature scientifique supposent que sa cause physique est l'injection dans le volume de la charge déposée sur la surface du matériau [53]. Le premier modèle développé est celui de Ieda et *al* en 1969 [54]. L'état de surface ou son contact avec un autre matériau joue un rôle important sur le processus de l'injection. La décharge couronne, le temps d'exposition à la décharge, ainsi que la température et l'humidité volumique sont des facteurs qui peuvent jouer un rôle de premier plan. La conduction en volume est surtout présente dans le cas des échantillons minces (épaisseur de l'ordre du micron) mais elle reste également observée dans des échantillons épais [46].

I.4. Théorie sur les phénomènes d'évolution du déclin de potentiel de surface

I.4.1. Théorie des bandes d'énergie (piégeage dans le diélectrique)

Les propriétés électroniques et optiques d'un matériau découlent de sa structure de bandes. La théorie des bandes d'énergie a initialement été élaborée pour les matériaux semi-conducteurs. Elle peut être aussi utilisée pour représenter la conductivité des isolants en considérant le diélectrique comme un semi-conducteur de bande interdite supérieure à 5 eV [6]. La structure de bande d'énergie d'un isolant résulte de la combinaison de la nature ondulatoire de l'électron et de la périodicité du réseau cristallin. Les électrons du cristal (intrinsèques ou injectés) ne peuvent occuper qu'un certain nombre d'états d'énergie permis (bande de conduction et bande de valence) qui se répartissent en bandes séparées par des intervalles d'énergies interdits, communément désignés par le mot anglais "gap" [55]. Un matériau diélectrique parfait présenterait une structure cristallographique sans défauts et sans impuretés. Il aurait alors un diagramme énergétique tel que présenté sur la [figure I.11](#) avec une bande de conduction et une bande de valence séparées par un gap important (entre 8 et 10 eV généralement) [56]. La seule possibilité offerte à un électron pour changer d'état sous

l'application (par exemple) d'un champ électrique est de transiter vers la bande vide suivante (bande de conduction). Cependant, étant donnée l'importante valeur de la bande interdite, l'énergie fournie par le champ électrique reste insuffisante pour produire une telle transition et l'application d'un champ électrique (modéré) ne s'accompagne pas d'une circulation de charges. Par contre, si un électron excédentaire est injecté dans ce cristal parfait mis à la masse, il sera rapidement évacué et aucune localisation (ou piégeage) de charges n'est possible. Ceci constitue la définition «académique» d'un isolant parfait (cristallin parfait) [6]. Un tel matériau n'existe jamais dans la réalité. En général, un matériau diélectrique (polymère) possède des défauts de structure du fait de sa nature semi-cristalline (ou amorphe) ainsi que des impuretés [57]. Cela a pour conséquence la présence d'états localisés dans la bande interdite qui vont réduire le gap comme représenté sur la [figure I.12](#). Ces défauts de structure se traduisent par des états d'énergie intermédiaires dans la bande interdite qui peuvent piéger des charges dans le polymère [6]. Le piégeage de charges est le phénomène opposé au mouvement des charges. Les sites de piégeages correspondent à une variation de la permittivité diélectrique du réseau [17]. Selon l'origine des pièges, on peut les distinguer par deux types d'états localisés [58]:

- 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 [6].

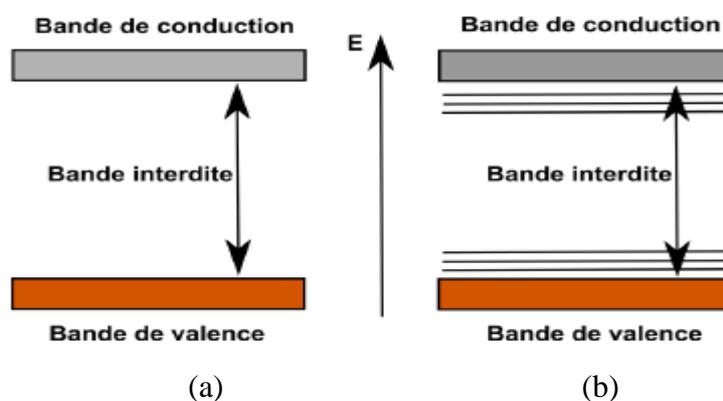


Figure I.11 : Diagramme de bande d'énergie, a) pour un réseau cristallin parfait ; b) pour un polymère [17, 58].

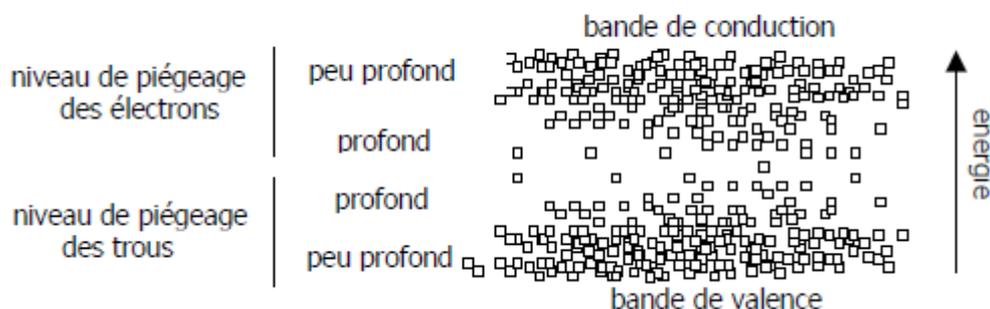


Figure I.12 : Représentation schématique d'un diagramme de bande pour un polymère, les carrés représentent les états localisés dans le gap [2].

I.4.2. Mécanismes élémentaires du transport de charges

I.4.2.1. Mécanismes d'injection de charges dans l'interface électrode-isolant

L'injection de charges est un mécanisme contrôlé par l'interface. Elle désigne une injection dans le matériau de porteurs de charges extrinsèques. Lorsqu'on met en contact un isolant et un métal, un transfert de charges se produit entre les deux matériaux du fait de la différence entre leurs niveaux de Fermi respectifs [39]. Le phénomène d'injection consiste dans le passage d'une charge de l'électrode (métal caractérisé par son travail de sortie) vers la bande de conduction du diélectrique. Ce passage nécessite une énergie non-nulle permettant de franchir la barrière énergétique [57]. Un schéma idéalisé de l'interface électrode-isolant est représenté sur la [figure I.13](#). Sans champ électrique appliqué, la hauteur de barrière dépend de l'énergie du niveau de Fermi du métal constituant l'électrode. En présence d'un champ électrique E , une énergie supplémentaire est fournie aux charges injectées par l'électrode en plus de leur énergie thermique [43]. Cet apport d'énergie conduit à un abaissement de la hauteur de barrière. On distingue trois mécanismes possibles :

- L'effet Schottky, également appelé effet thermoélectronique (cas 1, [figure I.13](#)), est l'injection de charges dans le diélectrique par passage au-dessus de la barrière de potentiel que représente l'interface. La hauteur de barrière initiale est diminuée par l'application d'un champ électrique. La charge pourra alors plus facilement la franchir par agitation thermique [12].
- L'effet tunnel ou Fowler-Nordheim (cas 2, [figure I.13](#)), ce mécanisme d'injection traduit l'injection de charges dans l'isolant directement à travers la barrière de potentiel à l'interface. La charge pourra passer à travers la barrière d'énergie par effet tunnel qui ne nécessite pas d'activation thermique [59]. Cet effet ne devient significatif que pour

des champs élevés (10^9 V/m^{-1}) [60]. Dans ce cas, l'épaisseur de la barrière de potentiel est très fine.

- L'effet tunnel activé thermiquement (cas 3, figure I.13) [57].

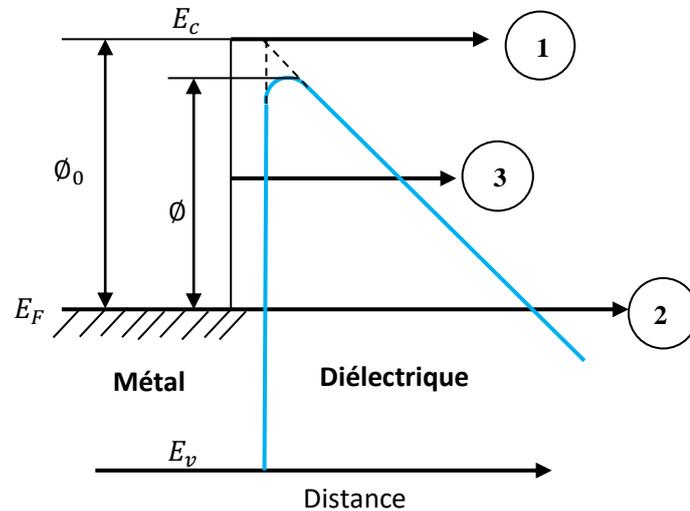


Figure I.13 : Différents mécanismes d'injection de charges dans une interface électrode-isolant [12].

I.4.2.2. Mécanismes contrôlés par le volume de l'isolant

La loi ohmique de conduction ne peut pas expliquer la conduction dans les polymères isolants puisque la mobilité dans les polymères (de l'ordre de $10^{-10} - 10^{-15} \text{ m}^2/\text{V.s}$) est petite par rapport à celle minimale relative à la théorie ohmique qui est de l'ordre de $10^{-5} \text{ m}^2/\text{V.s}$. En tenant compte de la structure moléculaire, les polymères peuvent présenter une conductivité intramoléculaire surtout si les chaînes moléculaires contiennent des doubles liaisons conjuguées [12]. D'autre part, les pièges présents initialement dans la structure du polymère sont vecteurs du transport électronique [61, 62]. Une fois injectées dans le matériau, les charges électriques vont se retrouver piégées. Le piège peut être vu comme un puit quantique tridimensionnel. 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 [57]. Il existe plusieurs théories permettant de décrire le transport de charges électroniques dans le diélectrique. Ces théories sont basées sur différents modèles pour décrire les mécanismes de conduction qui sont dépendant du champ appliqué, de la température, de la nature et de la densité de pièges présents dans le matériau [61, 63]. Nous pouvons notamment citer : la conduction de Poole-Frenkel, la conduction par saut (hopping) et la conduction limitée par la charge d'espace (SCLC pour Space Charge Limited Current).

- La conduction de type Poole-Frenkel se produit lorsque la densité de pièges est faible [64]. Ce mécanisme est l'analogie de l'injection de Schottky à l'interface métal-isolant et se produit à champ fort. La conduction de type Poole-Frenkel décrit le déplacement des porteurs qui se trouvent dans la bande de conduction et qui peuvent être piégés. Ces porteurs peuvent se dépiéger en acquérant une énergie thermique suffisante leur permettant de franchir la barrière de potentiel. Dans ce cas-là, la hauteur de barrière à franchir est la profondeur du piège [57, 65].
- Le courant limité par charges d'espace. Dans ce cas les pièges présents dans le matériau vont modifier la conduction en empêchant les charges injectées de participer dans le phénomène de transport de charges. Différentes configurations seront présentes. A faible champ, le courant suit la loi d'ohm due aux porteurs intrinsèques. A champ moyen les charges injectées dominant (dont une partie est piégée) le courant de conduction dépend alors du ratio charges mobiles/charges piégées. Enfin à fort champ, tous les pièges sont peuplés et la conduction se passe comme s'il n'y avait pas de pièges [57].
- Le phénomène de conduction par saut, aussi appelé "hopping" implique l'existence de plusieurs niveaux plus ou moins repartis dans la bande interdite de l'isolant. Toutefois, ces sites doivent être suffisamment proches, spatialement et/ou énergétiquement, les uns des autres de façon à ce que les orbites de ces sites se recouvrent [6]. Un électron peut se dépiéger en sautant d'un site et se repiéger sur un état non occupé voisin s'il acquiert l'énergie nécessaire pour franchir la barrière de potentiel. Cette énergie vient généralement de l'excitation thermique du matériau. Cette conduction dépend des caractéristiques du matériau : nombre de pièges, distance moyenne les séparant, etc... [64]. En pratique, la mobilité obtenue pour une conduction par hopping est plus faible par rapport à celle obtenue pour un courant limité par charge d'espace car les charges restent la plupart du temps piégées et participent donc moins au transport de charges [65].

I.4.2.3. Conduction ionique

Dans les polymères isolants, la conduction ionique se produit à cause de la présence d'ions qui, en plus ou moins grandes quantités, existent dans tous les matériaux diélectriques. La nature des porteurs de charges ioniques est très variée, ils peuvent être des protons ou d'autres types d'ions [6]. Ils proviennent d'impuretés, dépendant des procédés de fabrication, des processus d'ionisation, par exemple : le soufre présent dans certains anti-oxydants, des ions organiques (oxalate...) issus de l'oxydation du polymère [66], des molécules d'eau contenues dans l'isolant intervenant dans l'ionisation des impuretés [67]. Ces ions auraient

une certaine mobilité dans le matériau et leur mouvement pourrait être activé par le champ et la température. En général, on considère que ce mouvement devrait être plus difficile lorsque la pression hydrostatique sur le matériau augmente. Les ions disposeraient alors de moins de volume libre pour leur mouvement et leur mobilité serait réduite. Le transport d'ions résulte en un transport de matière [39]. Il est indispensable, pour le transport ionique, de tenir compte de la masse et de la taille de ces ions, en comparaison avec celle des électrons et des trous. La mobilité de ces ions est ainsi beaucoup plus faible que la mobilité électronique [2].

I.5. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons rappelé quelques généralités et propriétés sur les polymères qui sont des isolants solides présentant de bonnes propriétés physico-chimiques qui les rendent plus utilisées dans le domaine de l'industrie. Nous avons ensuite présenté les différentes techniques de chargement notamment la décharge couronne qui représente le moyen le plus efficace de chargement électrostatique des polymères, ainsi que les phénomènes physiques responsables du déclin de potentiel de surface. Enfin, nous avons présenté des généralités sur les mécanismes élémentaires du transport de charges dans les polymères.

Références bibliographiques du chapitre I

- [1] M. Taleb, "Phénomènes aux interfaces des isolants : Mesure et simulation", Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III-Paul Sabatier, 2011.
- [2] C.S. Ha, A.S. Mathews, "Polyimides and high performance organic polymers", *Advanced Functional Materials* : Springer, pp 1-36, 2011.
- [3] S. Zelmat, "Etude des propriétés électriques d'un matériau polyimide à haute températures : Application à la passivation des composants de puissance en carbure de silicium", Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III-Paul Sabatier, 2006.
- [4] A. Bellel, "Traitement de surfaces de polymères par décharge couronne et plasma", Thèse de Doctorat, Université Mentouri de Constantine, 2004.
- [5] S. Le Roy, "Modélisation numérique des phénomènes de transport électrique dans un isolant polyéthylène sous contrainte électrique", Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III, 2004.
- [6] M.Q. Hoang, "Implémentation de la polarisation dans un modèle de transport de charges appliqué au PEN sous contrainte électrique", Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III, 2014.
- [7] T.T. Anh, "Corrélation entre les charges d'espace accumulée et les déformations mécaniques induites dans des isolants organiques solides soumis à un champs électrique", Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III, 2011.
- [8] S. Etienne, L. David, "Introduction à la physique des polymères", Sciences Sup, Dunod, Paris, 2012
- [9] G.W. Ehrenstein, F. Montagne, "Matériaux polymères ; structure, propriétés et applications". Hermès Science Publications, Paris, 2000.
- [10] K. Yahagi, "Dielectric properties and morphology in polyethylene", *IEEE Transactions on Electrical Insulation.*, Vol. 15, pp. 241-250, 1980.
- [11] N. Zouzou, "Étude de la mobilité moléculaire du PEN destiné à la fabrication des condensateurs : Influence de la microstructure", Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier, 2002.
- [12] K. Rougdia, "Analyse de la dynamique des charges à la surface des polymères isolants", Thèse de Doctorat, Université 8 Mai 1945, Guelma, 2015.
- [13] O. Talon, Polyimides linéaires (PI), *Techniques de l'Ingénieur*, Réf : AM3398 v1, 2007.
- [14] K. L. Mittal, Ed. Polyimides: Synthesis, Characterization and Applications. Plenum, New York, 1984
- [15] Y. Kim, M. Ree, T. Chang, C.S. Ha, T.L. Nunes, J.S. Lin, "Rodlike/flexible polyimide composite films prepared from soluble poly(amic diethyl ester) precursors: Miscibility, structure, and properties", *J. Polym. Sci. Part B: Polym. Phys.*, Vol. 33, pp. 2075, 1995.
- [16] P.P. Gonzalez, "Influence des procédés de dépôt des couches minces polymères sur leurs propriétés de surface ", Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III, 2008.
- [17] M.A. Arnaout, "Caractérisation d'une cellule de mesure électro-acoustique-pulsée pour la qualification électrostatique des diélectriques spatiaux : modélisation électro-acoustique et traitement du signal", Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III, 2011.

- [18] R.R. Cheng, S.L. Wunder, "NMR and FTIR investigation of the solution imidization kinetics of model compounds of PMDA/ODA polyamic ethyl ester", *Journal of Polymer Science, Part B: Polymer Physics*, Vol. 34, N°. 3, 1996.
- [19] S.H. Kim, S.H. Cho, N.E. Lee, H.M. Kim, Y.W. Nam, Y.H. Kim, "Adhesion properties of Cu/Cr films on polyimide substrate treated by dielectric barrier discharge plasma", *Surface & Coatings Technology*, Vol. 193, pp. 101-106, 2005.
- [20] J.C. Dubois, *Propriétés diélectriques des polymères*, Techniques de l'Ingénieur, 1998.
- [21] A.VonHippel, "Electrical breakdown of solid and liquid insulators", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol. 8, pp. 815-832, 1937.
- [22] L.A. Dissado, J.C. Fothergill, "Electrical degradation and breakdown in polymers", London: Peter Peregrinus Ltd., 1992.
- [23] L.A. Dissado, G. Mazzanti, G.C. Montanari, "The incorporation of space charge degradation in the life model for electrical insulating materials", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 2, pp. 1147-1158, 1995.
- [24] C. Laurent, C. Mayoux, "Analysis of the propagation of electrical treeing using optical and electrical methods", *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, Vol. EI-15, pp. 33-42, 1980.
- [25] T. Hammi, "Etude de méthodes de mesures et réalisation d'un banc de test pour l'évaluation des propriétés électrostatiques des Textiles", Thèse de Doctorat, Université de Sciences et Technologies de Lille, 2005.
- [26] J.A. Giacometti, O.N. Oliveira Jr, "Corona charging of polymer", *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, Vol. 27, N°. 5, pp. 924-943, 1992.
- [27] M. Goldam, A. Goldam, R.S. Sigmond, "The corona discharge, its properties and specific uses", *Pure and Appl. Chem.*, Vol. 57, N°. 9, pp. 1353-1362, 1985.
- [28] S. Cerevisiae, B. Opreacu, D. Giosanu, I. Neagu, "The experimental study of corona discharge on yeast", *Rom. Journ. Phys.*, Vol. 51, N°. 1-2, pp. 131-140, Bucharest, 2006.
- [29] A. Bendaoud, A. Tilmatine, K. Medles, M. Blajan, M. Rahli, L. Dascalescu, "Caractérisation expérimentale des électrodes couronne de type «dual»", *Journal of Electrostatics*, Vol. 64, pp.431-436, 2006.
- [30] C. Gary, Effet couronne sur les réseaux électriques aériens, *Technique de l'ingénieur*, D4440, pp. 1-25, Juin 1993.
- [31] C. Gary, "L'effet de couronne en tension alternative", *Collection de la Direction des Etudes et Recherches d'Electricité de France Paris*, Edition Eyrolles, 1976.
- [32] 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.
- [33] Z. LI, "Décharge couronne dans l'hélium liquide et gaz dense sous champ électrique intense : pré-claquage, transport de charge, spectroscopie d'émission", Thèse de Doctorat, Université Joseph-Fourier-Grenoble I, 2008.
- [34] B. Khaddour, "Modélisation du champ électrique modifié par la charge d'espace injectée", Thèse de Doctorat de l'INPG (Institut National Polytechnique de Grenoble), 2006.

- [35] M.M. Shahin, "Mass-spectrometric studies of corona discharges in air of atmospheric pressures", *J. Chem. Phys.*, Vol. 43, pp. 2600-2605, 1966.
- [36] M.M. Shahin, "Nature of charge carriers in negative corona", *Appl. Opt. Suppl. Electr. Photogr.*, Vol. 82, pp. 106-110, 1969.
- [37] S. Alam, "Effect of surface charging on dc flashover characteristics of polymeric insulators", Thèse de Doctorat, Université de Gothenburg, Suède, 2011.
- [38] 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.
- [39] B. Tabti, "Contributions à la caractérisation des filtres à électret par la mesure du déclin de potentiel de surface", Thèse de Doctorat, Université de Poitiers, 2011.
- [40] J.A. Giacometti, S. Fedosov, M.M. Costa, "Corona charging of polymers: Recent advances on constant current charging", *Journal of Physics*, Vol. 29, N°. 2, pp. 269-279, 1999.
- [41] P. Llovera, "Etude des mécanismes d'injection de charges 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, UFR Scientifique d'Orsay et Université Polytechnique de Valencia, 2002.
- [42] P. Molinié, "Etude de la neutralisation de la charge électrique déposée par effet couronne à la surface d'un isolant. Application au suivi des premiers stades de vieillissement d'un isolateur époxyde", Thèse de Doctorat, Université Paris VI, 1992.
- [43] R. Coelho, B. Aladenize, "les diélectriques; propriétés diélectriques des matériaux isolant", Editions Hermès, ISBN 2-86601-383-2, pp. 230, 1993.
- [44] P. Molinie, P. Llovera, "Surface potential measurements : Implementation and interpretation ", in *Proc. Dielectr. Mater., Meas. Appl. (IEE Conf.Publ. N°. 473)*, pp. 253-258, 2000.
- [45] R. Coelho, B. Aladenize, N. Cornet, "On the transient potential in insulators", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation* Vol. 8, N°. 5, pp. 760-770, 2001.
- [46] A. Crisci, "Etude du déclin de potentiel d'une surface chargée par une décharge électrique de type couronne", Rapport pour maîtrise de physique LEMD, 1996.
- [47] P. Molinie, "Measuring and modeling transient insulator response to charging : The contribution of surface potential studies", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation* Vol. 12, N°. 5, pp. 939-950, 2005.
- [48] A.G. Kravtsov, H. Brunig, S.F. Zhandarov, "Analysis of the polarization state of melt-spun polypropylene fibers", *Journal of Materials Processing Technology*, Vol. 124, N°. 1-2, pp.160-165, 2002.
- [49] P. Molinie, M. Goldman, J. Gatellet, "Surface potential decay on corona charged epoxy samples due to polarization processes", *J. Phys. D: App.Phys.*, Vol. 28, pp. 1601-1610, 1995.
- [50] P. Molinie, "Potential decay interpretation and insulating film : Neecessity of combining charge injection and slow volume polarization processus", *Seven. Int. Conf. of Diele. Mate. Meas*, 23-26 Sept 1996.
- [51] R. Coelho, L. Levy, D. Serrail, "On the naturel decay of corona charged Teflon sheet I", *IEEE Transactions on Industry Applications*, pp. 1033-1037, 1984.

- [52] S. Kumara, Y. Serdyuk., S. Gubanski, "Surface charge decay on polymeric materials under different neutralization modes in air", *IEEE Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 18, N°. 5, pp. 1779-1788, 2011.
- [53] P. Molinié, "Charge injection in corona-charged polymeric films: potential decay and current measurements", *Journal of Electrostatics*, Vol. 45, N°. 4, pp. 265-273, 1999.
- [54] M. Ieda, G. Sawa, U. Shinohara, "A decay process of surface electric charges across polyethylene film", *J. Appl. Phys.* Vol. 6, pp. 793-794, 1967.
- [55] S. Fakhfakh, "Etude des phénomènes de charge des matériaux diélectriques soumis à une irradiation électronique permanente", Thèse de Doctorat, Université de Reims, 2004.
- [56] R. Hoffmann, C. Janiak, C. Kollmar, "A chemical approach to the orbitals of organic polymers", *Macromolecules Journal*, Vol. 24, pp. 3725-3746, 1991.
- [57] F. Mortreuil, "Etude des mécanismes d'injection et de stockage de charges électrique dans un film mince diélectrique par microscopie à sonde de Kelvin (KPFM)", Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III, 2015.
- [58] G. Blaise, "Charge localization and transport in disordered dielectric materials", *Journal of Electrostatics*, Vol. 50, pp. 69-89, 2001.
- [59] R.H. Fowler, L. Nordheim, "Electron emission in intense electric fields", *Proceedings of the Royal Society of London*, Vol. 119, N°. 781, 1928.
- [60] R.H. Good, E.W. Müller, "Field Emission", in *Electron-Emission Gas Discharges I / Elektronen-Emission Gasentladungen I*, Vol. 21, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, pp. 176-231, 1956.
- [61] L. Millière, "Maîtrise des interfaces pour le contrôle de l'injection de charges dans les polymères isolants électrique", Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III, 2015.
- [62] L. Herous, "Etude des mécanismes d'écoulement de charge dans les matériaux isolants au moyen de mesures électrostatiques de déclin", Thèse de Doctorat, Université d'Annaba, 2006.
- [63] P.N. Murgatroyd, "Theory of space-charge-limited current enhanced by Frenkel effect", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol. 3, N°. 2, pp.151, 1970.
- [64] J. Frenkel, "On pre-breakdown phenomena in insulators and electronic semi-conductors", *Phys. Rev.*, Vol. 54, pp. 647-648, 1938.
- [65] K.C. Kao, "Dielectric phenomena in solids", Elsevier Academic Press, 2004.
- [66] R. Gilbert, J.P. Crine, B. Noirhomme, S. Péliou, "Measurement of organic and inorganic ions in cable insulation and shields", 1989 Annual Report Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP), Leesburg, Virginia, USA, pp. 235-240, 1989.
- [67] F. Aida, S. Wang, M. Fujita, G. Tanimoto, Y. Fujiwara, "Study of the mechanism of space charge formation in polyethylene", *Journal of Electrostatics*, Vol. 42, pp. 3-15, 1997.

Chapitre II

Caractérisation électrique des films de polyimide

Chapitre II : Caractérisation électrique des films de polyimide

II.1. Introduction

La technique du déclin de potentiel de surface est une méthode d'investigation des propriétés électriques des matériaux isolants. Son intérêt réside essentiellement dans sa simplicité à mettre en œuvre, et dans la possibilité de bien caractériser les propriétés de surface sans être en contact physique avec le matériau étudié. Le principe de mesure du déclin de potentiel de surface consiste à suivre en fonction du temps l'évolution du potentiel de surface d'un échantillon préalablement chargé par décharge couronne.

Dans ce chapitre, nous allons présenter la démarche expérimentale entreprise et le matériel que nous avons utilisé dans notre travail. Ensuite, nous allons étudier l'influence de la température du substrat sur les propriétés électriques de films minces de polyimide (PI) par la mesure du déclin de potentiel de surface. Au cours des expériences, les échantillons ont été soumis à une décharge couronne négative générée dans la configuration pointe-grille-surface à différentes valeurs de la température variant de 27 à 80 °C. Les mesures du profil de potentiel sur la surface des films de PI et du retour de potentiel apparaissant après la neutralisation de charges ont été également effectuées. De plus, les évolutions du déclin de potentiel de surface sont corrélées aux variations du courant de charge. Sur la base de la transformation de la mesure du déclin de potentiel de surface [1, 2], la nature des pièges de charges et leur évolution de la densité avec la température du substrat ont été caractérisées.

II.2. Démarche expérimentale

Le dispositif expérimental permettant la caractérisation des films de PI chargés par décharge couronne en utilisant principalement la mesure sans contact du potentiel de surface a été réalisé au laboratoire de Microsystèmes et Instrumentation (LMI) de l'Université Frères Mentouri Constantine 1. Il s'agit d'une configuration très courante dans l'étude de l'évolution du potentiel de surface (déclin du potentiel de surface, cartographie et/ou profil du potentiel de surface, retour du potentiel de surface) où l'une des surfaces de PI est chargée par décharge couronne et l'autre surface reste libre.

L'installation expérimentale, sur laquelle l'ensemble des mesures électrostatiques sont réalisées, est constituée de deux postes :

- poste de chargement par décharge couronne en configuration d'électrodes dite triodes ;

- poste de mesure du potentiel de surface qui se fait sans aucun contact avec le matériau.

Les deux postes sont installés dans une enceinte fermée pour contrôler la température et l'humidité relative. La [figure II.1](#) illustre l'ensemble de ces postes ainsi que les instruments utilisés.

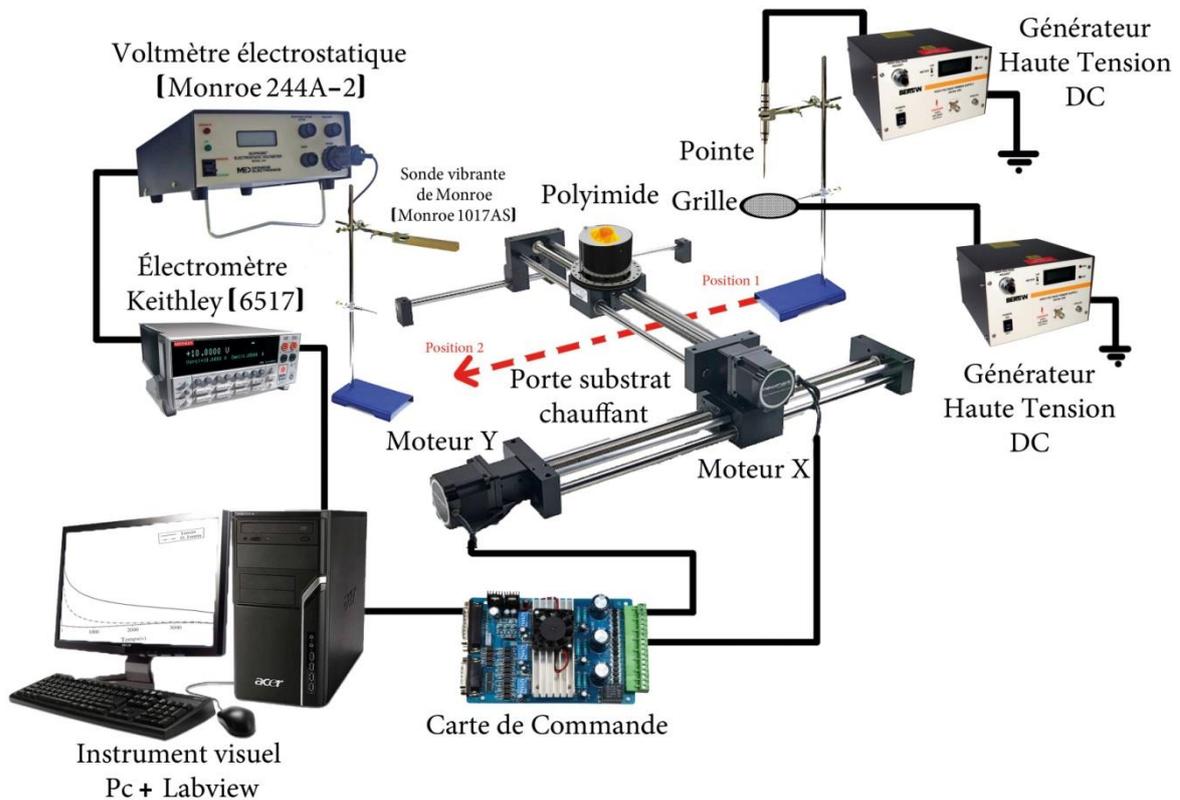


Figure II.1 : Dispositif de chargement par décharge couronne et mesure du potentiel de surface.

Les films de PI sont en contact avec une électrode plane en aluminium reliée à la terre. Ils sont portés par un porte substrat placé sur un chariot. A l'aide d'une commande électromécanique, on positionne l'échantillon alternativement sous l'électrode couronne puis sous la sonde. Dans le poste de chargement, la face libre de l'échantillon est soumise à un chargement électrique généré par une configuration courante dite "triode" et qu'on appelle configuration pointe-grille-surface. Le temps de transfert, entre la fin de la décharge couronne et le début de la mesure, est de 5 secondes. La mesure du potentiel en 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 (surfacique et/ou volumique) des charges déposées. L'utilisation d'un électromètre de type Keithley, dans le poste de mesure, a permis l'interfaçage du voltmètre électrostatique avec l'ordinateur pour réaliser l'acquisition des

données à l'aide d'un instrument virtuel développé sous l'environnement LabVIEW. Le principe de mesure du potentiel de surface consiste à suivre la disparition de charges déposées sur un matériau dont la face inférieure est reliée à la masse. Cette observation peut être temporelle ou spatiale. Dans le cas de l'évolution temporelle, le porte substrat est maintenue fixe en un point (centre du chargement) et le relevé du potentiel se fait par une sonde électrique, reliée à un voltmètre électrique, placée au-dessus de l'échantillon. L'évolution spatiale consiste à relever la valeur du potentiel de surface en chaque point de coordonnées (X, Y) de l'échantillon, c'est à dire faire une cartographie du potentiel de surface. Un banc de balayage automatique d'une surface avec porte substrat chauffant a été réalisé. Ce banc permet la mesure des cartographies ou des profils du potentiel de surface, par le déplacement du porte échantillon suivant les deux directions X et Y du plan horizontal grâce à deux moteurs pas à pas commandés par un PC. La commande automatique du système, est réalisée par un logiciel (sous LabVIEW) relié à une carte électronique permettant le contrôle des moteurs X et Y. Un système de régulation de la température permet de contrôler la température de l'échantillon durant le chargement et la mesure du potentiel de surface. La température des échantillons est réglable entre 27 et 80 °C dans notre cas. Cela a permis de réaliser des déclins isothermes à différentes températures. Le travail développé dans ce cadre, comporte deux étapes importantes :

- la mise au point d'un système de régulation et de contrôle de température pour le porte substrat ;
- le développement d'un logiciel pour la gestion des cartes de commande.

II.2.1. Poste de chargement par décharge couronne

La décharge couronne a été utilisée comme outil de chargement des matériaux isolants. Son intérêt réside essentiellement dans sa simplicité à mettre en œuvre et dans la possibilité d'effectuer un chargement dans l'air et de déposer des charges aussi bien positives que négatives selon la polarité du système de décharge au niveau de la surface de l'isolant. La décharge couronne est généralement obtenue au voisinage d'une électrode à faible rayon de courbure. La décharge couronne est largement exploitée pour tester des matériaux diélectriques et étudier leurs réponses à une charge d'espace en utilisant différentes configurations d'électrodes à tiges cylindriques ou à cylindres coaxiaux, fil-cylindre, pointe-plan et file-plan [3, 4].

Nous avons représenté sur la [figure II.2](#), le poste de chargement utilisé pour charger les films de PI par décharge couronne en utilisant la géométrie pointe-plan avec une grille répartitrice intercalée entre la pointe et la surface des échantillons. Le processus de chargement a été effectué en exposant la surface des films de PI à une décharge couronne négative à partir d'une pointe métallique de Tungstène de rayon 50 μm alimentée avec une tension continue variable jusqu'à 10 kV (courant variable de 200 μA à 2 mA) et une grille métallique reliée à une source de tension continue variable jusqu'à 3 kV (courant variable de 0 à 6 mA). La distance entre la grille et l'échantillon d est choisie égale à 5 mm, alors que la distance entre la pointe et la grille D est choisie égale à 10 mm. Nous avons limité la durée de chargement à 15 s pour éviter toute modification de surface.

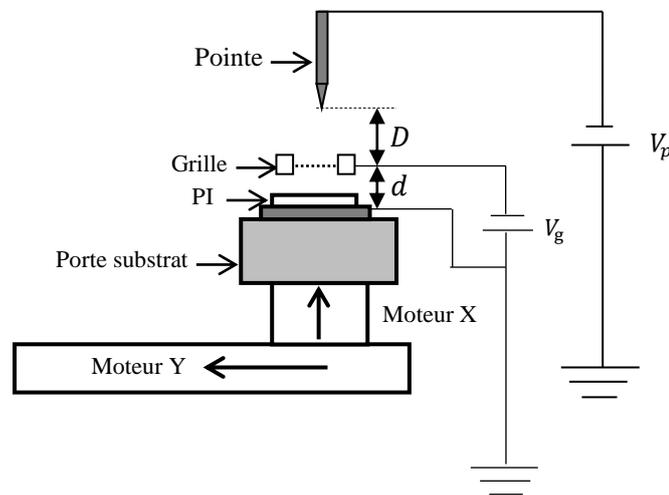


Figure II.2 : Dispositif de chargement par décharge couronne.

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. Le champ électrique établi entre la pointe et la grille doit être suffisamment élevé ($\geq 4\text{kV}$) pour provoquer une ionisation du milieu isolant entre 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. 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 s'annule, et les ions ne traversent plus la grille (le potentiel de surface est limité par le potentiel de la grille). Donc, l'insertion

d'une grille conductrice portée à un potentiel plus faible et de même polarité que le potentiel appliqué à l'électrode active (la pointe) permettra le contrôle du niveau du potentiel de surface et l'obtention d'un dépôt de charges uniforme.

II.2.2. Poste de mesure du potentiel de surface

Une fois que l'échantillon de PI est chargé par décharge couronne, il est transféré en utilisant un système de déplacement vers le deuxième poste dédié à la mesure du potentiel de surface. L'échantillon est immédiatement positionné sous la sonde électrostatique à condensateur vibrant de type Monroe (Monroe 1017 AS) (figure II.3), connectée à un voltmètre électrostatique (modèle Monroe 244A-2) qui mesure le potentiel de surface dans la plage ± 3 kV. Ce poste permet la mesure du potentiel à la surface du film de PI et le suivi de son évolution temporelle et spatiale pour caractériser les déclin de potentiel de surface et les profils de potentiel. La sonde électrostatique, modèle 1017 AS, est située à une distance de 2mm au-dessus de la surface libre de l'échantillon. L'acquisition et l'enregistrement des données expérimentales sur ordinateur sont gérés par un instrument virtuel développé sous l'environnement LabVIEW. Un électromètre numérique Keithley modèle 6517, branché au voltmètre électrostatique, communique avec l'instrument virtuel implanté sur ordinateur à l'aide d'un Bus GPIB de la norme IEEE 488. La figure II.4 présente le dispositif de mesure du potentiel de surface.

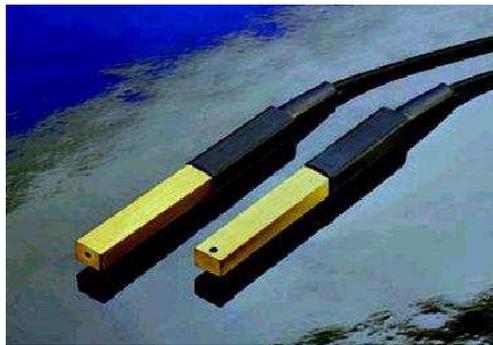


Figure II.3 : Sonde vibrante (Monroe 1017 AS).

La figure II.5 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 du déclin de potentiel de surface.

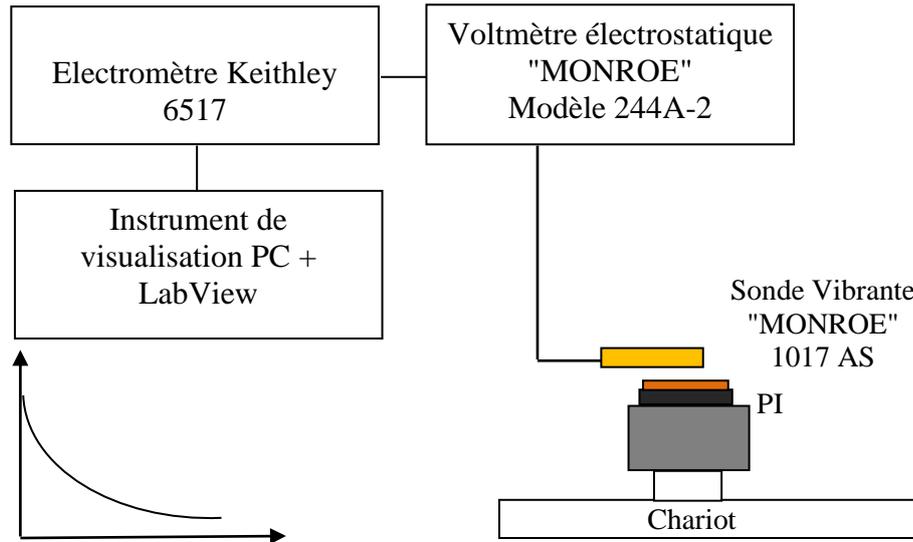


Figure II.4 : Dispositif de mesure du potentiel de surface.

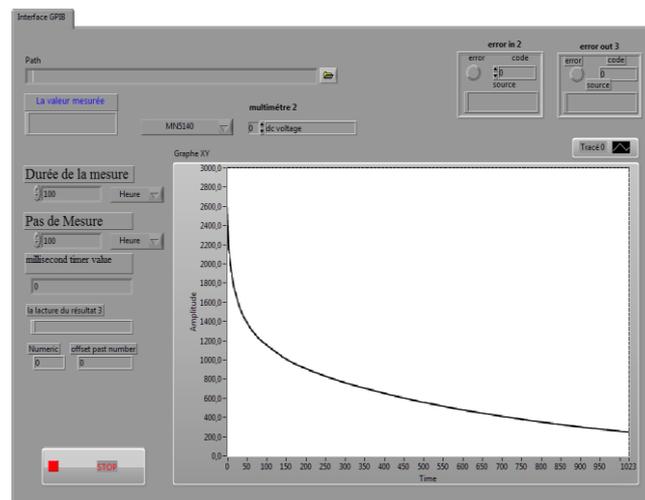


Figure II.5 : Courbe du déclin de potentiel de surface visualisée sur le panneau frontal de l'instrument virtuel.

Un grand avantage dans l'utilisation de la sonde électrostatique est de mesurer le potentiel de surface sans contact avec la surface du film chargé et donc sans aucune modification physique de cette surface. Son principe de fonctionnement, le même que celui d'un suiveur de tension équipé avec un vibreur de capacité [5], étant basé sur l'annulation du champ électrique. 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 [5, 6]. L'avantage de ce système est de permettre une mesure absolue du potentiel de surface. L'électrode de mesure voit la surface à travers un trou de faible dimension à la base de la sonde. Le trou est successivement ouvert et fermé. Les mesures du potentiel de surface débutent 5 secondes après la fin du processus de chargement et le déclin du potentiel de surface est enregistré pendant 60 minutes.

II.2.3. Système de régulation de la température du substrat

Le régulateur de température, comme son nom l'indique, est un instrument pour contrôler la température. Il est nécessaire dans toutes les applications nécessitant une température stable. Dans notre travail, nous avons réalisé un système de régulation de température pour le porte substrat d'un banc de mesure du potentiel de surface afin d'étudier l'influence de la température du substrat sur les propriétés électriques d'un film de PI préalablement chargé par décharge couronne à travers la mesure et l'étude de l'évolution de la décroissance du potentiel de surface. La réalisation du système de régulation de température a été faite en deux étapes :

- la réalisation d'un porte substrat chauffant ;
- la réalisation du système de régulation de température qui permet le contrôle de la température du porte substrat.

La [figure II.6](#) représente le porte substrat chauffant réalisé dans notre travail. Il est constitué d'un empilement de deux couches. La couche inférieure est de la laine de verre couverte avec du plâtre afin d'assurer une bonne isolation thermique. La couche supérieure est du ciment. Ce porte substrat comporte deux résistances de puissance à travers lesquelles la chaleur s'écoule sur le plateau circulaire d'aluminium qui se trouve sur le support métallique du porte substrat chauffant. Ce dernier peut atteindre une température de 400 °C (valeur de la température maximale supportée par le PI).

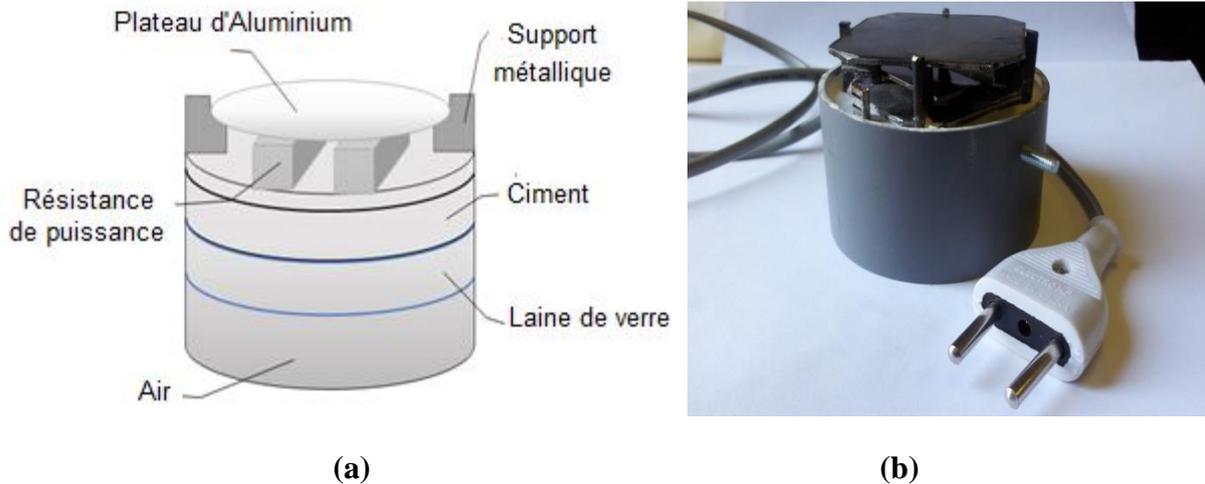


Figure II.6 : Porte substrat chauffant réalisé, a) schéma conventionnel, b) photo réelle.

Le dispositif de contrôle de température du porte substrat réalisé (figure II.7) permet de mesurer et de fixer la température du substrat à la valeur de la température désirée (la valeur de consigne) grâce à l'utilisation d'un régulateur de température de type PYZ4 relié à un thermocouple de type K. Un relais excité par une alimentation stabilisée est utilisé pour la protection du régulateur. Ce système de régulation de la température de l'échantillon est utilisé lors du chargement par décharge couronne et la mesure du potentiel de surface (déclin de potentiel de surface, cartographie ou profil du potentiel de surface et retour du potentiel de surface).

La source de tension détermine la température des résistances à un niveau connu, ce qui rend la température réelle stable et précise. La figure II.8 montre la réponse du régulateur pour différentes valeurs de la tension d'alimentation et une température de consigne de 200 °C.

Nous remarquons que lorsque les résistances de puissance sont alimentées avec une tension de 30 V, la température augmente rapidement ce qui induit une augmentation de l'amplitude des oscillations autour de la température de consigne et une diminution du temps de réponse du régulateur. Par contre, si les résistances sont alimentées avec une tension de 20 V, la température augmente lentement et se stabilise sans dépasser la température de consigne. Nous pouvons conclure que le choix de la tension d'alimentation joue un rôle important dans la régulation de la température du porte substrat. La réponse du régulateur pour une tension d'alimentation élevée est plus linéaire que celle pour une tension d'alimentation inférieure, mais elle n'est pas précise ce qui conduit à une faible stabilité.

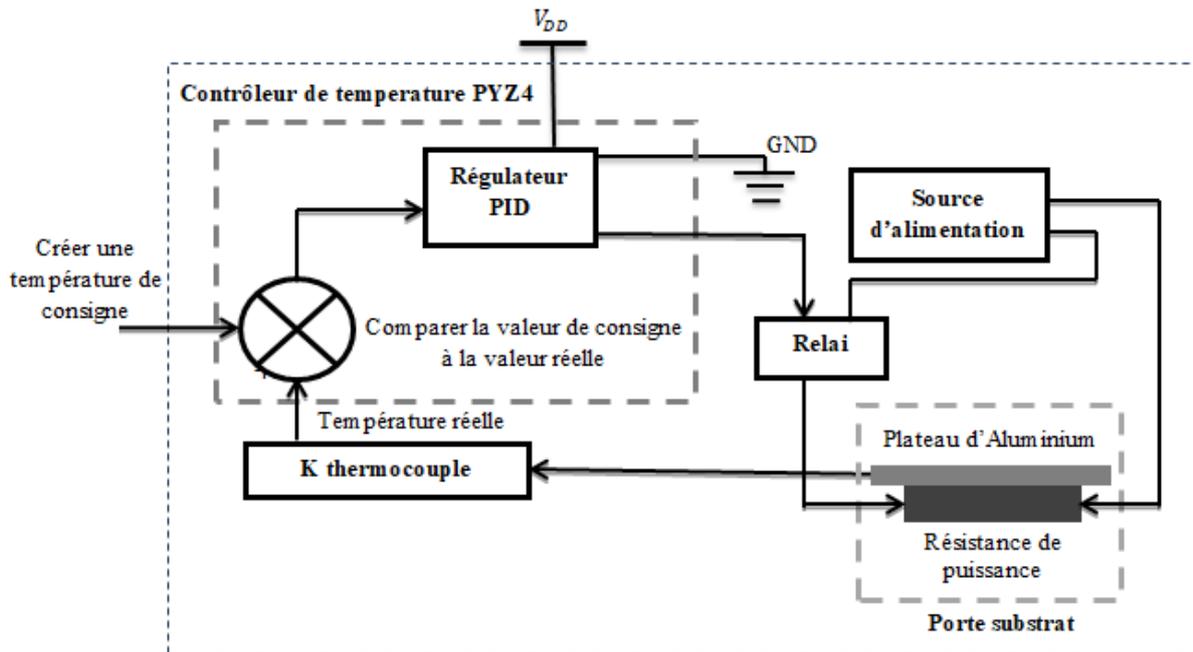


Figure II.7 : Schéma du système de contrôle et de régulation de la température.

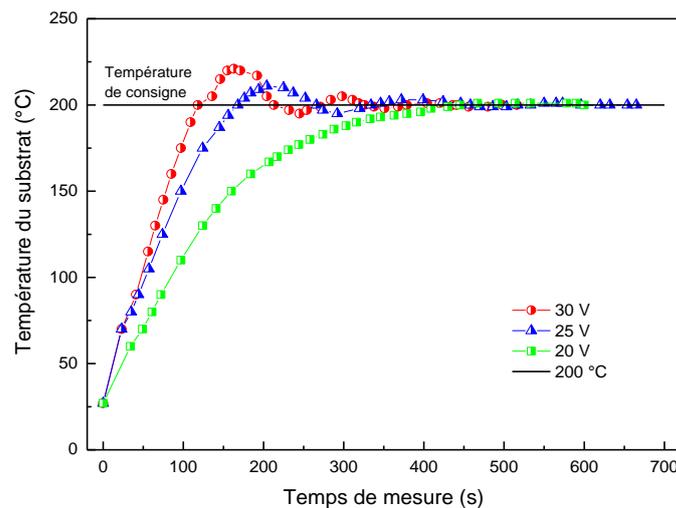
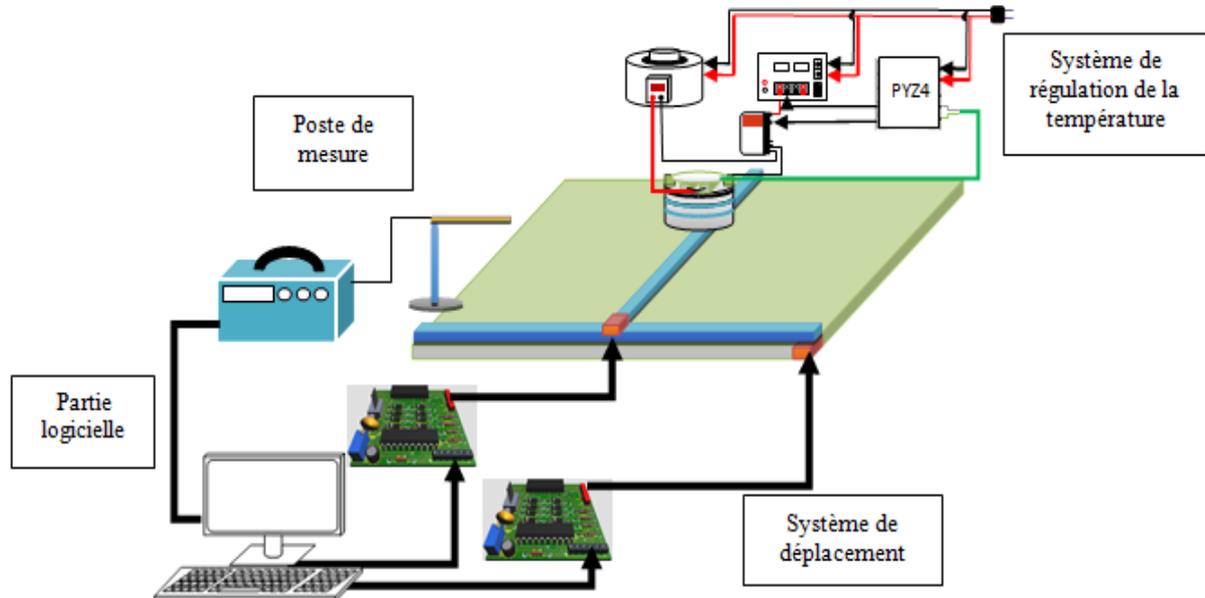


Figure II.8 : Variation de la température du substrat en fonction du temps de mesure pour différentes tensions d'alimentation.

II.2.4. Banc de balayage automatique

Dans le cadre de notre travail, nous avons rajouté au banc de mesure du potentiel de surface un système électronique qui permet de réaliser des cartographies ou des profils du potentiel de surface par le déplacement du plateau porte échantillon suivant les deux directions X et Y du plan horizontal grâce à un chariot à deux moteurs pas à pas commandés par un PC via le port parallèle (Centronics). Ce système électronique représenté sur la [figure II.9](#) est constitué de deux parties essentielles :

- système de déplacement ;
- partie logicielle.



(a)



(b)

Figure II.9 : Banc de balayage automatique réalisé, (a) schéma du dispositif, (b) photographie du dispositif.

Un chariot de cartographie du potentiel en deux dimensions, permet le déplacement de l'échantillon avec un pas dans les deux directions de l'ordre de 0.1 mm , nettement inférieur à la résolution de la sonde (la résolution latérale de la sonde est de l'ordre de 0.5 mm lorsqu'elle est très proche de la surface). L'ensemble des commandes de ce chariot, moteurs pas-à-pas, électronique et logiciels de commande, a été développé au laboratoire LMI. Les moteurs

utilisés dans notre système de déplacement sont des moteurs bipolaires 400 pas à 4 fils de résistance interne 40Ω fonctionnant en mode biphase, à courant continu. Ils entraînent les deux axes du chariot, qui porte l'échantillon, à une vitesse réglable. Ces moteurs sont pilotés par une série de séquences venant d'une carte de commande de type TB6560 driver. Le nombre de séquences ainsi que la vitesse et la trajectoire de ces moteurs sont gérés à l'aide d'un programme développé sous l'environnement LabVIEW. Les logiciels de saisie de données les plus courants n'incluent pas de pilotes de commande d'appareils ou de dispositifs en option qui soient versatiles. Ils doivent alors mettre au point l'interface de commande. Nous avons choisi pour cela, le logiciel LabVIEW pour commander les moteurs pas à pas et le port parallèle pour l'interface entre le PC et les cartes de commande.

Pour le développement de notre programme, nous avons divisé notre travail en quatre étapes où chaque étape est traduite à un VI (Virtual Instrument). Les VIs ainsi réalisés seront enregistrés puis réutilisés lors de l'assemblage final. La [figure II.10](#) résume les principales étapes utilisées dans notre programme :

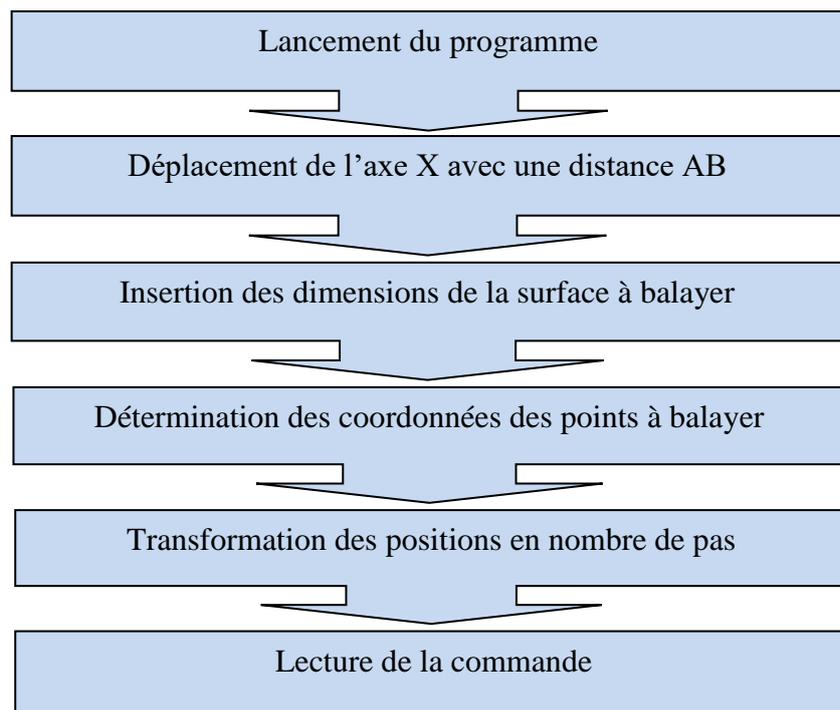


Figure II.10 : Etapes de développement d'un programme sous l'environnement LabVIEW.

La face avant du logiciel de commande et d'acquisition LabVIEW est présentée sur la [figure II.11](#) dans sa dernière version. Il faut signaler que la cartographie à une durée de l'ordre de 2.5 min pour une surface de 25 mm^2 et donc bien adaptée à des matériaux qui ont un déclin rapide. La face avant de notre VI est composée de deux parties :

- Partie configuration (figure II.11.a) : elle permet de déterminer toutes les informations nécessaires sur le mouvement des moteurs, en entrant les dimensions de la surface à balayer et la durée d'un pas du moteur.
- Partie lancement du programme (figure II.11.b) : elle permet de visualiser le mouvement des moteurs générés, après le lancement du programme en appuyant sur le bouton de démarrage.

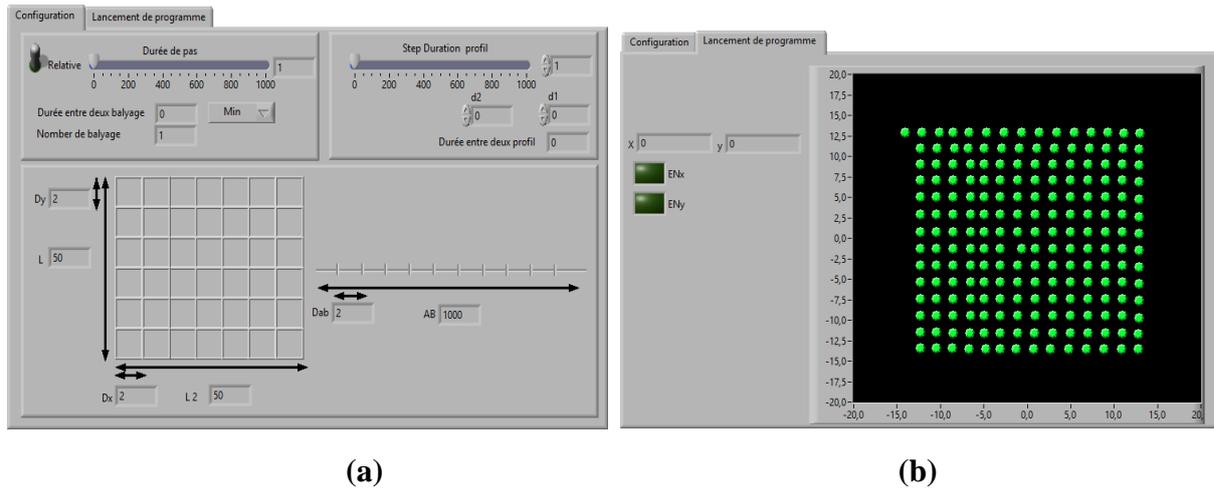


Figure II.11 : Panneau frontal du logiciel de commande, (a) partie configuration, (b) partie lancement du programme.

Le Block-Diagram de ce VI (figure II.12), dans sa version finale, est constitué de trois parties :

1. déplacement de l'axe X avec une distance AB : cette partie du VI, permet de déplacer l'axe X du point A (poste de chargement) vers le point B (poste de mesure) ;
2. profil : cette partie du VI, permet de déplacer de manière successive l'axe X du point A au point B de l'échantillon passant par la zone centrale de chargement ;
3. balayage : pour faire déplacer les deux moteurs des axes X et Y selon une trajectoire prédéfinie.

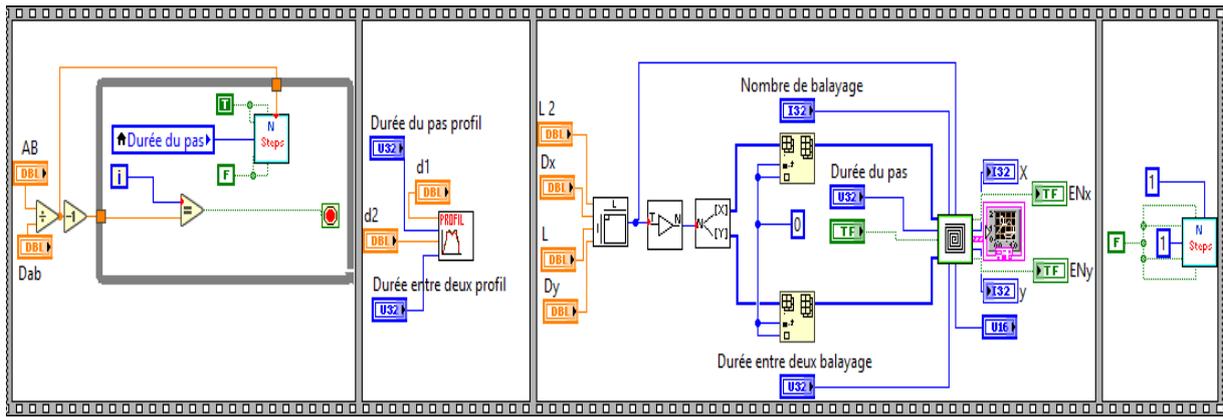


Figure II.12 : Block Diagram.

II.3. Mesure de l'évolution du potentiel de surface

Nous avons mené cette étude sur des films de polyimide (PI) de type Kapton[®] HN de Goodfellow d'épaisseur 50 μm . Les films ont été découpés sous forme de carré de dimension 25 x 25 mm^2 pour la mesure du déclin et du retour de potentiel de surface et 50 x 50 mm^2 pour la mesure de la cartographie du potentiel de surface (profil du potentiel de surface). Les échantillons utilisés n'ont subi aucun traitement ni conditionnement préalable. Pour chaque expérience nous avons utilisé un échantillon neuf afin d'éviter qu'une mesure influe sur l'autre. La mesure simultanée de la température et du taux d'humidité relative se fait grâce à un hygromètre de type TESTO 610. La mesure a été répétée au moins trois fois pour chaque échantillon afin de vérifier la reproductibilité des résultats.

II.3.1. Mesure du déclin de potentiel de surface

La variation en fonction du temps de mesure du potentiel de surface (déclin du potentiel de surface) enregistrée sur un film de PI à une tension de grille de - 1600 V ($V_0 = 1570$ V), un taux d'humidité faible $\text{RH} = 30\%$, une température ambiante de l'ordre de 27 $^{\circ}\text{C}$ et une température de substrat $T = 27$ $^{\circ}\text{C}$, est rapportée sur la [figure II.13](#).

Nous constatons que l'allure de la courbe présente une décroissance du potentiel de surface avec la variation du temps de mesure. Ce potentiel présente deux zones de variations distinctes : pour les temps courts, un potentiel transitoire rapide est observé suivi d'une décroissance plus lente avec l'augmentation du temps de mesure.

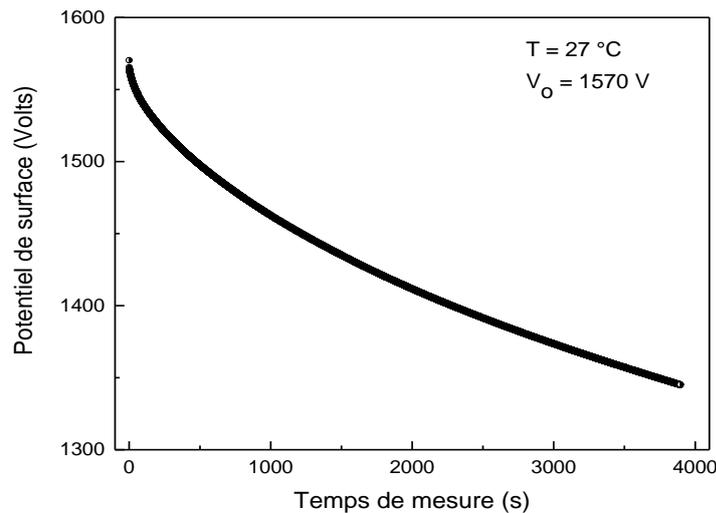


Figure II.13 : Déclin du potentiel de surface sur un film de PI, $V_g = 1600\text{ V}$.

Au début du déclin de potentiel de surface et selon Min et *al* [7, 8], le déclin du potentiel de surface dans les films de PI s'explique par l'injection des charges déposées dans le volume du film. Une partie de ces charges déposées sera piégée dans les états de surface (pièges profonds), et certaines d'entre elles seront entraînées vers l'électrode de masse à travers la bande de conduction ou à travers les pièges peu profonds (par sauts) conduisant à une décroissance rapide du potentiel de surface. Lors du remplissage des pièges, le potentiel de surface et le champ électrique diminuent progressivement, ce qui explique l'évolution lente du déclin de potentiel de surface avec le temps de mesure.

Il est bien établi que, dans le cas d'un film de polymère, les phénomènes de piégeage et dépiégeage et la conduction des charges jouent un rôle essentiel dans la dynamique du déclin de potentiel de surface et ne peuvent pas être négligés dans l'interprétation du celui-ci [9-11].

a. Influence du niveau de chargement

Après avoir exposé le film de PI à une décharge couronne négative pendant 15 secondes, des charges électriques se sont déposées sur la surface du film en induisant un potentiel de surface initial. La [figure II.14](#) représente la variation du déclin de potentiel de surface $V_s(t)$ obtenue sur des films de PI chargés par décharge couronne avec des valeurs de tensions de grille de polarité négative variant de 400 à 2400 Volts (différentes valeurs de potentiel de surface initial variant de 409 à 2350 V) et une température du substrat constante d'environ 27 °C.

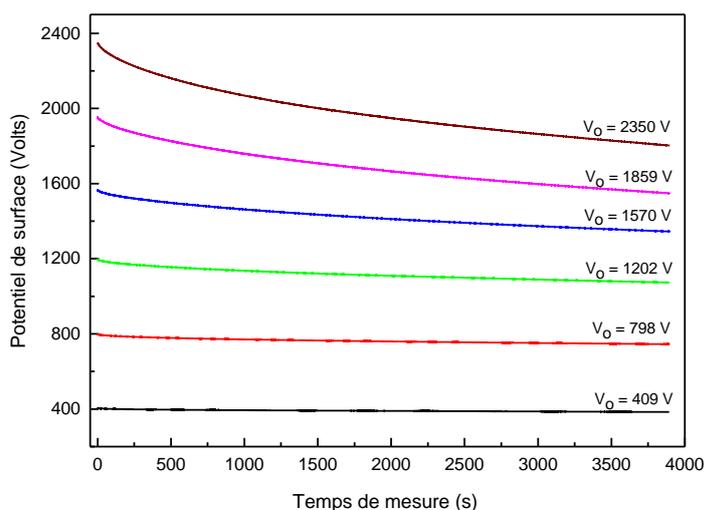


Figure II.14 : Déclin du potentiel de surface enregistré sur des films de PI pour différents niveaux de chargement V_0 ($T = 27$ °C).

Nous remarquons que plus la valeur de la tension de grille augmente, plus la valeur du potentiel de surface initial ainsi que le taux du déclin de potentiel de surface augmente (figure II.15). Pour un potentiel initial de 2350 V, le potentiel de surface perd plus de 23 % de sa valeur initiale (au bout d'une heure de mesure du déclin de potentiel). Ces résultats montrent bien que le niveau de chargement initial influe énormément sur le déclin du potentiel de surface dans les films de PI.

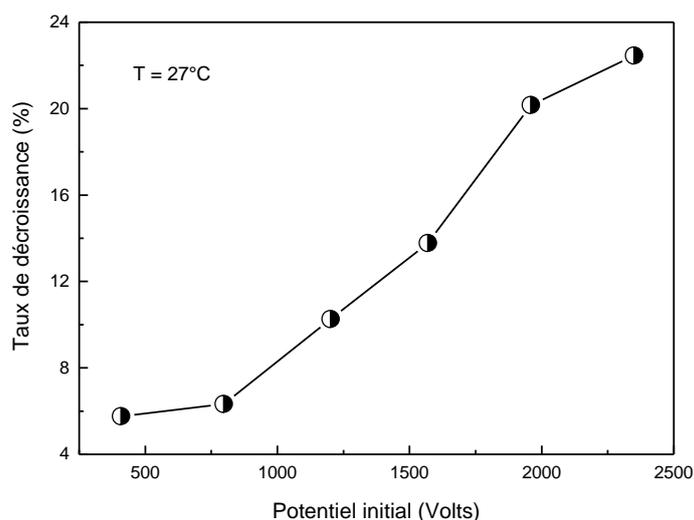


Figure II.15 : Taux du déclin de potentiel de surface en fonction du potentiel initial V_0 .

Pour les faibles niveaux de chargement (409 V, 1202 V), le déclin observé est très lent. Cela suggère que les charges déposées sur la surface du PI restent dans leurs majorités

prisonnières sur sa surface. Dans ce cas, les charges déposées n'ont pas assez d'énergie pour être injectées dans le volume, par conséquent ces charges seront piégées sur la surface de l'isolant et demeurent piégées pour de longues durées, ce qui fait que le potentiel de surface demeure relativement stable. Ce comportement est dû au fait que les états de surface ont des distributions d'énergie plus profondes que les états de volume, donc ils piègent durablement les charges déposées [12]. Par contre, pour les forts niveaux de chargement (1570 V, 2350 V), la décroissance du potentiel de surface est clairement observée. Cette forte décroissance initiale pourrait être attribuée à l'augmentation de la fraction de charges injectées dans le volume avec l'augmentation du potentiel initial. Une fois ces charges injectées, et comme les états de volume sont considérés peu profonds [8, 13, 14], certaines d'entre elles seront entraînées vers l'électrode de masse. Ce comportement sera plus prononcé si la quantité initiale de charges déposées augmente. Donc le champ électrique créé par la charge déposée, qui est d'autant plus grand que le potentiel de surface initial est élevé, joue un rôle important dans la détermination du processus du déclin de potentiel de surface.

b. Influence de la température du substrat

Afin de mieux mettre en évidence la dynamique du déclin de potentiel dans un film de PI à haute température, nous avons enregistré les mesures du déclin de potentiel de surface pour différentes valeurs de la température du substrat variant de 27 à 80 °C (figure II.16) et un potentiel de surface initial d'environ $V_o = -2330$ V.

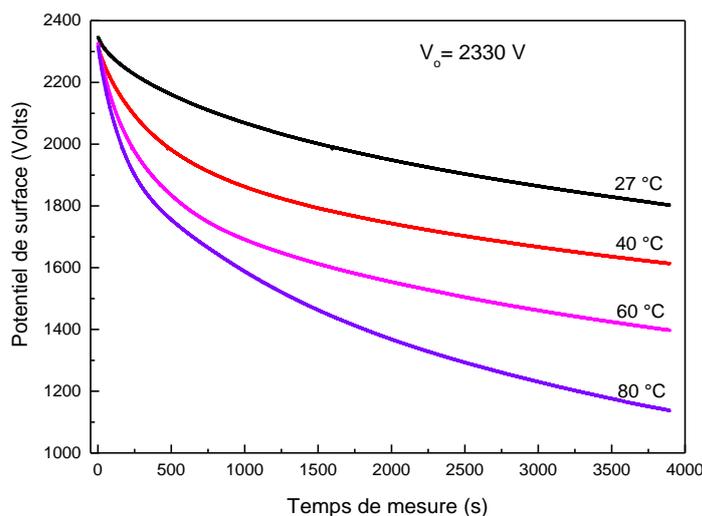


Figure II.16 : Déclin du potentiel de surface enregistré sur des films de PI pour différentes valeurs de la température du substrat ($V_o \approx -2330$ V).

Nous remarquons que le déclin du potentiel de surface s'accroît et devient de plus en plus important au fur et à mesure que la température du substrat augmente. Les valeurs du taux de déclin (figure II.17) pour un fort et faible niveaux de chargement, à une température du substrat plus élevée diffèrent considérablement de celles enregistrées pour une faible valeur de la température du substrat. Par exemple pour un potentiel initial de 2330 V, l'échantillon de PI chargé à 27 °C présente un taux du déclin d'environ 23 % après 1 heure, tandis que l'échantillon chargé à 80 °C présente un taux de décroissance d'environ 50 %. Ces résultats indiquent que l'influence de la température du substrat sur la cinétique du déclin de potentiel de surface est très importante. Ce comportement peut être lié au changement des phénomènes physiques qui gouvernent le déclin du potentiel de surface. Bien que le potentiel de surface mesuré était autant élevé et déclinait plus vite à l'augmentation de la température du substrat, les courbes ne présentent aucun croisement. Ces résultats sont en désaccord avec les résultats obtenus sur des films de polyéthylène téréphtalate (PET) [15], où les auteurs ont montré que les courbes du déclin de potentiel de surface se croisent, le croisement communément appelé "Cross-over" est visible dès le début du déclin.

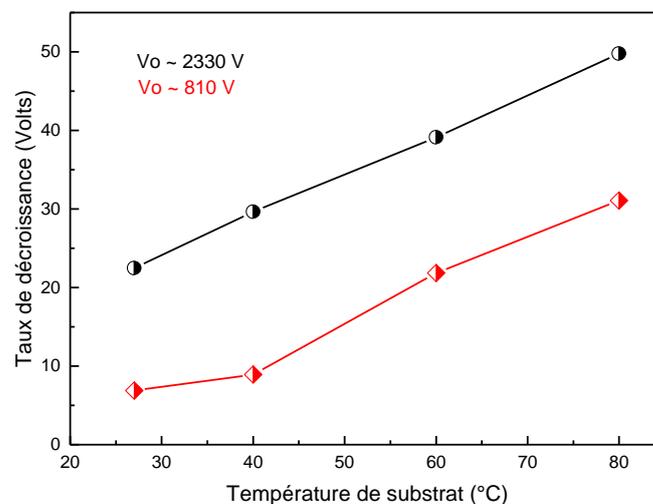


Figure II.17 : Taux du déclin de potentiel de surface en fonction de la température de substrat.

Il est également important de signaler que le déclin du potentiel de surface enregistré est plus significatif particulièrement dans les temps courts de mesure. Ceci reflète probablement que le mécanisme physique qui gouverne l'évolution du potentiel de surface aux premiers instants du déclin est plus influencé par l'augmentation de la température. Ce comportement est représentatif d'un mode d'activation thermique de l'injection de charges dans le volume

du matériau. Comme nous l'avons mentionné précédemment, les charges piégées dans les états de surface n'ont pas assez d'énergie pour être libérées [14], elles auront donc besoin d'une énergie supplémentaire pour être injectées dans les états de volume. Cependant, à une valeur de température du substrat élevée, les charges piégées acquièrent une énergie thermique qui est suffisante pour les arracher avant de les injecter dans le volume de l'isolant de sorte que l'état de surface sera activé thermiquement, ce qui explique l'augmentation du déclin de potentiel de surface dans les temps courts.

La décharge couronne peuple les états de surface du PI suivant une distribution énergétique, et réussit aussi à injecter des électrons dans les états de conduction du volume. En effet, les charges injectées, avec une certaine énergie dans le volume du matériau, leurs parcours dépendent des propriétés de piégeages du matériau. On suppose dans ce cas qu'à température ou à champ élevé, le dépiégeage thermique d'une partie de la charge piégée dans le matériau peut conduire à une certaine conductivité intrinsèque [16]. Donc, l'augmentation du déclin de potentiel de surface, peut être liée à l'augmentation de la conductivité des films par l'augmentation de la densité de charges libres traversant le volume de polymère jusqu'à l'électrode mise à la terre. Sur la base des travaux rapportés traitant des processus de transport de charges dans les isolants [17, 18], le processus de conduction est principalement attribué aux charges piégées par des pièges peu profonds. Dans ce cas, l'augmentation de la température du substrat réduira le temps de résidence des porteurs profondément piégés, ce qui signifie que les charges piégées par des pièges profonds peuvent être libérées thermiquement dans les pièges peu profonds avec une probabilité croissante de dépiégeage qui augmente la densité de porteurs libres [14].

Sur la [figure II.18](#), nous avons tracé la relation entre le potentiel de surface initial et la température du substrat (la valeur du potentiel initial correspond à la valeur absolue), pour deux différents niveaux de chargement faible et haut (800 et 2400 V).

Nous remarquons que le potentiel de surface initial ne subit aucun changement remarquable avec l'augmentation de la température pour les deux valeurs du niveau de chargement (le potentiel de surface initial varie dans la gamme 2317-2350 V pour $V_g = 2400$ V et 802-823 V pour $V_g = 800$ V dans la gamme de la température explorée). Ceci suggère que la température du substrat n'influe pas sur le processus de chargement des films de PI par décharge couronne.

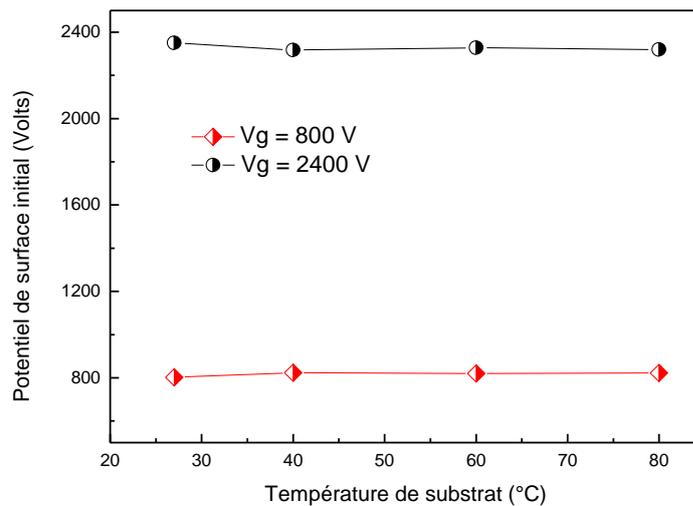


Figure II.18 : Relation entre le potentiel de surface initial et la température du substrat.

II.3.2. Mesure de la distribution spatiale du potentiel de surface

Les mesures de profil ont été enregistrées le long d'une ligne centrale d'un échantillon, afin d'observer d'éventuelles conductions surfaciques. Les films de PI ont été découpés sous forme carrée d'une surface de $50\text{ mm} \times 50\text{ mm}$.

La [figure II.19](#) montre la cartographie du potentiel de surface d'un échantillon de PI, enregistrée après le processus de chargement pour une température du substrat de 27 °C . Nous remarquons que la distribution du potentiel de surface de l'échantillon est presque uniforme dans la zone de dépôt, avec une valeur moyenne de l'ordre de 2330 V proche de celle de la tension de grille appliquée. A l'extérieur de la zone chargée, le potentiel de surface est de l'ordre de quelques dizaines de volts.

La distribution 2D du potentiel de surface enregistrée sur un échantillon chargé indique clairement la différence de potentiel de surface entre l'intérieur et l'extérieur de la zone chargée ([figure II.20](#)). Les charges déposées se concentrent principalement autour de l'électrode pointue (la zone centrale de l'échantillon).

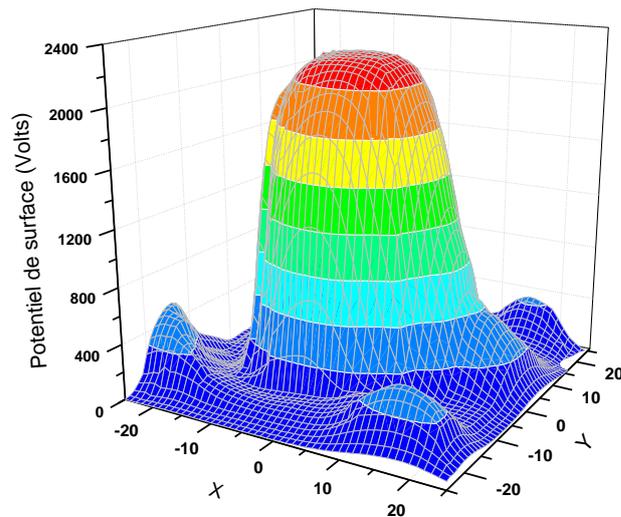


Figure II.19 : Cartographie du potentiel de surface d'un film de PI, enregistrée après le processus de chargement pour une température du substrat de 27 °C, (X, Y sont en *mm*).

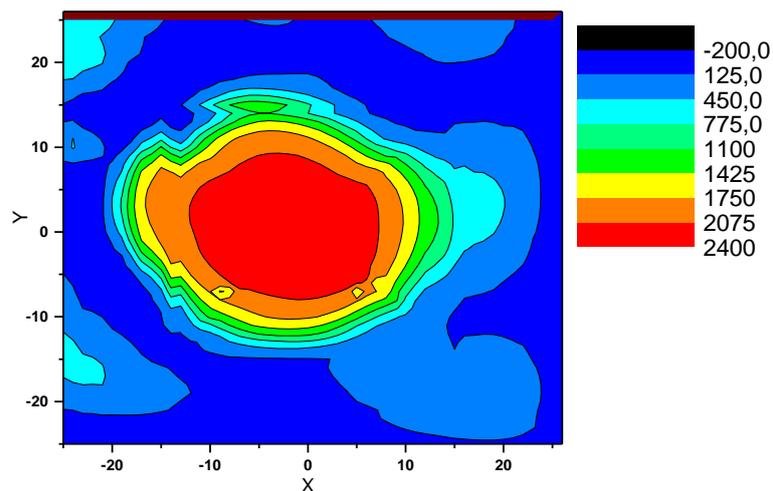


Figure II.20 : Représentation 2D du potentiel de surface du film de PI pour une température du substrat d'environ 27 °C, (X, Y sont en *mm*).

Les distributions spatiales du potentiel de surface mesurées à différents temps du déclin (10, 800, 3600 et 10800 s), pour une température du substrat de 27 °C et une tension de grille de $V_g = -2400$ V, sont rapportées à la [figure II.21](#).

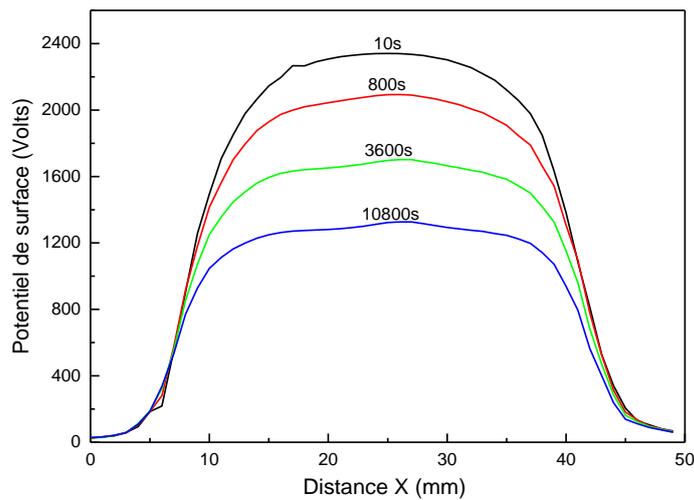


Figure II.21 : Profil du potentiel de surface enregistré à différentes durées de mesure, $T = 27\text{ }^{\circ}\text{C}$, $V_g = -2400\text{ V}$.

Les mesures du potentiel de surface ont commencé 10 secondes après le chargement par décharge couronne. Nous voyons clairement que le potentiel de surface est parfaitement uniforme le long de la zone de dépôt. A $t = 10\text{ s}$, le potentiel de surface dans la zone de dépôt a une valeur moyenne de l'ordre de 2341 V proche de celle de la tension de grille. Par contre, en dehors de la zone de dépôt, le potentiel de surface ne dépasse pas 100 V. Les cartographies du potentiel de surface (figure II.22), indiquent clairement la différence de potentiel de surface entre l'intérieur et l'extérieur de la zone de chargement. Nous observons également sur la figure II.21 que la valeur moyenne du potentiel de surface diminue progressivement avec le temps en conservant la même forme du profil. Dans ce cas, aucune augmentation du potentiel périphérique n'a été observée, comme ceci a été démontré dans des travaux antérieurs [19]. Après 3 heures, la chute du potentiel central est bien visible. Cette chute de potentiel dans la zone de dépôt n'a pas été compensée par une augmentation du potentiel périphérique.

L'absence de l'étalement de charges sur la surface libre du film de PI traduit le fait que l'écoulement des charges en surface n'est pas responsable de la majeure partie du déclin central. En effet, les phénomènes de diffusion qui peuvent résulter du gradient de concentration et des effets de champ électrique tangentiel, n'ont pas contribué à l'évolution du déclin de potentiel de surface dans notre cas. L'absence de l'étalement des charges a été également observée dans des travaux similaires, sur des films de polypropylène (PP) et de polyéthylène basse densité (LDPE) [20, 21].

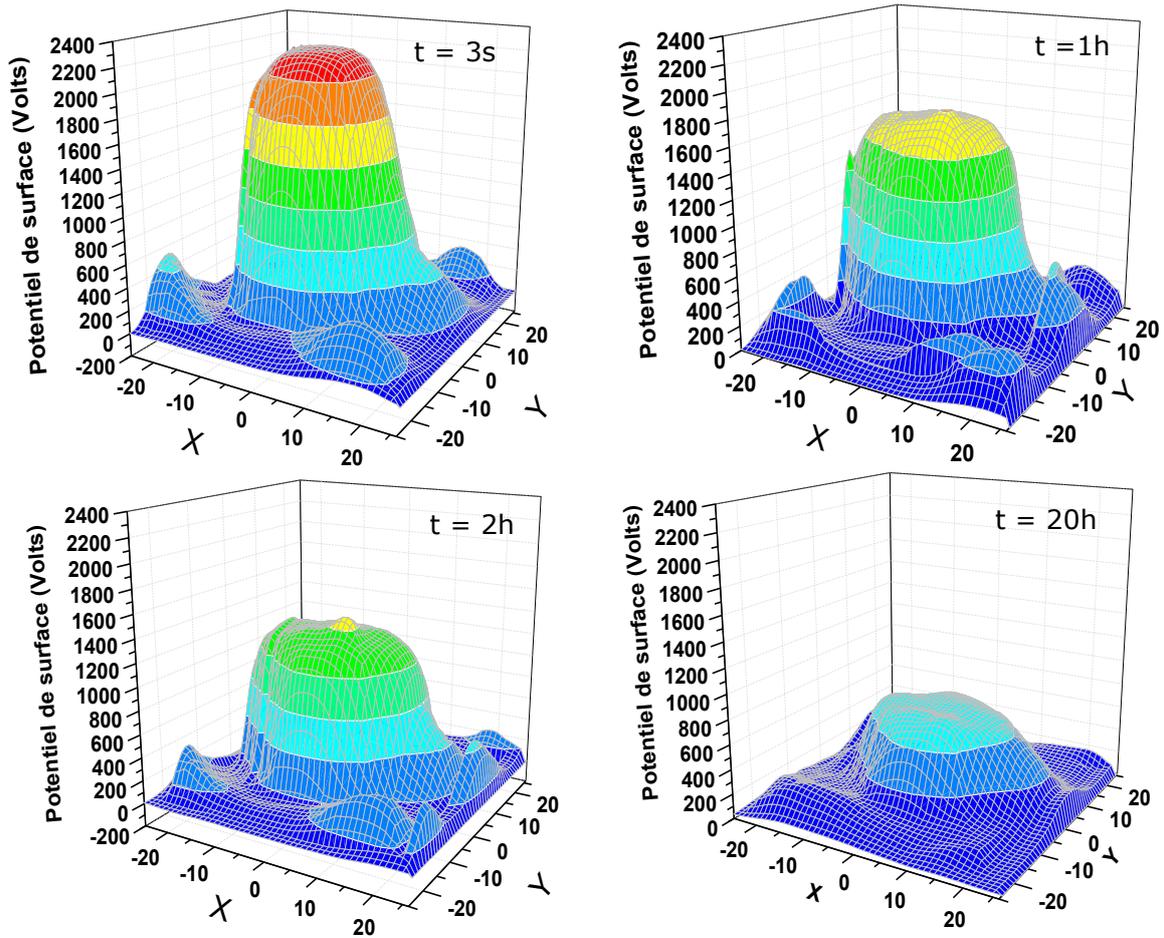


Figure II.22 : Cartographies du potentiel de surface enregistrées à différentes durées de mesure pour une température du substrat $T = 27\text{ °C}$ ($V_g = -2400\text{ V}$), (X, Y sont en mm).

On peut conclure que l'évolution temporelle du potentiel de surface, est fortement influencée par la contribution des phénomènes liés au volume du matériau. Ce qui confirme que la conduction de surface ne contribue pas à l'évolution du déclin de potentiel de surface et que l'injection en volume est le processus principal qui contrôle le transport de charges à travers les films du PI. De plus, la conservation de la forme et de la largeur de la zone de dépôt pendant tout le temps de mesure indiquent qu'il n'y avait pas de neutralisation significative de la charge par les ions atmosphériques [22]. Dans des rapports similaires sur d'autres polymères [2, 23], des creux au niveau du profil de potentiel ont été observés. Les auteurs ont supposé qu'ils sont assimilés aux phénomènes de cross-over. Par conséquent, dans notre cas, l'absence de creux dans les profils de potentiel peut être attribuée à l'absence de phénomène de cross-over dans les courbes du déclin de potentiel de surface.

Afin de mettre en œuvre l'effet de la température du substrat sur les différents phénomènes responsables de l'évolution du déclin de potentiel de surface dans les films de PI,

les procédures de chargement et de mesures du profil et de la cartographie du potentiel de surface pour différents temps de mesure ont été refaites mais pour une température du substrat plus élevée (80 °C). Cela permet d'illustrer les zones de perte ou gain de potentiel sur la surface de l'échantillon, et donc de représenter la dynamique de déplacement des charges à haute température du substrat.

La [figure II.23](#) montre la distribution spatiale du potentiel de surface enregistrée pour différentes périodes de temps (10, 600, 1800, 3600 et 5400 s) sous une tension de chargement de - 2400 V et à une température du substrat de 80 °C.

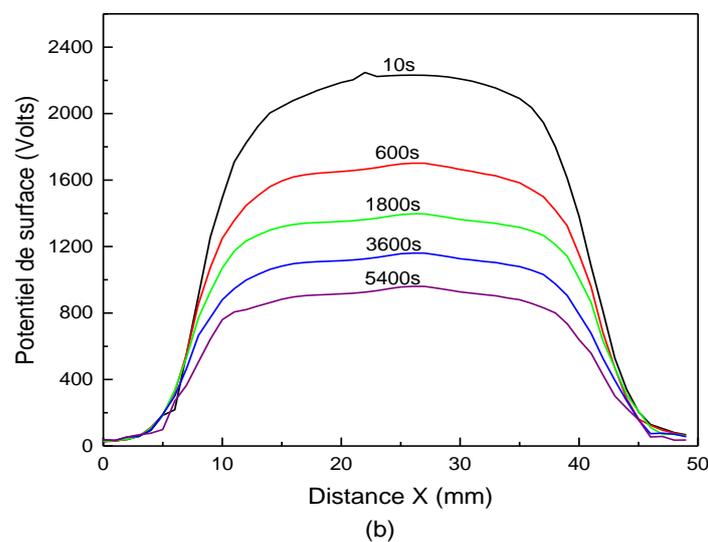


Figure II.23 : Profil de potentiel de surface enregistré à différentes durées de mesure, $T = 80 \text{ }^{\circ}\text{C}$.

Nous remarquons que les charges initialement déposées sont concentrées dans la zone centrale de l'échantillon. Cependant, en dehors de la zone de dépôt, le niveau de chargement est pratiquement nul. Nous remarquons également que la valeur moyenne du potentiel de surface diminue progressivement avec le temps en conservant la même forme du profil de potentiel de surface, sans aucune augmentation du potentiel périphérique.

La [figure II.24](#) représente les cartographies du potentiel de surface enregistrées pour différentes périodes de temps (3s, 1h, 2h et 3h) après le processus de chargement en utilisant une tension de grille égale -2400 V, et une température du substrat de 80 °C.

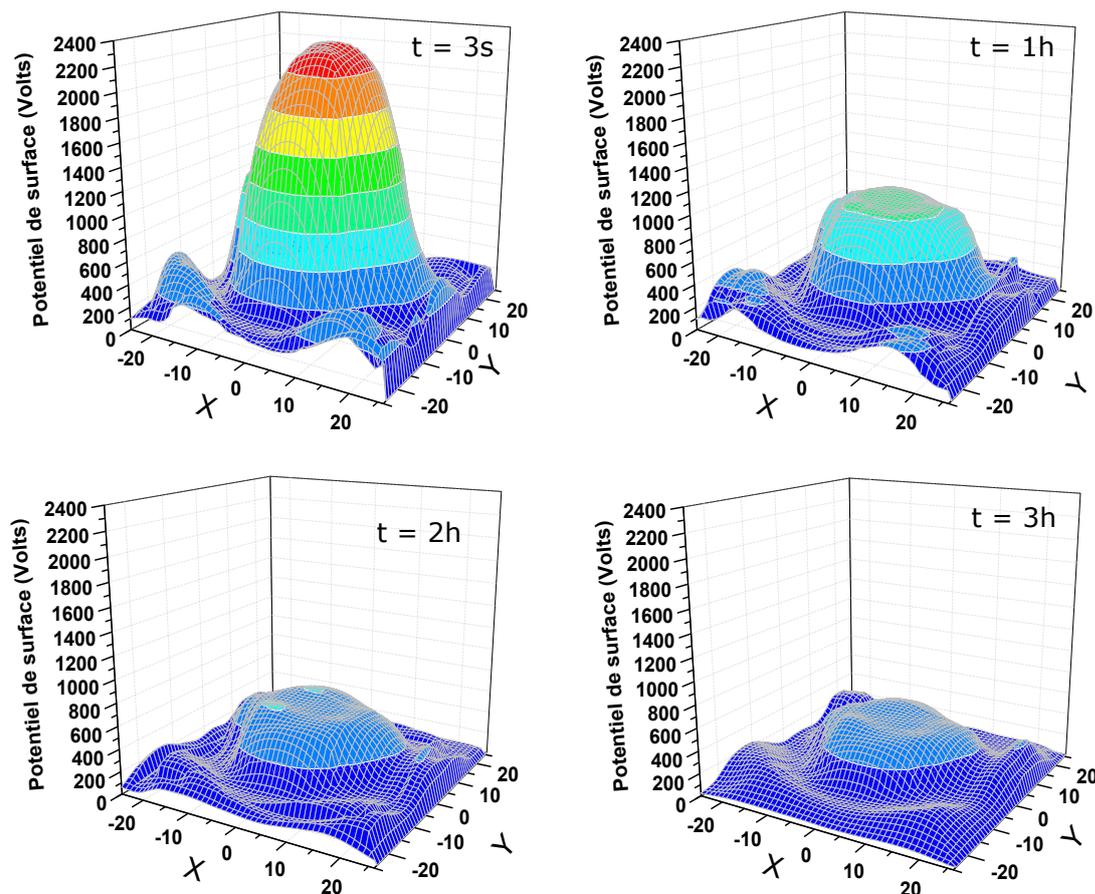


Figure II.24 : Cartographies du potentiel de surface enregistrées à différentes durées de mesure pour une température du substrat $T = 80\text{ °C}$ ($V_g = -2400\text{V}$), (X, Y sont en mm).

Il semble que les valeurs du potentiel de surface enregistrées dans la zone de dépôt pour une température du substrat élevée diffèrent de manière significative de celles enregistrées pour une température du substrat inférieure (figure II.22). La décroissance du potentiel de surface dans la zone de dépôt, avec le temps, est plus prononcée pour une température du substrat plus élevée. En effet, la valeur du potentiel de surface du centre de la zone de dépôt, enregistrée pour une température de 80 °C après trois heures de chargement par décharge couronne ($t = 3h$), était de l'ordre de quelques dizaines de volts, ce qui est presque égale à la valeur du potentiel de surface enregistrée après vingt heures ($t = 20h$) de chargement par décharge couronne pour une température de 27 °C . Ces résultats montrent bien que l'évolution du déclin de potentiel de surface dans les films de PI a été énormément influencée par l'élévation de la température du substrat. Cette dernière active thermiquement les phénomènes physiques gouvernant le déclin du potentiel de surface, tels que le piégeage et le dépiégeage de charges.

II.3.3. Mesure du retour de potentiel de surface

Pour avoir plus d'informations sur l'effet de la température du substrat sur les phénomènes de transport de charges dans les films de PI, nous avons enregistré pour différentes valeurs de la température du substrat le retour de potentiel qui apparaît après neutralisation rapide de la charge précédemment déposée par décharge couronne.

Le retour du potentiel de surface consiste à mesurer le potentiel de surface en fonction du temps après neutralisation des charges par décharge couronne. Généralement, cette neutralisation est faite à quelques secondes (temps de neutralisation de l'ordre de 5 secondes dans notre cas) après chargement des films par décharge couronne. Nous avons réalisé cette neutralisation par décharge couronne de polarité opposée (en appliquant une tension opposée à la pointe de décharge) en gardant le potentiel de la grille à la masse. On annule ainsi temporairement le potentiel de surface, et on suit ensuite la variation du potentiel de surface après neutralisation.

La [figure II.25](#) montre les évolutions, du déclin de potentiel de surface enregistré pendant environ 3 min et du retour de potentiel enregistré pendant environ 40 min pour un film de PI chargé négativement par décharge couronne avec une tension de grille égale à 2400 V ($T = 80\text{ °C}$) et neutralisé par décharge couronne positive avec la grille à la masse.

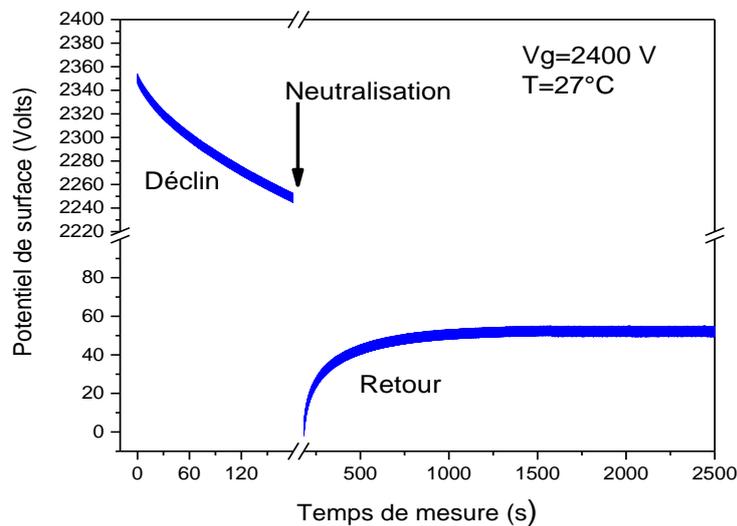


Figure II.25 : Déclin et retour du potentiel de surface en fonction du temps enregistré pour un film de PI chargé négativement par décharge couronne avec une tension de grille $V_g = -2400\text{ V}$ et $T = 27\text{ °C}$.

Avant la neutralisation, le comportement du potentiel de surface est le même que celui observé précédemment pour un déclin de potentiel. Après neutralisation des charges, nous

remarquons que le potentiel de retour augmente graduellement avec le temps (de signe opposé que le potentiel de surface), jusqu'à une valeur maximale. Après cette valeur, le potentiel de surface diminue lentement avec le temps.

La [figure II.26](#) présente la variation du retour de potentiel de surface en fonction du temps, enregistrée sur des films de PI pour quatre valeurs de la température du substrat (27, 40, 60 et 80 °C) et pour une tension de grille appliquée $V_g = -2400$ V.

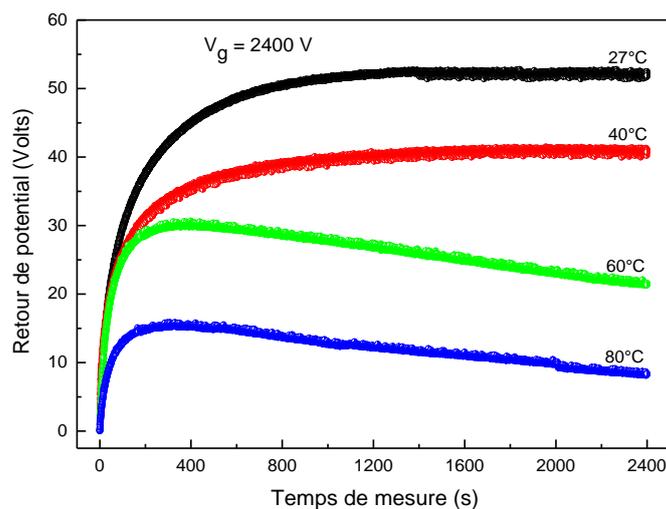


Figure II.26 : Retour du potentiel de surface enregistré après 3 min du temps de déclin pour différentes températures du substrat ($V_g = -2400$ V).

Le retour du potentiel apparaît après la neutralisation rapide de la charge en mettant la grille à la terre et en appliquant une tension opposée à la pointe de décharge. A $T = 27$ et 40 °C, le retour de potentiel augmente rapidement pendant un temps court (inférieur à 400 s) puis lentement jusqu'à atteindre une valeur quasi constante d'environ 52 et 40 V, respectivement. A $T = 60$ et 80 °C, le retour de potentiel augmente rapidement, jusqu'à une valeur maximale. Après cette valeur, le potentiel de surface diminue progressivement (après environ 200 secondes). La valeur maximale du retour de potentiel de surface en fonction de la température du substrat diminue avec la température. Ce comportement peut être expliqué par l'augmentation de la cinétique du déclin de potentiel de surface avec la température du substrat. En effet, l'augmentation de la température du substrat diminue la densité de charges situées près de l'électrode d'injection, responsables du retour de potentiel dans les films de PI. En conséquence, peu de charges reviendront à la surface de l'échantillon (les charges atteindront plus rapidement l'électrode de masse), induisant un retour de potentiel faible. Ce qui suggère que le temps de transit des charges dérivées diminue avec l'augmentation de la température.

Min et *al* [14], ont rapporté une augmentation de la mobilité des porteurs avec la température dans les films de PI, induisant une diminution du temps de transit [24]. Cela suggère qu'une proportion élevée des charges injectées atteindrait l'électrode de mise à la terre et qu'une faible proportion resterait à proximité de l'électrode d'injection. Selon Llovera et *al* [2], deux phénomènes physiques peuvent être théoriquement responsables du retour de potentiel : l'injection de charges et la polarisation dipolaire lente. La comparaison du déclin et du retour de potentiel montre que la chute de potentiel due au déclin est plus grande que le retour qui se produit. Pour une température de 27 °C et après 3 minutes du déclin, une chute de potentiel d'environ 102 V a été enregistrée pour un échantillon initialement chargé à environ -2350 V (figure II.16). Après neutralisation, le retour de potentiel a atteint une valeur d'environ 52 V pendant 40 min. La faible valeur du retour de potentiel enregistrée par rapport à la chute du potentiel avant neutralisation suggère que la relaxation dipolaire n'a qu'une faible importance dans l'évolution du déclin de potentiel de surface. Un travail similaire a été rapporté par Molinie et *al* [25] sur des films de polypropylène. Ils ont attribué le retour de potentiel apparaissant à 70 °C (pratiquement inexistant à 25 °C) à un retour de charges injectées dans le volume plutôt qu'à une polarisation dipolaire.

Dans le cas d'une température du substrat de 60 et 80 °C, la diminution progressive du retour de potentiel de surface peut être attribuée à la réinjection des charges retournées sous l'effet de l'activation thermique, tandis que, pour une température de substrat de 27 et 40 °C, l'énergie thermique n'était pas suffisante pour la réinjection des charges retournées. Des mesures expérimentales sur le retour de potentiel ont également été rapportées pour de nombreux matériaux polymères [16, 26, 27]. L'effet du champ électrique sur le retour de potentiel de surface a été également rapporté par Ziari et *al* [19]. Les auteurs ont constaté que le retour de potentiel augmente avec l'augmentation du champ électrique appliqué et qu'aucune diminution du retour de potentiel n'a été observée, ce qui n'est pas le cas pour l'effet de la température du substrat. Ces résultats montrent bien que le champ électrique et la température n'affectent pas le déclin de potentiel de surface de la même manière, en particulier au début du déclin.

La figure II.27 montre la variation du retour de potentiel de surface en fonction du temps pour différentes durées de déclin (1,2 et 3 min) pour une température du substrat de 80 °C.

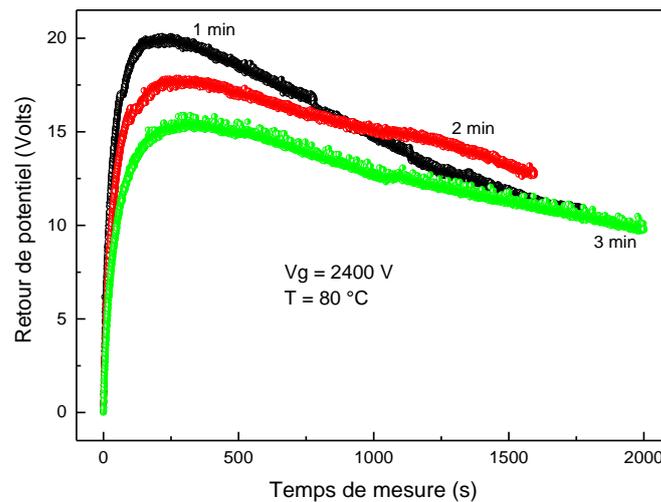


Figure II.27 : Retour du potentiel de surface enregistré sur des films de PI pour différents temps de déclin ($V_g = 2400 \text{ V}$, $T = 80 \text{ °C}$).

Avant d'atteindre les valeurs maximales, le retour de potentiel de surface augmente progressivement puis diminue rapidement, en particulier pour une durée de déclin de 1 min. Dans le cas des temps de déclin de 2 et 3 min, la diminution du retour de potentiel est plus lente par rapport à celui enregistré à 1 min. La valeur maximale du retour de potentiel de surface est inversement proportionnelle au temps de déclin car elle dépend essentiellement de la densité de charges existante dans le volume du matériau. Les faibles valeurs du potentiel de retour mesurées avec le temps de déclin indiquent que la plupart des charges injectées poursuivent leur dérive vers l'électrode de masse et celles qui restent proches de la surface retournent à l'électrode injectrice. Donc, pour des faibles temps de déclin, les charges restent proches de la surface (faible pénétration) et nécessitent donc un temps suffisamment court pour revenir à la surface d'injection. Par contre, pour des temps de déclin relativement grands, nous avons une forte pénétration des charges dans l'échantillon et les charges ont suffisamment de temps pour pénétrer plus loin, ce qui suggère un temps de transit plus faible par rapport à celui relatifs aux faibles temps de déclin (charges proches de la surface).

II.3.4. Mesure du courant de charge

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 IEEE-488. La valeur du courant associé à la décharge couronne est déduite à partir de la tension aux bornes d'une résistance non inductive de $1 \text{ M}\Omega$.

Les mesures du courant de chargement des films de PI pendant le chargement négatif par décharge couronne, enregistrées pour différentes tensions de grille V_g variant de -400 à -2400 V, sont rapportées sur la [figure II.28](#). Les mesures ont été effectuées dans les mêmes conditions de laboratoire d'humidité relative (RH = 40 %) et de température du substrat ($T = 27$ °C), afin d'obtenir une bonne corrélation entre les différentes mesures.

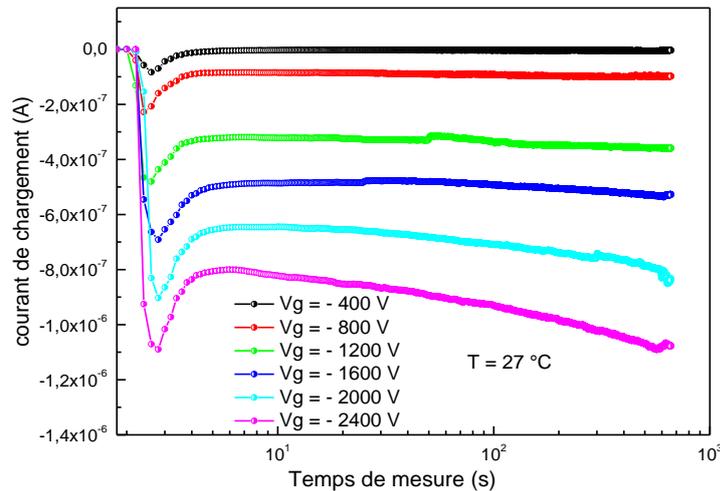


Figure II.28 : Evolution du courant de charge en fonction du temps de chargement pour différents niveaux de chargement de films de PI ($T = 27$ °C).

Pour $V_g < 1600$ V, nous remarquons que l'allure de la courbe présente une caractéristique de courant de charge typique d'un semi-conducteur [28], dans laquelle elle indique un pic initial dû à la charge de la capacité du film (croissance initiale rapide du courant) [29]. Ce courant présente deux zones de variations distinctes : pour les temps courts, un courant transitoire rapide est observé après le lancement du processus de chargement suivi d'une variation plus lente aux temps longs, pour se stabiliser ensuite à une valeur quasi constante dite courant permanent (état stationnaire du courant). Cependant, pour $V_g > 1600$ V, le courant de charge montre une évolution différente : absence de l'état stationnaire du courant de charge (le courant de charge augmente lentement après une diminution significative). De plus, le pic initial du courant de chargement augmente avec l'augmentation de la valeur de la tension de grille appliquée (la valeur du pic de courant initial mesurée est d'environ $8,3 \cdot 10^{-8}$ A à une tension de grille de -400 V et augmente aux alentours de $1,1 \cdot 10^{-6}$ A pour une tension de grille de -2400 V). La différence de l'évolution temporelle du courant de charge lors de la variation de la valeur de la tension de grille appliquée est probablement due à la différence de la quantité de charges déposées sur le film de PI. Ces

résultats sont en bon accord avec ceux de l'effet du champ électrique sur les courbes du déclin de potentiel de surface.

La [figure II.29](#), montre l'évolution du courant de chargement en fonction du temps de chargement pour différentes valeurs de la température du substrat ($V_g = -2400$ V).

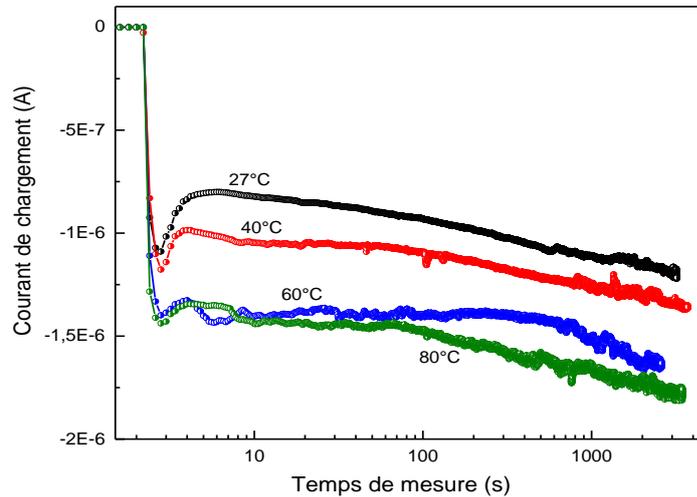


Figure II.29 : Evolution du courant de chargement en fonction du temps pour différentes valeurs de la température du substrat ($V_g = -2400$ V).

En raison du comportement bipolaire de la progression du chargement [30, 31], le courant mesuré est dû à l'injection de charges provenant des surfaces supérieure et inférieure de l'échantillon. Lorsqu'on augmente la température du substrat, l'amplitude du courant de chargement augmente et le pic initial du courant disparaît. Etant donné que le pic de courant est corrélé à la quantité de charges d'espace stockée ou accumulée dans le film de PI, la diminution de l'amplitude du courant de chargement avec l'augmentation de la température de substrat peut être attribuée à la diminution de la charge d'espace dans le film de PI. En d'autres termes, les charges déposées atteignent plus rapidement l'autre électrode due à l'activation thermique. Ce comportement du courant de charge en fonction de la température du substrat est en bon accord avec l'évolution du déclin de potentiel de surface ([figure II.16](#)). L'augmentation de la température du substrat accélère les différents mécanismes physiques (phénomène de dépiégeage, dérive de la charge vers le volume) responsable du transport de charges, ce qui accélère le déclin du potentiel de surface. L'injection de la charge déposée pendant le chargement par effet corona semble être plus facile à se produire à haute température du substrat.

II.4. Analyse du déclin de potentiel de surface pour différentes températures

Généralement, il existe deux types de charges à l'intérieur d'un matériau isolant chargé par décharge couronne : charges libres (mobiles) et charges piégées. Ces deux types de charges agissent très différemment. En effet les charges libres peuvent se déplacer facilement à travers l'échantillon pour atteindre l'électrode de masse et les charges piégées demeurent beaucoup plus longtemps à l'intérieur du matériau.

Les pièges en polymères peuvent être divisés en pièges profonds et pièges peu profonds [32]. Il n'a pas encore été possible de décrire la nature des pièges peu profonds. Plusieurs facteurs peuvent être responsables de la production de ces pièges, à savoir les impuretés chimiques, les produits d'oxydation, les chaînes brisées et les molécules absorbées. Bauser et al [33], ont trouvé que la décharge couronne elle-même peut créer de nouveaux pièges de surface pendant le chargement. Ces auteurs ont suggéré qu'il pourrait exister dans le Kapton-polyimide des pièges peu profonds, dus aux atomes d'azote présents dans sa structure et des pièges profonds, dus aux atomes du groupe cétonique [33, 34]. On peut supposer qu'il existe deux types de processus de déclin se produisant simultanément et contrôlés par deux types de charges. Selon Meunier et al [35, 36], la distribution de la densité de pièges en polyéthylène (PE) en fonction du niveau d'énergie calculé par simulation moléculaire peut être représentée par des fonctions exponentielles. Par conséquent, l'évolution du déclin de potentiel de surface en fonction du temps $V_s(t)$ peut être décrite par une expression analytique sous forme bi-exponentielle:

$$V_s(t) = A_f \exp(-B_f t) + A_t \exp(-B_t t) \quad (\text{II.1})$$

Les paramètres de simulation A_f et A_t représentent le potentiel de surface initial après le chargement dû à la densité des charges libres et piégées, respectivement, alors que les paramètres B_f et B_t représentent le taux d'injection des densités des charges libres et piégées, respectivement.

A l'instant $t = 0$, $A_f + A_t = V_o$ (V_o est le potentiel initial dû à la densité des charges déposées à la surface du film de PI après le dépôt de charges par décharge couronne).

L'équation II.1 permet de décrire l'évolution du potentiel de surface en fonction du temps de mesure pour des valeurs numériques des paramètres de simulation A_f , A_t , B_f et B_t déterminées au préalable. Ces paramètres sont ajustés après plusieurs itérations de

manière à obtenir la meilleure régression sur l'évolution du déclin de potentiel de surface. Dans notre travail, nous avons utilisé le logiciel Origin 8.0 pour l'ajustement des courbes de déclin de potentiel de surface.

Sur la [figure II.30](#), nous avons représenté les résultats des déclins de potentiel de surface obtenus expérimentalement pour une tension de grille de 2400 V avec ceux obtenus théoriquement en utilisant l'équation II.1.

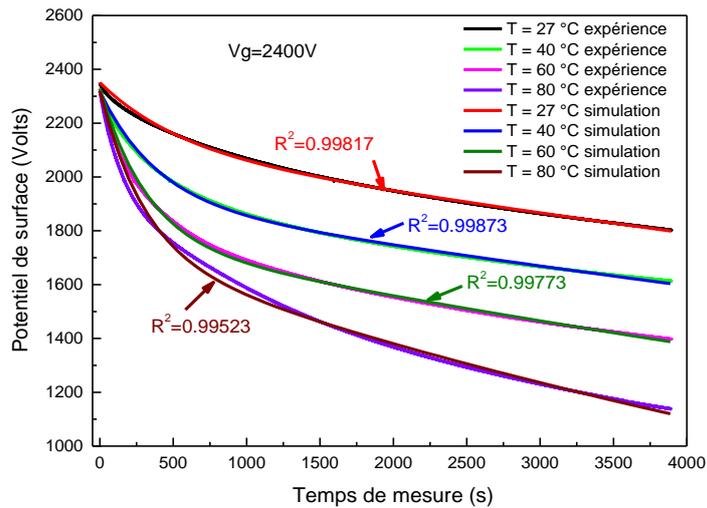


Figure II.30 : Résultats de simulation du déclin de potentiel de films de PI pour différentes valeurs de la température.

Les courbes des déclins de potentiel simulées, pour différentes valeurs de la température du substrat, sont en bon accord avec celles obtenues expérimentalement, sur tout le domaine temporel de la simulation exploré. Le processus du déclin de potentiel de surface est contrôlé par les charges libres et piégées.

Les valeurs des paramètres de la simulation A_f , A_t , B_f et B_t obtenues par la meilleure régression pour différentes températures sont reportées sur la [figure II.31](#).

Nous remarquons que le potentiel de surface initial A_f augmente alors que le potentiel initial A_t diminue avec l'augmentation de la température de substrat ([figure II.31.a](#)). Nous remarquons aussi que les taux d'injection de charges libres B_f et piégées B_t augmentent en augmentant la température de substrat (B_f est supérieur à B_t) ([figure II.31.b](#)). Ces résultats peuvent être expliqués par l'augmentation de la proportion des charges libres avec l'augmentation de la température du substrat. Il est bien évident que la diminution de la

proportion de charges piégées est compensée par l'augmentation de la proportion de charges libres confirmant que les charges piégées ont été dépiégées thermiquement. Après le dépiégeage, les charges seront accélérées par le champ électrique interne vers l'électrode opposée et contribueront au processus de conduction.

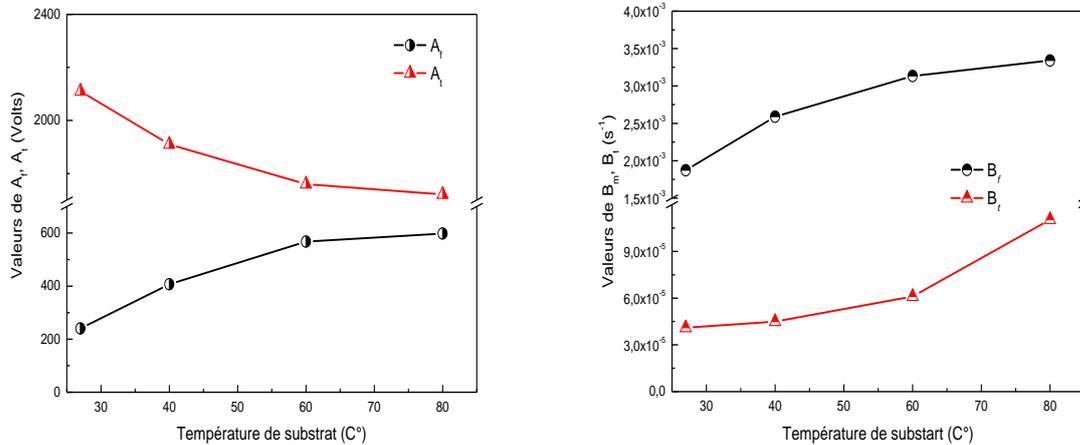


Figure II.31 : Variations des paramètres de simulation en fonction de la température du substrat, a) paramètres A_f et A_t , b) paramètres B_f et B_t .

Considérant le changement de la densité de charges de surface, la densité du courant électrique peut être obtenue, son expression s'écrit [1] :

$$j(t) = \frac{d\sigma(t)}{dt} \quad (\text{II.2})$$

où $j(t)$ est la densité de courant électrique et $\sigma(t)$ la densité de charges de surface qui change avec le temps.

L'expression de la densité de charges de surface s'écrit :

$$\sigma(t) = \frac{\varepsilon_o \varepsilon_r V_s(t)}{d} \quad (\text{II.3})$$

où ε_o est la permittivité du vide, ε_r la permittivité relative de PI, $V_s(t)$ le potentiel de surface du matériau en fonction du temps et d l'épaisseur de l'échantillon.

La relation entre le courant électrique et la densité de charges piégées peut être exprimée par.

$$j(t) = \frac{q_e Q_s(t)}{t} \delta(E_T, t) \quad (\text{II.4})$$

où $Q_s(t)$ est la densité de charges piégées et $\delta(E_T, t)$ la fonction de Dirac.

En analysant de manière exhaustive les équations II.2, II.3 et II.4, la densité de charges piégées est finalement obtenue, c'est-à-dire, la relation entre la densité de charges piégées et le taux du déclin de potentiel de surface peut être exprimée comme suit [1] :

$$Q_s(t) = t \frac{\varepsilon_o \varepsilon_r}{q \cdot d} \cdot \frac{dV_s(t)}{dt} \quad (\text{II.5})$$

où q est la charge élémentaire et t le temps du déclin. La densité de charges piégées peut être calculée en utilisant cette équation, qui est liée au taux du déclin de potentiel de surface et au temps du déclin.

L'expression du niveau d'énergie des pièges peut être donnée comme suit [1] :

$$E_T = k_B T \ln \nu_{ATE} t \quad (\text{II.6})$$

où k_B est la constante de Boltzmann, T la température, ν_{ATE} la fréquence des tentatives de sauts (attempt to escape frequency) et t le temps du déclin. La profondeur du piège représente l'énergie nécessaire à une charge piégée pour sauter d'un état localisé.

Selon le modèle développé par Jianying et al [1] et utilisant nos paramètres de simulation, la distribution de charges piégées dans les films de PI chargés négativement pour différentes valeurs de la température en fonction du niveau d'énergie des pièges est représentée sur la figure II.32.

Nous constatons que la température de l'échantillon a une grande influence sur la distribution des charges piégées. Deux pics liés à la valeur maximale de la densité de charges piégées dans des pièges peu profonds (pic 1) et celle de la densité de charges piégées dans des pièges profonds (pic 2) ont été observés dans chaque courbe. L'augmentation de la température de l'échantillon induit une augmentation de la densité de pièges peu profonds et une diminution de la densité de pièges profonds. La densité de charges piégées dans des pièges profonds reste toujours supérieure à celle des charges piégées dans des pièges peu profonds. De plus, la position des pics liés aux pièges profonds et peu profonds se déplace vers des niveaux d'énergie supérieurs lorsque la température augmente. Le niveau d'énergie des pièges peu profonds est d'environ 0.88 et 1.02 eV à une température d'échantillon de $T = 27$ et 80 °C, respectivement, tandis que le niveau d'énergie des pièges profonds est d'environ 0.97 à 1.12 eV, respectivement. La différence d'énergie d'activation (ou de profondeur de piège) entre les échantillons test à différentes valeurs de la température suggère

que les sites de pièges sont modifiés à cause de l'augmentation de la température [37, 38]. Selon les données publiées dans la littérature sur d'autres types de matériaux isolants et pour des déclinis isothermes [39-41], la température favorise le taux de dépiégeage de charges et son transport dans le diélectrique, ce qui indique que les charges sont plus faciles à dépiéger et à se répartir entre les états de conduction à haute température. Nous avons également observé que la diminution de la densité de pièges profonds est compensée par l'augmentation de la densité de pièges peu profonds. Comme mentionné dans la référence [42], les charges piégées dans les pièges profonds peuvent être relâchées thermiquement dans les pièges peu profonds avec une probabilité de dépiégeage. Il est donc raisonnable de suggérer que le transport de charges injectées se fait par l'intermédiaire de sauts (hopping) entre sites de piègeages localisés. D'autre part, l'augmentation du niveau d'énergie des pièges profonds pourrait limiter la probabilité de piégeage des charges piégées, qui est également liée à la température.

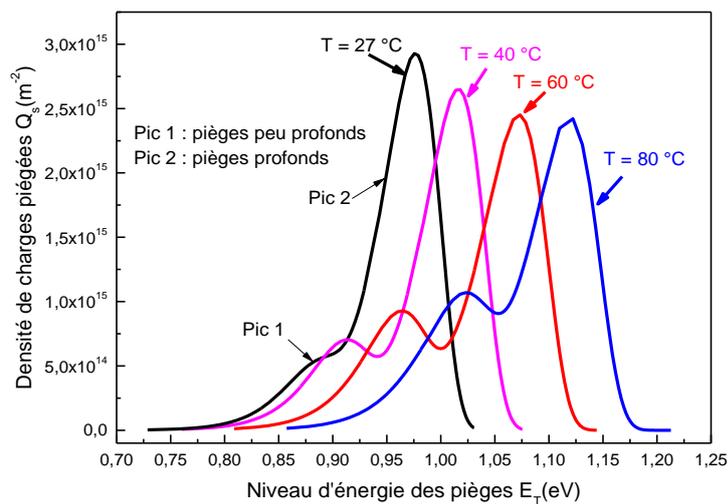


Figure II.32 : Distribution de la densité de charges piégées des films de PI pour différentes valeurs de la température.

Les pièges de charges à l'intérieur d'un polymère sont formés de défauts physiques dans la région amorphe et de défauts chimiques tels que des résidus chimiques de la chaîne macromoléculaire [43]. Dans le PI, les groupes carbonyle insaturés et les groupes à noyau phényle peuvent être les sources principales de pièges de charges [44]. Il a été rapporté que le mouvement de la chaîne moléculaire du polymère devient actif avec l'augmentation de la température [45]. Ainsi, à haute température, le mouvement du réseau de chaînes aléatoires de PI pourrait modifier la distribution des pièges de charges en raison de changements structuraux, tels que la réticulation (cross-linking) de chaînes moléculaires [46]. En outre, il a été supposé que le phénomène physique qui gouverne la charge de surface est le caractère

chimique du PI. Il peut être supposé que la structure aromatique de PI joue un rôle important dans la tendance à la décroissance de la charge de surface, qui fournit une nouvelle direction dans le domaine des matériaux d'isolation [47]. De plus, il a été trouvé que l'imidation incomplète des films de PI pourrait contribuer à l'évolution de leurs caractéristiques électriques. En effet, avec l'augmentation de la température, les groupes d'acide carboxylique polaire (COOH) présents dans l'acide polyamique qui n'a pas réagi, ne sont pas liés, et peuvent être ionisés, $COOH \rightarrow COO^- + H^+$ fournissant ainsi des protons libres pour la conduction [48]. D'autre part, Lan et al [39] ont rapporté que, la haute température accélère la formation de charges dans un film de PE réticulé. La dissociation ionique d'espèces chimiques et l'injection de charges au niveau des électrodes deviennent plus fortes. De ce fait, la charge d'espace a commencé à s'accumuler à un champ plus bas lorsque la température a augmenté.

Comme mentionné par Yue et al [46], la température du substrat a une influence significative sur la structure d'agrégation des polymères et donc affecte leurs propriétés électriques. Par conséquent, la diminution de la densité de charges piégées dans des pièges profonds avec l'élévation de la température de l'échantillon peut s'expliquer non seulement avec le dépiégeage de charges mais également avec l'augmentation du nombre de pièges peu profonds due au mouvement du réseau de la chaîne. Le changement compliqué dans la microstructure physique dû aux vibrations thermiques peut modifier les sites de pièges ou certains pièges profonds peuvent être transformés en pièges peu profonds [49].

II.5. Conclusion

Dans ce chapitre, le matériel utilisé durant l'élaboration de ce travail a été décrit, en détaillant le déroulement des manipulations sous les différentes conditions et approches expérimentales.

L'étude du déclin de potentiel de surface dépend fortement du potentiel de chargement initial V_0 . Les évolutions du courant de charge sont bien corrélées avec les évolutions du déclin de potentiel de surface.

Le comportement des charges déposées par décharge couronne sur des films de PI, à différentes valeurs de la température du substrat (27, 40, 60 et 80 °C) a été étudié en mesurant le déclin du potentiel de surface, la distribution (profil et cartographie) du potentiel de surface, le retour du potentiel de surface et le courant de charge par décharge couronne. Il a été constaté que la décroissance du potentiel de surface et le courant de charge sont activés thermiquement avec l'augmentation de la température du substrat. L'absence d'étalement

latéral dans le profil du potentiel de surface confirme l'injection en volume de charges déposées dans les films de PI.

Sur la base de l'analyse des mesures du déclin de potentiel de surface avec une équation bi-exponentielle, la densité de charges des pièges a été calculée. Deux pics liés à la valeur maximale de la densité de pièges peu profonds et profonds ont été observés. On constate que la température de l'échantillon peut affecter la densité de charges piégées dans des pièges peu profonds et profonds. La densité de pièges peu profonds augmente lorsque la température du substrat augmente. La température du substrat a une influence significative sur la structure d'agrégation du polymère, ce qui affecte ses propriétés électriques.

Références bibliographiques du chapitre II

- [1] L. Jianying, Z. Fusheng, M. Daomin, L. Shengtao, “The Energy Distribution of Trapped Charges in Polymers Based on Isothermal Surface Potential Decay Model”, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 22, N°. 3, pp. 1723-1732, 2015.
- [2] 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, N°. 6, pp. 1049-1056, 2004.
- [3] B. Tabti, R.M. Mekideche, M. Plopeanu, L.M. Dumitran, L. Herous, L. Dascalescu, “Corona charging and charge decay characteristics of nonwoven filter media”, IEEE/Industry Application Society Annual Meeting, Edmonton Canada, 6-9 Octobre 2008.
- [4] T.A. Yovcheva, I.A. Avramova, G.A. Mekishev, T.S. Marinova, “Corona-charged polypropylene electrets analyzed by XPS”, Journal of Electrostatics, Vol. 65, Issues. 10-11, pp. 667-671, 2007.
- [5] R.E. Vosteen, R. Bartnikas, Chapitre 6, “Electrostatic charge measurements”, in Engineering Dielectrics, “Electrical properties of solid insulating materials: Molecular structure and electrical behavior”, ASTM STP 783, pp. 481-489, 1983.
- [6] B. Tabti, “Contributions à la caractérisation des filtres à électret par la mesure du déclin de potentiel de surface”, Thèse de Doctorat, Université de Poitiers, Décembre 2011.
- [7] 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, N°. 2, pp. 600-608, 2012.
- [8] D. Min, A.R. Khan, M. Cho, S. Li, “Charge transport properties of dielectrics revealed by isothermal surface potential decay”, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 19, N°. 4, pp. 1465-1473, August 2012.
- [9] P. Molinie, D. Alvarez, “Etude de l’injection de charge sur des plaques d’élastomère silicone par mesures du potentiel de surface”, Revue Internationale de Génie Electrique, Vol. 9, pp. 389-404, 2006.
- [10] P. Molinie, P. Llovera, “Surface potential measurements: Implementation and interpretation”, in Proc. Dielectr. Mater., Meas. Appl. (IEE Conf. Publ. N°. 473), pp. 253-258, 2000.
- [11] 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”, Phys. Rev. B, Vol. 7, pp. 3706-3713, Apr. 1973.
- [12] G.J. Zhang, K. Yang, M. Dong, W.B. Zhao, Z. Yan, “Surface electroluminescence phenomena correlated with trapping parameters of insulating polymers”, Applied Surface Science, Vol. 254, N°. 5, pp. 1450-1455, 2007.
- [13] M. Touzin, “Transport de charges dans les alumines polycristallines - Application à l’optimisation de la rigidité diélectrique”, Thèse de Doctorat, Université Jean Monnet, N° d’ordre : 384 SGM, 2005.
- [14] D. Min, S. Li, M. Cho, A.R. Khan, “Investigation into surface potential decay of polyimide by unipolar charge transport model”, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol. 41, N°. 12, pp. 3349-3358, December 2013.

- [15] L. Herous, M. Remadnia, M. Kachi, M. Nemamcha, "Decay of electrical charges on polyethylene terephthalate surface", *Journal of Engineering Science and Technology, Review* 2 (1), pp. 87-90, 2009.
- [16] P. Molinie, "Recherches en électrostatique - Actualité d'une science ancienne et applications à la caractérisation des matériaux", *Mémoire Habilitation à Diriger des Recherches*, Paris Sud, 2010.
- [17] C. Perrin, V. Griseri, C. Laurent, "Measurement of internal charge distribution in dielectrics using the pulsed electro-acoustic method in non-contact mode", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 15, N°. 4, pp. 958-964, 2008.
- [18] G.M. Sessler, "Charge dynamics in irradiated polymers", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 27, N°. 5, pp. 961-973, 1992.
- [19] Z. Ziari, S. Sahli, A. Bellel, Y. Segui, P. Raynaud, "Simulation of surface potential decay of corona charged polyimide", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 18, pp. 1408-1415, 2011.
- [20] M. Ieda, G. Sawa, U. Shinohara, "Decay of electric charges on polymeric films", *Electr. Eng. Jap.*, Vol. 88, pp. 73-88, June 1968.
- [21] D.K. Das Gupta, "Electrical properties of surfaces of polymeric insulators", *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, Vol. 27, pp. 909-923, October 1992.
- [22] J. Kindersberger, C. Lederle, "Surface charge decay on insulators in air and sulfurhexafluorid – Part I: Simulation", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 15, N°. 4, August 2008.
- [23] S. Haridoss, M.M. Perlman, C. Carlone, "Vibrationally excited diatomic molecules as charge injectors during corona charging of polymer films", *J. Appl. Phys.*, Vol. 53, pp. 6106-6114, 1982.
- [24] H. Scher, E.W. Montroll, "Anomalous transit-time dispersion in amorphous solids", *Phys. Rev. B*, Vol. 12, pp. 2455-2477, 1975.
- [25] P. Molinié, S. Agnel, J. Castellon, "Investigations on charge accumulation and relaxation in polycrystalline Al₂O₃", 10th International Conference on Solid Dielectrics, Potsdam July 2010.
- [26] R. Coelho, P. Jestin, L. Levy, D. Sarrail, "On the return-voltage buildup in insulating materials", *IEEE Transactions on Electrical Insulation*, Vol. 22, pp. 683-690, 1987.
- [27] P. Molinie, "Measuring and modeling transient insulator response to charging: The contribution of surface potential studies", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol.12, N°. 5, pp. 939-950, 2005.
- [28] Y. Liu, Z. An, J. Cang, Y. Zhang, F. Zheng, "Significant suppression of surface charge accumulation on Epoxy Resin by direct fluorination", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation* Vol. 19, N°. 4; August 2012
- [29] P. Molinié, "Charge injection in corona-charged polymeric films : potential decay and current measurements", *Journal of Electrostatics*, Vol. 4, pp. 265-273, 1999.
- [30] Z.Q. Xu, L.W. Zhang, G. Chen, "Decay of electric charge on corona charged polyethylene", *J. Phys. D. Appl. Phys.*, Vol. 40, pp. 7085-7089, 2007.
- [31] G. Chen, "A new model for surface potential decay of corona-charged polymers", *J. Phys. D. Appl. Phys.*, Vol. 43, pp. 055405 (7 pp), 2010.

- [32] G. Chen, Z.Q. Xu, "Charge trapping and detrapping in polymeric materials", *J. Appl. Phys.*, Vol. 106, 123707 (5pp), 2009.
- [33] H. Bauser, U. Pernisz, "Field effect in anthracene crystal", *Chemical Physics Letters*, Vol. 11, pp. 213-215. 1971.
- [34] J.K. Quamara; P.K.C. Pillai; B.L. Sharma, "Surface potential decay characteristics and TSDC studies in corona charged kapton polyimide film", *Acta Polymerica*, Vol. 34, pp. 265-267, 1983.
- [35] M. Meunier, N. Quirke, A. Aslanides, "Molecular modeling of electron traps in polymer insulators: Chemical defects and impurities", *J. Chem. Phys.*, Vol. 115, pp. 2876-2881, 2001.
- [36] M. Meunier, N. Quirke, "Molecular modeling of electron trapping in polymer insulators", *J. Chem. Phys.*, Vol. 113, pp. 369-376, 2000.
- [37] F. Rogti, M. Ferhat, "Effect of temperature on trap depth formation in multi-layer insulation: Low density polyethylene and fluorinated ethylene propylene", *Applied Physics Letters*, Vol. 104, N° 3, 031605, 2014.
- [38] A. Tzimas, S.M. Rowland, L.A. Dissado, "Effect of electrical and thermal stressing on charge traps in XLPE cable Insulation", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 19, N° 6, pp. 2145-2154, 2012.
- [39] L. Lan, J. Wu, Y. Yin, X. Li, Z. Li, "Effect of temperature on space charge trapping and conduction in cross-linked polyethylene", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 21, N° 4, August 2014.
- [40] B.X. Du, Z.R. Yang, Z.L. Li, J. Li, "Temperature-dependent nonlinear conductivity and carrier mobility of silicone rubber/SiC composites", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 25, N° 3, June 2018.
- [41] X. Jiang, Q. Peng, W. Sima, P. Sun, M. Yang, "Space charge behavior evolution of thermal-aged double-layered polyimide films", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 24, N° 6, December 2017.
- [42] G. Teyssède, C. Laurent, "Charge Transport Modeling in Insulating Polymers: From Molecular to Macroscopic Scale", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation* Vol. 12, N° 5; pp. 857-875; October 2005.
- [43] T.C. Zhou, G. Chen, R.J. Liao, Z.Q. Xu, "Charge trapping and detrapping in polymeric materials: Trapping parameters", *J. Appl. Phys.*, Vol. 110, 043724 (6pp), 2011.
- [44] A. Sharma, J.K. Quamara, "Photoinduced polarization investigations in 75 MeV oxygen ion irradiated kapton-H polyimide", *Thin Solid Films*, Vol. 518, pp. 66-70, 2009.
- [45] F. Yoshida, M. Yoshiura, "Influence of heat-treatment of traps examined by using the thermally stimulated current and the dielectric characteristics of carbon-black-filled polyimide film", in *Proceedings of the IEEE International Conference on Solid Dielectrics*, pp. 381-384, 2013.
- [46] 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 photons-simulated discharge technique", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol. 46, 145502 (6pp), 2013.
- [47] J.W. Zhang, Y.C. Cui, C. Putson, R.T. Liu, C.L. Liu, "Surface charge accumulation effect of polyimide after temperature controlling corona polarization", *IEEE 2016 IEEE International Conference on Dielectrics (ICD) - Montpellier, France*, pp.1151-1154, 2016.

- [48] S. Zelmat, M.L. Locatelli, T. Lebey, S. Diahm, “Investigations on high temperature polyimide potentialities for silicon carbide power device passivation”, *Microelectronic Engineering Journal*, Vol. 83, pp. 51-54, 2006.
- [49] Z. Xia, S. Ma, X. Qiu, Y. Zhang, “Thermal stability of piezoelectricity for porous polytetrafluoroethylene electret film”, *J. Electrostatics.*, Vol. 58, pp. 265-274, 2003.

Chapitre III

Modélisation du déclin de potentiel de surface des films de polyimides pour différentes températures

Chapitre III : Modélisation du déclin de potentiel de surface des films de polyimide pour différentes températures

III.1. Introduction

Au cours des dernières décennies, beaucoup d'efforts ont été consacrés à l'élaboration de nombreux modèles numériques permettant de modéliser le déclin du potentiel de surface des films de polymères soumis à une décharge couronne afin de mieux comprendre les phénomènes physiques de transport et d'accumulation de charges [1-6].

Nous avons vu dans le chapitre précédent (voir [chapitre II](#)) que pour un film de polyimide préalablement chargé par décharge couronne, l'augmentation de la température augmente significativement le taux du déclin de potentiel de surface. L'augmentation est plus prononcée pour les hautes températures. Afin d'estimer les valeurs des paramètres contrôlant la cinétique du déclin de potentiel de surface, nous avons procédé à une modélisation de ce dernier dans le cas de films de polyimide portés à différentes températures.

Dans ce chapitre, nous nous intéressons essentiellement à l'étude des propriétés de transport de charges dans les isolants polymères de type polyimide (PI) préalablement chargé par décharge couronne, à différentes températures et à champ électrique élevé de 48 MV/m, par un modèle bipolaire de transport de charges. Ce modèle incorpore l'injection de trous par le mécanisme de Schottky à l'électrode de masse et la conduction de charges dans des pièges peu profonds. Un électron libre dans la bande de conduction (trou dans la bande de valence) a une mobilité effective qui tient compte du possible piégeage et dépiégeage des charges dans des pièges peu profonds. Les équations de transport (équations de continuité couplées avec l'équation de Poisson) sont résolues numériquement pour simuler l'évolution du déclin de potentiel de surface dans un film de PI. Le piégeage et le dépiégeage de charges ainsi que la recombinaison sont pris en comptes. Les simulations des courbes du déclin de potentiel de surface sont effectuées dans une plage de températures allant de 27 à 80 °C.

Dans un premier temps nous donnerons la description du modèle physique ainsi que les phénomènes dont nous avons tenu compte pour la modélisation du transport de charges. La mise en équation sera abordée dans une deuxième partie. Le système d'équations obtenu est composé d'équations aux dérivées partielles. Dans la troisième partie, la résolution numérique des équations sera détaillée pour une géométrie unidimensionnel 1D. La dernière partie présentera les résultats de la simulation sur les propriétés de transport de charges obtenus à

différentes températures. La validation du modèle élaboré est examinée en comparant les résultats simulés du déclin de potentiel de surface aux résultats expérimentaux.

III.2. Modélisation

La description physique du transport de charges dans les matériaux isolants polymères est difficile à réaliser, à cause de la complexité de la nature des matériaux concernés. Les polymères ont en effet des propriétés physiques complexes (régions amorphes et cristallines à l'échelle microscopique, conformation de la chaîne à l'échelle nanométrique) et chimiques (ramifications, défauts de la chaîne, résidus, additifs, sous-produits, etc.), ainsi que la présence d'une charge d'espace. Cette dernière est un facteur majeur dans le comportement diélectrique des isolants et des défauts de structure dus à la présence d'impuretés dans la bande interdite [2]. Donc, afin de modéliser le transport de charges dans les matériaux isolants polymères, il faut avoir accès à un certain nombre de paramètres intrinsèques du matériau, tels que la densité totale de pièges, leur distribution dans la bande interdite, mais aussi à des paramètres relatifs aux charges : la mobilité, le taux de recombinaison, le coefficient de piégeage, etc.

Plusieurs travaux ont été focalisés sur le développement des modèles de transport de charges dans les matériaux solides, mais leurs approches diffèrent les unes des autres. Le développement numérique d'un modèle consiste d'abord à définir les hypothèses physiques mises en jeu dans la modélisation. Ensuite, la deuxième phase est la mise en équation des hypothèses faites et la résolution numérique de ces équations. Enfin, des résultats expérimentaux sont nécessaires pour les comparer avec des résultats théoriques, tels que la mesure du déclin du potentiel de surface ou la mesure du courant.

III.2.1. Modèle bipolaire

Dans les dernières décennies, de nouvelles techniques permettant d'extraire des informations de base sur la charge d'espace dans un matériau isolant, ont émergé, telles que les techniques de mesures de charges d'espace : PEA (Pulsed Electro Acoustic) [7] et PPS (Piezoelectrically generated Pressure Step) [8]. En combinant ces techniques de charges d'espace avec différentes spectroscopies complémentaires telles que les mesures d'électroluminescence [1], d'autres informations ont été obtenues sur les processus de recombinaison. Ces informations soutiennent ou confirment la théorie de l'injection de charges bipolaire. Chen et *al* ont mesuré l'évolution dans le temps du potentiel de surface et les distributions de charges d'espace par la méthode PEA sur des films de polyéthylène basse densité (LDPE) chargés par décharge couronne pour différentes épaisseurs [9, 10]. Ces

mesures montrent qu'une injection de charges bipolaire a eu lieu. Les potentiels de surface calculés à partir des distributions de charges d'espace sont en bon accord avec ceux mesurés par la sonde électrostatique de potentiel sans contact. Le phénomène d'injection de charges bipolaire a également été observé sur des films de polypropylène (PP) chargés par décharge couronne [11] et LDPE irradié par des faisceaux d'électrons [12]. Les courbes du déclin de potentiel de surface peuvent présenter un phénomène de cross-over (croisement des courbes). Sur la base des résultats de la mesure de charge d'espace PEA, Chen a proposé un modèle bipolaire de transport de charges avec une mobilité des porteurs dépendante du champ selon une loi de puissance pour expliquer ce phénomène [13]. Cependant, le processus de charges dépendant du temps n'a pas été inclus dans le modèle bipolaire de transport de charges. De plus, la loi d'injection Schottky a été utilisée pour décrire l'injection de charges de la couche de charges de surface du matériau dans le volume [13, 14].

Le modèle bipolaire de transport de charges a été largement utilisé pour décrire les caractéristiques courant-tension de l'isolant d'un polymère. Il contient trois composants importants : injection de charges, processus de transport de charges avec piégeage/dépiégeage et recombinaison de charges. Une des premières tentatives de développement d'un modèle bipolaire de transport de charges en relation avec des profils de charges d'espace déterminés expérimentalement a été proposée par Chowdry et al en 1974 [15] et Alison et al en 1994 [16]. D'autres modèles de transport de charges ont été proposés par la suite, prenant en compte d'autres hypothèses pour l'injection et le transport de charges. Le Roy et al [2] présentent un modèle bipolaire de transport de charges dans un LDPE s'appuyant sur le modèle d'Alison et al [16]. Le piégeage et la recombinaison sont pris en compte dans ce modèle. La génération de charges se fait par injection de type Schottky à travers des électrodes. Le transport de charges se fait par la conduction par des porteurs libres avec une mobilité effective constante, tenant compte du possible piégeage et dépiégeage des charges dans des pièges peu profonds. Les résultats obtenus par ce modèle sont comparés à ceux des mesures expérimentales de charges d'espace, de luminescences et de courants.

Dans les années suivantes, divers modèles bipolaires s'appuyant sur les modèles de Alison et al et de Le Roy ont été développés [2, 16]. Chacun d'entre eux a pris en considération des hypothèses particulières, soit pour la génération de charges soit pour le transport de charges, afin d'adapter leurs modèles à l'application visée. Min et al [4], ont adopté un modèle bipolaire de transport de charges pour étudier les propriétés du déclin de potentiel de surface du LDPE en tenant compte du processus de charges dépendant du temps.

Ce modèle considère que les électrons déposés par décharge couronne, sont piégés à la surface air/diélectrique, puis sont "injectés" dans le volume du matériau par effet Poole-Frenkel, alors que les trous sont également injectés dans le volume par injection Schottky à partir de l'électrode de masse. Les électrons et les trous injectés vont migrer dans les matériaux, conduisant au processus du déclin de potentiel de surface. Cette approche intègre le principe d'une mobilité effective qui englobe les phénomènes de transport liés aux pièges peu profonds.

Dans ce travail, nous avons élaboré un modèle qui est basé sur le modèle développé par Le Roy [2]. Ce modèle a été adapté afin de reproduire l'injection et le transport de charges sous champ électrique dans les matériaux de type PI. Les charges négatives (électrons) sont déposées par décharge couronne à la surface libre du PI et les charges positives (trous) sont injectées par effet Schottky à l'électrode de masse. Le transport de charges a été décrit par le mécanisme de saut, i.e ; les charges libres peuvent sauter entre les pièges peu profonds, par une mobilité effective. L'originalité de cette étude vient de son simple objectif de prendre en compte dans le modèle élaboré l'effet de la température sur le transport de charges électroniques. Les résultats du modèle relatifs aux déclins du potentiel de surface pour différentes températures seront comparés aux résultats expérimentaux.

III.2.2. Description du modèle physique

Le transport de charges dans les matériaux isolants pendant et après chargement par décharge couronne peut être décrit par un modèle bipolaire de transport de charges [2]. Nous établissons une coordonnée unidimensionnelle, x , pour l'échantillon, $x = 0$ correspond à la surface chargée du matériau; $x = L$ correspond à l'interface entre l'électrode mise à la terre et le matériau, L est l'épaisseur du matériau. La figure III.1 montre la schématisation du mécanisme de conduction pris en compte dans notre modèle. Le piégeage et dépiégeage et la recombinaison de charges sont pris en compte. Les charges peuvent être libres ou piégées. Comme convenu, un électron libre dans la bande de conduction (trou dans la bande de valence) a une mobilité effective qui tient compte du possible piégeage et dépiégeage des charges dans des pièges peu profonds. Il existe un seul niveau de piégeage profond pour les électrons et un seul niveau de piégeage profond pour les trous, avec une densité maximale de pièges (densités de pièges n_{0et} pour les électrons et n_{0ht} pour les trous). Ces charges piégées peuvent se dépiéger grâce à un mécanisme thermo activé. La recombinaison entre les trous et

les électrons est prise en compte grâce à des coefficients de recombinaison S_0 à S_3 . Après recombinaison, le piège est libéré et le piégeage redevient donc possible.

Avant l'exposition du film à une décharge couronne négative, nous considérerons qu'aucune charge libre ou piégée n'est présente dans le matériau. Le tableau ci-dessous (Tableau III.1) donne les caractéristiques du modèle numérique élaboré pour la simulation du déclin de potentiel de surface pour différentes températures.

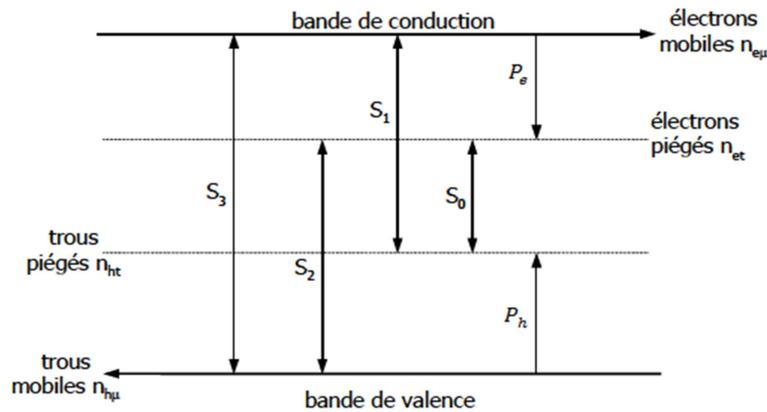


Figure III.1 : Schématisation du mécanisme de conduction ; S_0, S_1, S_2, S_3 sont les coefficients de recombinaison ; $n_{e\mu}, n_{et}, n_{ht}, n_{h\mu}$ sont les densités de porteurs de charges, et P_e, P_h sont les coefficients de piégeage.

Caractéristiques générales	Modèle bipolaire incluant la recombinaison et le piégeage et dépiégeage des porteurs de charges
Type de transport	Electronique (électrons et trous)
Génération de charges	Les charges négatives (électrons) sont déposées par décharge couronne à la surface libre du PI et les charges positives (trous) sont injectées par effet Schottky à l'électrode de masse
Description de la conduction	Mobilité effective dépendante de la température
Description du piégeage	Niveau unique de piégeage profond pour chaque type de charges (électrons et trous), avec dépiégeage
Description de la recombinaison	Recombinaison entre charges de signe opposé, libres et piégées

Tableau III.1 : Caractéristiques du modèle numérique.

III.2.3. Equations du modèle élaboré

La modélisation des phénomènes de transport est basée sur la résolution d'un système d'équations qui sont les équations de continuité couplées à l'équation de Poisson. La variation du comportement des charges est fonction du temps, donc la résolution de ces équations ne se

fait pas seulement en régime stationnaire. En négligeant la diffusion, les équations à résoudre sont les suivantes:

- Equation de Poisson : l'équation de poisson peut être exprimée comme suit :

$$\frac{\partial E(x,t)}{\partial x} = \frac{\rho(x,t)}{\varepsilon} \quad (III.1)$$

où x est la coordonnée dans l'espace, $E(x, t)$ le champ électrique, $\rho(x, t)$ la densité de charges, ε_0 la permittivité du vide et ε_r la permittivité relative du matériau ($\varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_r$).

- Equation de continuité : pour un type de charges, l'équation de continuité peut s'écrire :

$$\frac{\partial n_a(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial j_a(x,t)}{\partial x} = S_a \quad (III.2)$$

où j_a la densité de courant, n_a la densité de charges. En négligeant la diffusion, la densité de courant peut s'écrire de la façon suivante :

$$j_a(x, t) = q \cdot n_a(x, t) \cdot \mu_a \cdot E(x, t) \quad (III.3)$$

où μ_a représente la mobilité de l'espèce considérée.

Le terme S_a représente les termes sources qui traduisent l'apparition et la disparition de charges non liées au transport. Cette variation est due au piégeage et à la recombinaison. Le terme source, pour chaque type d'espèce, s'écrit de la manière suivante [5, 17, 18].

$$S_1 = \frac{\partial n_{e\mu}}{\partial t} = -S_1 n_{ht} n_{e\mu} - S_3 n_{h\mu} n_{e\mu} - P_e n_{e\mu} \left(1 - \frac{n_{et}}{n_{0e}}\right) + B_e n_{et} \quad \text{Electrons libres} \quad (III.4)$$

$$S_2 = \frac{\partial n_{et}}{\partial t} = -S_2 n_{ht} n_{et} - S_0 n_{ht} n_{et} + P_e n_{e\mu} \left(1 - \frac{n_{et}}{n_{0e}}\right) - B_e n_{et} \quad \text{Electrons piégés} \quad (III.5)$$

$$S_3 = \frac{\partial n_{h\mu}}{\partial t} = -S_2 n_{et} n_{h\mu} - S_3 n_{h\mu} n_{e\mu} - P_h n_{h\mu} \left(1 - \frac{n_{ht}}{n_{0h}}\right) + B_h n_{ht} \quad \text{Trous libres} \quad (III.6)$$

$$S_4 = \frac{\partial n_{ht}}{\partial t} = -S_1 n_{ht} n_{e\mu} - S_0 n_{ht} n_{et} - P_h n_{h\mu} \left(1 - \frac{n_{ht}}{n_{0h}}\right) - B_h n_{ht} \quad \text{Trous piégés} \quad (III.7)$$

où S_0, S_1, S_2 et S_3 sont les coefficients de recombinaison ; P_e et P_h sont les coefficients de piégeage respectivement pour les électrons et les trous ; B_e, B_h sont les coefficients de dépiégeage respectivement pour les électrons et les trous ; $n_{e\mu}, n_{et}, n_{h\mu}$ et n_{ht} sont respectivement les densités des électrons libres, des électrons piégés, des trous mobiles et des trous piégés ; n_{0e} et n_{0h} sont les densités de pièges respectivement pour les électrons et les trous.

L'équation III.2 peut être appliquée à toutes les espèces présentes dans le matériau. Or, la densité nette de charges s'écrit :

$$\rho(x, t) = q. [n_{h\mu}(x, t) + n_{ht}(x, t) - n_{e\mu}(x, t) - n_{et}(x, t)] \quad (\text{III.8})$$

L'équation de continuité globale, fonction de la densité nette de charges, est la somme des équations de continuité pour chaque type de charges :

$$\frac{\partial \rho(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial j(x,t)}{\partial x} = 0 \quad (\text{III.9})$$

où j représente la densité du courant de conduction.

III.2.4. Piégeage, dépiégeage et recombinaison de charges

La probabilité de piégeage d'une charge libre dans un piège profond a une corrélation positive avec la mobilité des porteurs et la densité des pièges profonds. Elle est inversement proportionnelle à la permittivité [19] :

$$P_{e,h} = e. N_T. \mu / \epsilon_0. \epsilon_r \quad (\text{III.10})$$

Où N_T est la densité maximale de pièges en m^{-3} .

La probabilité de dépiégeage d'une charge piégée dans un piège profond est déterminée par l'énergie du piège et la température [2, 4] :

$$B_{e,h} = v. \exp\left(-\frac{E_t}{kT}\right) \quad (\text{III.11})$$

où $B_{e,h}$ est la probabilité de dépiégeage en s^{-1} et E_t l'énergie du piège en eV.

Sur la base du modèle de recombinaison de Langevin, le coefficient de recombinaison entre électrons libres et trous libres peut être exprimé par [20] :

$$S_{e\mu,h\mu} = (\mu_e + \mu_h) / \epsilon_0 \epsilon_r \quad (\text{III.12})$$

Selon le modèle de Shockley et al [21], les coefficients de recombinaison assistés par pièges entre électrons libres et trous piégés et celui entre électrons piégés et trous libres peuvent être exprimés respectivement par les équations III.13 et III.14. Les unités de coefficients de recombinaison sont $C.m^{-3}s^{-1}$.

$$S_{e\mu,ht} = \mu_e / \epsilon_0 \epsilon_r \quad (\text{III.13})$$

$$S_{et,h\mu} = \mu_h / \epsilon_0 \epsilon_r \quad (\text{III.14})$$

III.2.5. Equations de l'injection et extraction des charges

Nous décrivons la densité de courant des électrons injectés de la surface dans le volume de l'isolant par le taux de libération de la charge des électrons piégés à la surface

(équation III.15) et le courant injecté de l'électrode de masse dans le volume par l'émission thermo-ionique modifiée de Schottky (équation III.16) [4].

$$j_{se}(0, t) = Q_S(t) \cdot v_{ATE} \cdot \exp\left(-\frac{E_{ST}}{k_B T}\right) \quad (\text{III.15})$$

$$j_{inj}(L, t) = A \cdot T^2 \cdot \exp\left(\frac{-e \cdot w_{hi}}{k_B T}\right) \cdot \left[\exp\left(\frac{e}{k_B T} \sqrt{\frac{e \cdot E(L, t)}{4 \cdot \pi \cdot \epsilon}}\right) - 1 \right] \quad (\text{III.16})$$

où $j_{se}(0, t)$ est la densité du courant des électrons injectés de la surface dans le volume de l'isolant (en $A \cdot m^{-2}$), $j_{inj}(L, t)$ est le courant d'injection thermo-ionique de Schottky (en $A \cdot m^{-2}$), Q_S est la densité de charges surfaciques en ($C \cdot m^{-2}$), E_{ST} est l'énergie du piège de surface en eV, w_{hi} est la barrière d'injection pour les trous, k_B est la constante de Boltzmann, e est la charge électrique, A est la constante de Richardson.

A l'interface électrode-PI il y aura à la fois un effet sur l'injection et sur l'extraction d'électrons du diélectrique. Il n'y a pas de barrières d'extraction pour les porteurs de charges.

La densité de courant d'extraction des électrons à l'électrode de masse est de la forme :

$$j_e(L, t) = n_{e\mu}(L, t) \cdot \mu_e \cdot E(L, t) \quad (\text{III.17})$$

III.2.6. Calcul du courant externe

Le courant induit dans le circuit extérieur par les charges dans l'isolant, s'appuie sur la deuxième équation de Maxwell :

$$\vec{J}_T = j_c + \frac{d\vec{D}}{dt} \quad (\text{III.18})$$

où \vec{J}_T est la densité de courant total, j_c la densité de courant de conduction, et \vec{D} l'induction électrique s'écrivant :

$$\vec{D} = \epsilon \vec{E} \quad (\text{III.19})$$

Nous considérerons que la permittivité est constante quel que soit le temps. L'équation III. 18 s'écrit alors :

$$\vec{J}_T = \vec{j}_c + \epsilon \frac{d\vec{E}}{dt} \quad (\text{III.20})$$

III.3. Méthodes numériques

Dans ce qui suit, nous présenterons successivement les techniques numériques que nous avons utilisées pour la résolution du modèle physique ainsi que l'organigramme général du modèle.

III.3.1. Géométrie et grille de discrétisation

Nous avons considéré une structure unidimensionnelle, fonction de l'épaisseur du diélectrique L . Cette structure est discrétisée uniformément en éléments Δx_i ($\Delta x_i = x_{i+1} - x_i = 0.01 \mu m$). $x(1) = 0$ correspond à la surface chargée du matériau et $x(n) = L$ correspond à l'interface entre l'électrode mise à la terre et le matériau. L'épaisseur du film a été discrétisé en 5000 éléments.

Le pas dans le temps doit d'abord satisfaire le critère de stabilité de Courant-Friedrich-Levy qui s'écrit de manière générale:

$$\Delta t < \frac{\Delta x}{w} \quad (\text{III.21})$$

où Δt est le pas de temps, w la vitesse de dérive, et Δx le pas dans l'espace. Le déplacement d'une charge pendant un temps Δt doit être plus petit que la taille de la cellule Δx . A chaque phénomène ayant lieu dans le matériau (piégeage, dépiégeage, recombinaison) est associé un pas dans le temps (respectivement Δt_p , Δt_r , Δt_d). Le pas dans le temps final est calculé pour être inférieur au plus petit des pas dans le temps calculés précédemment.

III.3.2. Résolution de l'équation de continuité

La sélection des schémas numériques utilisés pour la résolution a été discutée en détail par Le Roy [2]. L'équation de continuité est une équation aux dérivées partielles décrivant la variation spatiale et temporelle de la densité de charges $n(r, t)$ d'une espèce quelconque.

$$\frac{\partial n(\vec{r}, t)}{\partial t} + \frac{\partial j(\vec{r}, t)}{\partial r} = s(\vec{r}, t) \quad (\text{III.22})$$

où $j(\vec{r}, t)$ représente le flux et $s(\vec{r}, t)$ le terme source rendant compte de la création ou de la disparition de charges de l'espèce considérée.

L'équation de continuité est généralement résolue par la méthode de Splitting. Cette méthode consiste à diviser l'équation de continuité en deux équations ou en deux problèmes : convection et réaction [4], qui sont les suivantes :

L'équation de convection :

$$\frac{\partial n(x,t)}{\partial t} + \frac{\partial j(x,t)}{\partial x} = 0 \quad (\text{III.23})$$

L'équation de réaction :

$$\frac{\partial n(x,t)}{\partial t} = s \quad (\text{III.24})$$

La résolution de l'équation de continuité est assez complexe par rapport à l'équation de Poisson. L'équation de convection est résolue en utilisant le schéma décentré d'ordre 3 nommé "QUICKEST" (Quadratic Upstream Interpolation for Convective Kinematics with Estimated Streaming Terms). Nous avons utilisé un limiteur de flux (ULTIMATE) associé au schéma QUICKEST, pour diminuer la variation totale des solutions. Les solutions numériques obtenues pour le schéma QUICKEST+ULTIMATE respectent la convention de positivité et diminuent les oscillations lors des variations brutales des valeurs.

Pour la résolution de l'équation de réaction, nous avons utilisé la méthode de Runge-Kutta du 4^{ème} ordre classique. Cette méthode repose sur le principe d'itération, c'est-à-dire qu'une première estimation de la solution est utilisée pour calculer une seconde estimation, plus précise, et ainsi de suite. La méthode de Splitting, dans laquelle la solution de l'équation de convection-réaction pour un pas de temps Δt a été divisée en deux sous-étapes $\Delta t = \Delta t_1 + \Delta t_2$. Pendant Δt_1 , l'équation de convection (équation III.23) a été résolue en utilisant la méthode QUICKEST+ULTIMATE, associée à la convection de charges ; tandis que pendant Δt_2 , la méthode de Runge-Kutta a été utilisée pour résoudre l'équation de réaction (équation III.24). Le résultat de $n(x, t)$ obtenu à partir de l'équation de convection est utilisé comme valeur initiale pour l'équation de réaction. Les valeurs des densités de charges ainsi calculées correspondent aux valeurs des densités pour le temps $t + \Delta t$, en chaque Δx_i et pour chaque espèce.

III.3.3. Choix de l'algorithme

Les flux numériques j (équation de convection) peuvent avoir des formes différentes selon l'ordre de précision et la méthode d'interpolation. Tous les schémas de résolution numérique de l'équation de convection ont le même contexte. Ils diffèrent dans la façon dont les flux numériques sont évalués. Par la suite nous allons présenter les deux schémas que nous avons testés. La figure III.2 représente la grille de discrétisation unidimensionnelle détaillée que nous avons utilisée dans notre modèle. Les Δx_i sont constants.

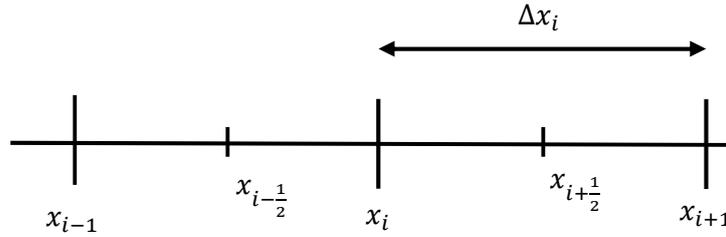


Figure III.2 : Représentation schématique de la discrétisation de l'épaisseur du matériau.

En intégrant l'équation de convection sur la distance de contrôle, en une dimension sur l'intervalle $[x_{i-\frac{1}{2}}, x_{i+\frac{1}{2}}]$, et sur un espace de temps $[t_k, t_{k+1}]$, on obtient alors [2] :

$$[\bar{n}_i(t_{k+1}) - \bar{n}_i(t_k)] \cdot \Delta x_i + \int_{t_k}^{t_{k+1}} j(x_{i+\frac{1}{2}}, t) \cdot dt - \int_{t_k}^{t_{k+1}} j(x_{i-\frac{1}{2}}, t) \cdot dt = 0 \quad (\text{III.25})$$

En adoptant une écriture simplifiée, l'équation III. 25 devient :

$$n_i^{k+1} - n_i^k = -\frac{\Delta t}{\Delta x_i} \left(j_{i+\frac{1}{2}}^k - j_{i-\frac{1}{2}}^k \right) \quad (\text{III.26})$$

L'équation III.26 montre que la valeur de la densité n_i^{k+1} s'obtient à partir des valeurs n_i^k et $j_{i+\frac{1}{2}}^k$. La difficulté principale est de pouvoir déterminer avec précision les valeurs de $j_{i+\frac{1}{2}}^k$, centrées au milieu de l'intervalle $[x_i, x_{i+1}]$.

L'approximation de $j_{i+\frac{1}{2}}^k$ se fait par combinaison linéaire des densités de charges situées de part et d'autre du centre de l'intervalle et les schémas diffèrent par la manière dont cette combinaison est faite et dont les densités de charges sont estimées. La méthode la plus simple pour approximer le flux est de considérer que la densité n_i^k est constante sur l'intervalle $[x_i, x_{i+1}]$. Selon le sens de propagation des porteurs de charges, on peut donc écrire :

$$j_{i+\frac{1}{2}}^k = w_{i+\frac{1}{2}} \cdot n_{i+\frac{1}{2}}^k = w_{i+\frac{1}{2}} \cdot n_i^k \quad \text{pour } w > 0 \quad (\text{III.27})$$

$$\text{et } j_{i+\frac{1}{2}}^k = w_{i+\frac{1}{2}} \cdot n_{i+\frac{1}{2}}^k = w_{i+\frac{1}{2}} \cdot n_{i+1}^k \quad \text{pour } w < 0 \quad (\text{III.28})$$

où $w = \mu_a \cdot E(x, t)$ est la vitesse de dérive (équation III.21).

La structure de ce schéma étant dépendante du sens de déplacement des charges, on lui a donné le nom de "UPWIND" (dans le sens du vent). Dans ces conditions, l'équation III.26 s'écrit :

$$n_i^{k+1} = n_i^k \left(1 - c_{i+\frac{1}{2}} \right) + c_{i+\frac{1}{2}} \cdot n_{i-1}^k \quad \text{pour } w > 0 \quad (\text{III.29})$$

$$\text{et } n_i^{k+1} = n_i^k \left(1 + c_{i+\frac{1}{2}} \right) + c_{i+\frac{1}{2}} \cdot n_{i+1}^k \quad \text{pour } w < 0 \quad (\text{III.30})$$

avec $c_{i+\frac{1}{2}} = w_{i+\frac{1}{2}} \cdot \frac{\Delta t}{\Delta x_i}$ représentant le nombre de courant, qui doit être inférieur à 1 dans le cas d'un schéma explicite. Dans notre cas, les résultats obtenus avec cet algorithme ne sont pas strictement positifs, contrairement à ce qui a été trouvé dans le travail de Le Roy [2].

Pour diminuer l'erreur engendrée sur les résultats (minimiser les oscillations numériques et donc éviter les valeurs négatives de densité de charges), nous avons choisi un schéma numérique décentré d'ordre 3 (nommé QUICKEST), développé par Leonard [22]. Ce schéma est basé sur une interpolation cubique pour les flux instables. L'équation III.28 peut donc être écrite comme suit :

$$n_i^{k+1} = n_i^k - c \left[n_{i+\frac{1}{2}}^k - n_{i-\frac{1}{2}}^k \right] \quad (\text{III.31})$$

avec $n_{i+\frac{1}{2}}^k$ et $n_{i-\frac{1}{2}}^k$ représentant les valeurs des densités sur les faces de l'intervalle $[x_i, x_{i+1}]$:

$$n_{i+\frac{1}{2}}^k = \frac{1}{2} [(n_{i+1} + n_i) - c(n_{i+1} - n_i)] - \frac{(1-c^2)}{3!} \cdot \left\{ \begin{array}{l} \frac{n_{i+2} - n_{i+1} - n_i + n_{i-1}}{2} \\ - \frac{SGN(c)}{2} (n_{i+2} - 3n_{i+1} + 3n_i - n_{i-1}) \end{array} \right. \quad (\text{III.32})$$

avec $SGN(c) = -1$ pour $c < 0$, et $SGN(c) = +1$ pour $c > 0$.

Les solutions obtenues avec la méthode proposée (QUICKEST) ne sont pas totalement exemptes d'oscillations numériques. Nous avons constaté que les oscillations et la diffusion numérique sont plus faibles que pour le schéma UPWIND. Cependant, pour des changements brutaux de la solution exacte, la condition de positivité n'est pas respectée. Donc aucun de ces schémas ne répondent aux critères recherchés pour la résolution de l'équation de convection. Néanmoins, le schéma QUICKEST semble être plus satisfaisant que le schéma UPWIND, car il y a moins d'oscillations, mais il doit être associé par un limiteur de flux "ULTIMATE", afin d'éliminer les valeurs négatives.

III.3.4. Résolution de l'équation de Poisson

La distribution de charges et le potentiel dans l'isolant sont contrôlés par l'équation de Poisson. Il existe plusieurs méthodes pour résoudre l'équation de Poisson : la méthode des éléments finis (FEM) [23], la méthode des éléments de frontière (BEM) et la méthode de différence finie (FDM) [24]. La méthode FDM est très appropriée pour effectuer une discrétisation spatiale dans une forme différentielle. En résolvant une équation matricielle, nous obtenons le potentiel, à chaque point de la grille. Ensuite, nous pouvons calculer le

champ électrique au centre de chaque cellule, $[x_i, x_{i+1}]$, par l'équation III.1. Cependant, on ne peut pas obtenir les valeurs du champ électrique aux points : $x = 0$ et $x = L$. Par contre, les méthodes BEM et FEM, sont discrétisées spatialement dans des formes intégrales en utilisant l'analyse fonctionnelle. Les avantages des méthodes BEM et FEM sont de pouvoir calculer simultanément le potentiel et le champ électrique dans le matériau isolant et d'obtenir le champ électrique en tout point de la grille de discrétisation, notamment sur l'interface électrode de masse-isolant. Ceci est d'autant plus intéressant parce que la loi d'injection utilisée dans nos calculs dépend de ce champ électrique. Pour cette raison, nous avons adopté la méthode BEM dans notre travail pour atteindre une grande précision.

La méthode des éléments de frontière BEM repose sur le principe de simplification de l'équation différentielle en un jeu d'intégrales, sans faire d'approximations. En une dimension, le problème peut être posé de la façon suivante : sur l'épaisseur du matériau limitée par deux points, Q et R , d'abscisses respectives 0 et L , une source de charges d'intensité Ψ est appliquée en un point ξ de l'intervalle $[0, L]$, et on ajoute un troisième point P d'abscisse x (figure III.3).

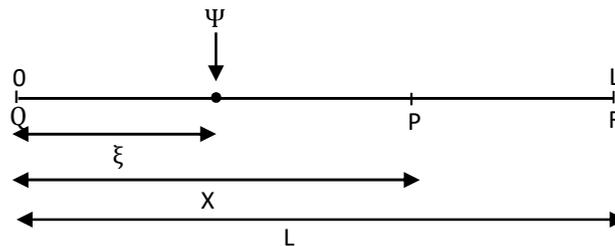


Figure III.3 : Représentation schématique de la problématique des éléments de frontière.

L'équation différentielle générale de Poisson peut être écrite de la manière suivante :

$$\frac{\partial^2 V(x)}{\partial x^2} + \frac{\rho(x)}{\epsilon_D} = 0 \tag{III.33}$$

où $V(x)$ est le potentiel inconnu sur chaque élément $\Delta(x)$ et ϵ_D représente la permittivité du matériau.

Afin de résoudre l'équation différentielle de Poisson, il nous faut introduire la fonction de Green G , solution de l'équation précédente :

$$\frac{\partial^2 G(x,\xi)}{\partial x^2} + \delta(x, \xi) = 0 \tag{III.34}$$

où δ est la fonction de Dirac. L'avantage de la fonction de Dirac est qu'elle est égale à 0 en chaque point de l'intervalle excepté à proximité de l'abscisse ξ (figure III.3). L'interprétation

physique de cette équation mathématique est l'application d'une source unique de charges Ψ en un point ξ de l'intervalle, la source étant nulle pour tous les autres points.

III.3.5. Organigramme général du modèle

Le déroulement du programme est donné dans l'organigramme de la [figure III.4](#). Dans un premier temps, nous introduisons les valeurs initiales des paramètres utilisés (constantes, variables d'espace, potentiel de surface initial, densités initiales, coefficients de piégeage, dépiégeage et de recombinaison). Nous choisissons ensuite la grille de discrétisation et nous calculons la densité nette de charges par addition des densités des différentes espèces de charges (la charge initiale est supposée nulle). Le champ électrique et le potentiel sont calculés en tout point du matériau, à l'aide des densités des différentes espèces présentes, et par la méthode des éléments de frontière (BEM). Connaissant le champ électrique, les paramètres de transport liés à la mobilité et à la vitesse de dérive sont ensuite calculés en tout point du matériau. Dans notre cas, la mobilité est dépendante de la température. Le pas dans le temps Δt est déterminé à chaque itération de simulation, en tenant compte du critère CFL et de l'opérateur temps pour chaque phénomène ayant lieu dans le matériau (piégeage, dépiégeage, recombinaison). Le module de transport consiste à la résolution de l'équation de continuité par Splitting. Ce module permet d'obtenir la densité de chaque espèce de charges, libres ou piégées, pour le pas dans le temps suivant, en tenant compte de la recombinaison, du piégeage et du dépiégeage.

Les résultats de simulation de l'évolution du potentiel de surface en fonction du temps pour différentes températures seront comparés aux mesures expérimentales. D'autres résultats fonction du temps et/ou de l'épaisseur du diélectrique sont disponibles, mais elles ne sont pas directement comparables à des mesures expérimentales, afin de permettre une meilleure compréhension des mécanismes qui ont lieu dans l'échantillon.

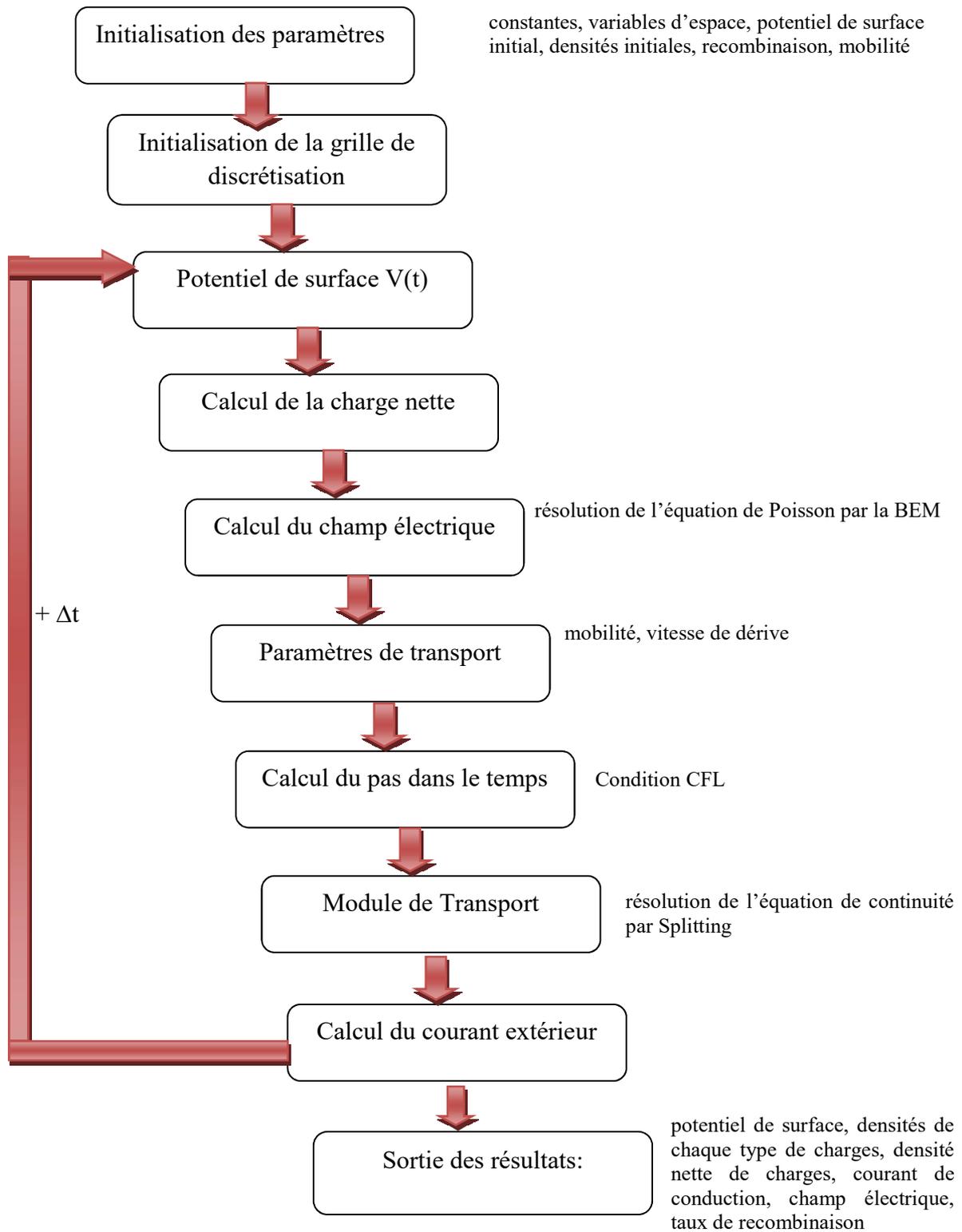


Figure III.4 : Organigramme général du modèle.

III.4. Résultats de la simulation

III.4.1. Analyse de la sensibilité des paramètres du modèle

Dans cette partie, nous nous intéressons à l'analyse complète de la sensibilité de certains paramètres sur les résultats du modèle. Il est utile de connaître l'influence de chaque paramètre sur les allures et les valeurs numériques obtenues, spécialement quand celui-ci est difficilement accessible expérimentalement. Donc, le but est de connaître exactement la nature des variations causées par le changement d'un paramètre, afin d'adapter les paramètres pour obtenir un bon accord entre les résultats de simulation et ceux expérimentaux. Les valeurs initiales des paramètres utilisés sont données dans le [Tableau III.2](#). Ces valeurs sont extraites de la littérature [2, 25]. Tous les paramètres sont conservés constants dans l'analyse de la sensibilité, afin de bien voir l'impact de ce paramètre sur les résultats simulés.

Paramètres	Valeurs
Coefficients de piégeage (s^{-1}) P _e électrons P _h trous	Variable
Coefficients de recombinaison ($m^3/C.s$) S ₀ électrons piégés/trous piégés S ₁ électrons libres/trous piégés S ₂ électrons piégés/trous libres S ₃ électrons libres/trous libres	4. 10 ⁻³ 4. 10 ⁻³ 4. 10 ⁻³ 0
Mobilité ($m^2/V.s$) Electrons Trous	Variable
Densité maximale de pièges ($C.m^{-3}$) à électrons à trous	208 208
Hauteur de barrière pour l'injection de Schottky (eV) Electrons Trous	1.13-1.15 1.13-1.15
Hauteur de barrière pour le dépiégeage (eV) w _{tre} Electrons w _{trh} Trous	Variable
Densité initiale de charges (C/m^3) Electrons Trous	0 0

Tableau III.2 : Définition des différents paramètres du modèle ainsi que leurs valeurs initiales [2, 25].

a. Variation de la mobilité

Dans cette partie, nous avons fait varier la mobilité des électrons et des trous pour déterminer son influence sur la variation du déclin de potentiel de surface.

Les valeurs de la mobilité effective extraites de l'étude réalisée par Min et al [25] sont de l'ordre de $7.10^{-16} \text{ m}^2/\text{V.s}$ pour le PI, ce qui justifie le choix de la valeur initiale de la mobilité. Nous avons varié la mobilité des électrons et des trous de 1 décade au-dessus de la mobilité initiale de $7.10^{-15} \text{ m}^2/\text{V.s}$, et de 1 décade en dessous de cette même mobilité. La figure III.5 montre l'évolution du déclin de potentiel de surface pour ces trois valeurs de la mobilité, pour les paramètres de simulation donnés dans le Tableau III.2.

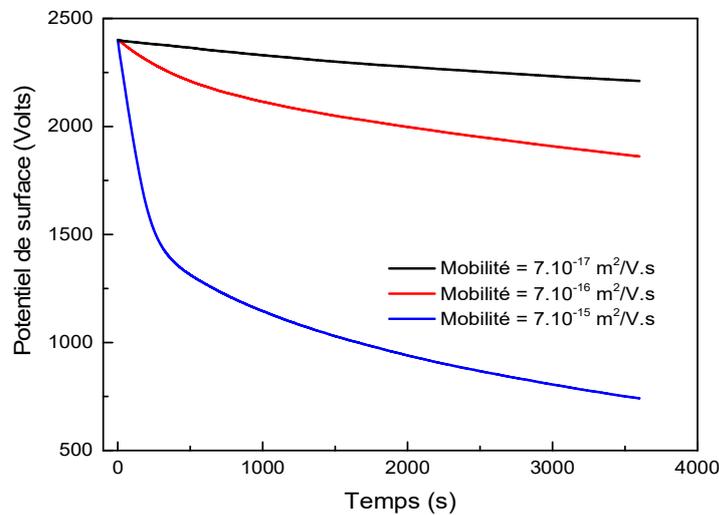


Figure III.5 : Déclin du potentiel de surface pour trois différentes valeurs de la mobilité.

Nous remarquons que le potentiel de surface présente toujours une décroissance en fonction du temps, le taux du déclin de potentiel augmente avec l'augmentation de la mobilité des électrons et des trous. De plus, la variation de la mobilité engendre un changement de l'allure des courbes du déclin de potentiel de surface. Pour des mobilités de 7.10^{-16} et $7.10^{-15} \text{ m}^2/\text{V.s}$, le potentiel de surface décroît linéairement avec le temps. Cette linéarité est observée uniquement pendant le temps de transit t_T . Après ce temps, la courbe du déclin s'incurve. Par contre, pour une faible mobilité de $7.10^{-17} \text{ m}^2/\text{V.s}$, le déclin de potentiel de surface montre une décroissance presque linéaire dans la gamme du temps explorée. Ce changement de caractéristique semble dû à la variation du temps de transit. Le temps de transit t_T est le temps mis par le front montant des charges déposées pour atteindre l'autre face reliée à la masse. Le temps de transit est inversement proportionnel à la mobilité. On voit

donc que si la mobilité augmente, la vitesse de dérive de charges augmente et le temps de transit diminue. L'augmentation de la mobilité engendre une augmentation brutale du déclin de potentiel de surface au début du déclin, cela est attribué à l'augmentation de la densité de charges injectées dans le volume. La variation de la mobilité joue directement sur le déplacement des charges dans le matériau (vitesse de pénétration dans le volume), ce qui implique une variation de la densité des charges (libres et piégés) dans le matériau.

La figure III.6 illustre la variation de la densité de charges (libres et piégés) injectées dans le film de PI en fonction de l'épaisseur du film (les électrons sont déposés par décharge couronne à la surface libre du film et les trous sont injectés par effet Schottky à l'électrode de masse) pour deux différentes valeurs de la mobilité et pour un temps de simulation de 3600 s.

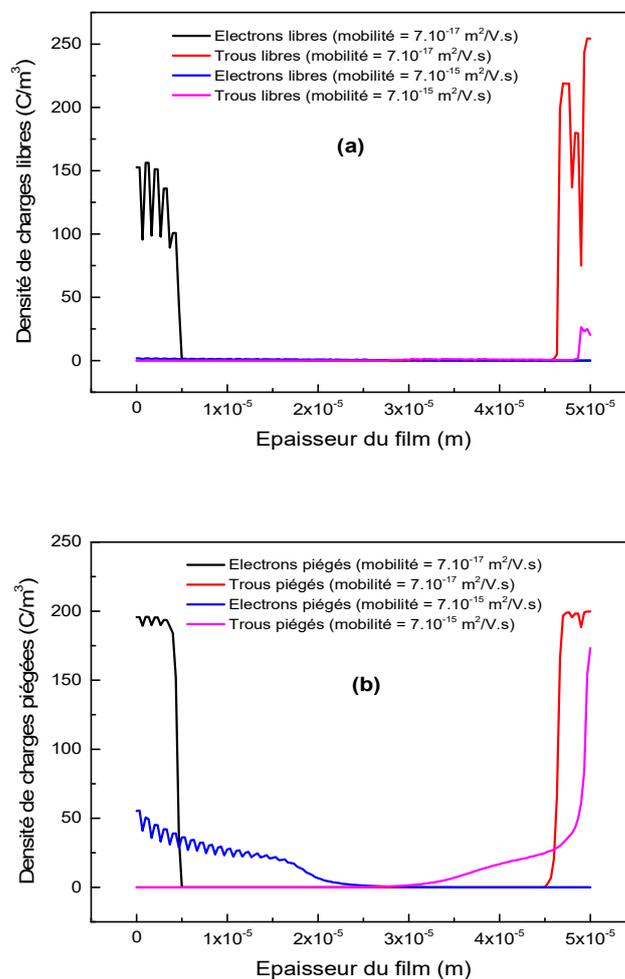


Figure III.6 : Variation de la densité de charges libres (a) et piégées (b) en fonction de l'épaisseur du film pour deux différentes valeurs de la mobilité (t = 3600 s).

Pour une faible valeur de la mobilité (7.10⁻¹⁷ m²/V. s), la pénétration et le déplacement de charges sont relativement lents, ce qui explique la grande valeur de la densité de charges au

voisinage des extrémités du film. Par contre, pour une grande valeur de la mobilité ($7.10^{-15} \text{ m}^2/\text{V.s}$), la densité de charges libres au voisinage des extrémités du film est faible (la densité de charges libres est évacuée du film par recombinaison de charges) (figure III.6.b). Pour la même valeur de la mobilité, nous remarquons que la densité des trous est relativement grande comparée à celle des électrons. Ce résultat peut être interprété par la perturbation du champ électrique, établie par les charges négatives déposées sur la surface libre où on voit sur la figure III.7 une dissymétrie du champ électrique. Or, l'injection de charges est fonction du champ électrique. Les densités de charges injectées dans le volume diminuent dans le temps. Vu que la valeur du champ électrique à l'électrode de masse est supérieure à celle à la surface libre, la densité des trous injectés sera grande. Dans la figure. III.6.b, on voit que la densité de charges piégées est diminuée avec l'augmentation de la mobilité. Cette diminution est attribuée à l'augmentation de la probabilité de dépiégeages de charges avec l'augmentation de la mobilité. En effet, l'augmentation de la mobilité, augmente la densité de charges accélérées vers le volume, ainsi que la densité de charges dépiégées.

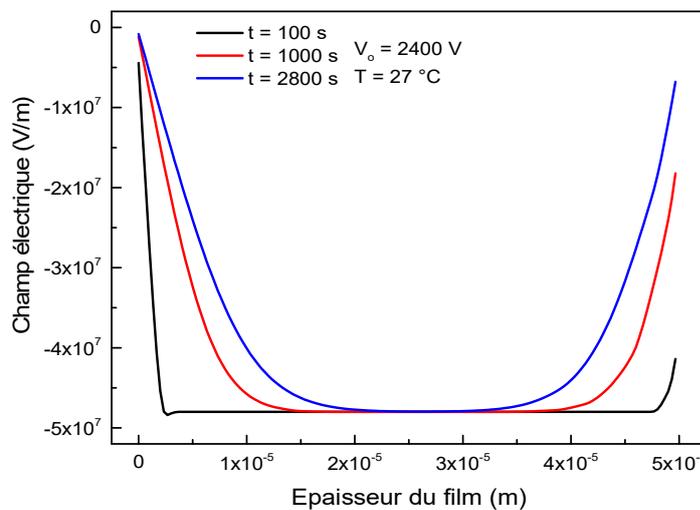


Figure III.7 : Distribution spatiale du champ électrique au cours du temps.

La figure III.8 représente la densité nette de charges en fonction de l'épaisseur du film pour un temps de simulation de 3600 s. Il est bien clair que l'augmentation de la mobilité induit une réduction de la densité nette de charges. Plus on augmente la mobilité, plus la vitesse de dérive de charges est grande et le temps de transit est faible (les charges parcourent une grande distance en un peu de temps) : le temps de transit des porteurs de charges est de l'ordre de 3 minutes (177 s) pour la mobilité la plus grande ($7.10^{-15} \text{ m}^2/\text{V.s}$), alors qu'il est

de plus de 5 heures (17730 s) pour la mobilité la plus faible ($7.10^{-17} \text{ m}^2/\text{V.s}$). Lorsque la mobilité est faible, les charges s'accumulent aux extrémités du film, et l'injection de charges est alors fortement diminuée.

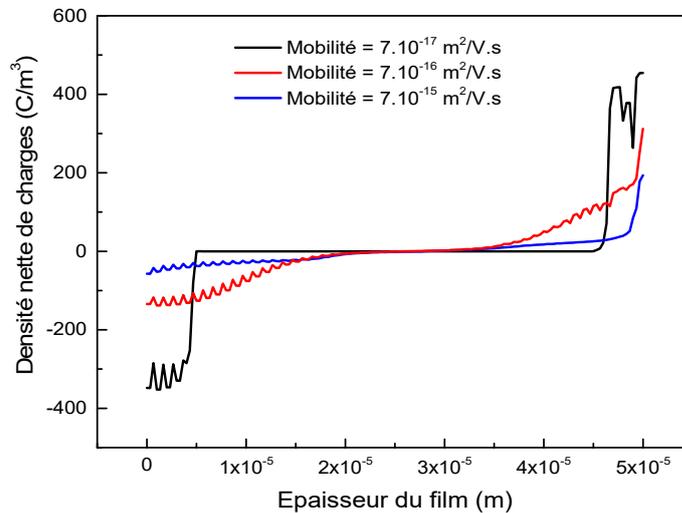


Figure III.8 : Variation de la densité nette de charges en fonction de l'épaisseur du film pour trois valeurs de la mobilité ($t = 3600 \text{ s}$).

La [figure III.9](#) représente l'évolution du taux de recombinaison total en fonction du temps pour trois valeurs de la mobilité. Nous constatons que le taux de recombinaison est nul, pour une valeur de la mobilité de $7.10^{-17} \text{ m}^2/\text{V.s}$, où les charges libres de signe opposé n'ont pas encore atteint le milieu du matériau, donc il n'y a pas de zone dans le matériau où les charges positives et négatives coexistent [2]. Pour une valeur de la mobilité de $7.10^{-16} \text{ m}^2/\text{V.s}$, le taux de recombinaison augmente jusqu'à atteindre la stabilisation après l'instant où les charges se rencontrent (au milieu du diélectrique). Ce n'est pas le cas pour des valeurs de mobilités plus fortes, où on peut observer un maximum de recombinaison à l'instant où les charges se rencontrent, puis une diminution dans le temps. Il est important de noter que le temps auquel les charges se rencontrent au milieu du film est diminué avec l'augmentation de la valeur de la mobilité, il est respectivement de l'ordre de 90 et 1030 s pour des mobilités de 7.10^{-15} et $7.10^{-16} \text{ m}^2/\text{V.s}$. Ce temps est le temps nécessaire pour qu'une charge atteigne le milieu du film. L'augmentation de la mobilité entraîne une augmentation du courant de décharge ([figure III.10](#)), et accélère l'établissement d'un régime quasi-stationnaire. Ce régime est atteint en quelques secondes pour une mobilité de $7.10^{-17} \text{ m}^2/\text{V.s}$, alors qu'il existe encore un régime transitoire à la fin de la simulation pour les plus fortes valeurs de mobilités (7.10^{-15} et $7.10^{-16} \text{ m}^2/\text{V.s}$). La diminution du courant (régime transitoire) semble due à la diminution de la densité de charges par recombinaison.

En effet, pour les deux plus fortes valeurs de la mobilité, le régime transitoire du courant coïncide avec le temps de l'arrivée des charges au milieu du film où elles se recombinaient. Ce n'est pourtant pas le cas pour la valeur de la mobilité de $7.10^{-17} \text{ m}^2.V^{-1}.s^{-1}$, le taux de recombinaison est nul, ce qui explique l'absence du régime transitoire.

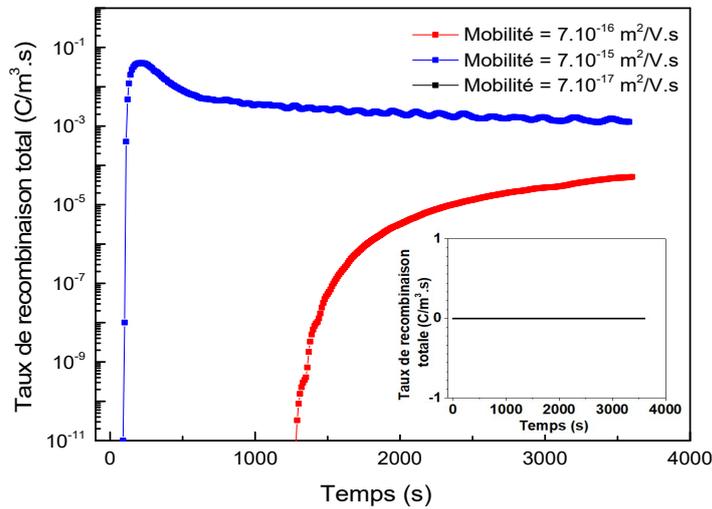


Figure III.9 : Variation du taux de recombinaison total en fonction du temps pour trois valeurs de la mobilité (dans l'encadré est représenté la courbe relative à une valeur de mobilité de $7.10^{-17} \text{ m}^2.V^{-1}.s^{-1}$).

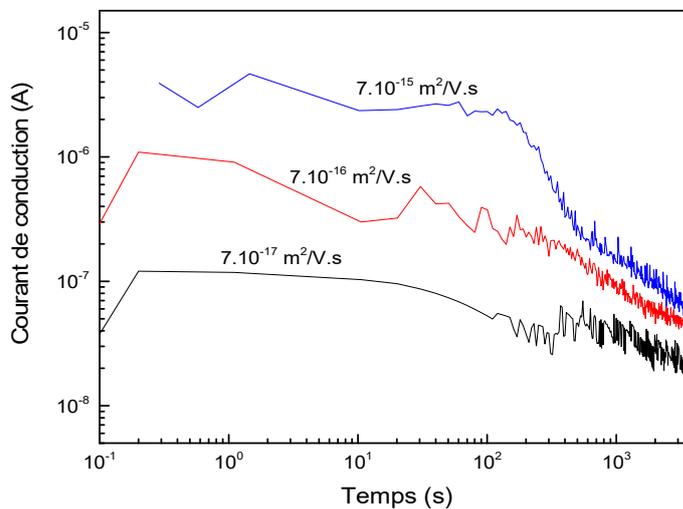


Figure III.10 : Variation du courant de conduction en fonction du temps pour trois valeurs de la mobilité.

b. Variation du coefficient de piégeage

Dans cette partie, nous avons fait varier le coefficient de piégeage pour une meilleure compréhension de son influence sur les résultats que nous avons obtenus grâce à notre modèle

de simulation du déclin de potentiel. Les valeurs initiales du coefficient de piégeage que nous avons utilisées sont tirées de la littérature [25]. La figure III.11 montre l'évolution du déclin de potentiel de surface pour trois coefficients de piégeage des charges (électrons, trous). Contrairement au cas de l'effet de la mobilité, la variation du coefficient de piégeage affecte grandement les résultats de simulation du déclin de potentiel de surface, principalement pour les temps longs ($t > t_T$). Le taux du déclin de potentiel diminue avec l'augmentation de la valeur du coefficient de piégeage. En effet, l'augmentation du coefficient de piégeage induit une augmentation de la densité de charges piégées, en particulier au voisinage des extrémités du film (figure III.12), et réduit le champ électrique. L'injection de charges est alors diminuée, puisqu'elle est fonction du champ électrique (le champ électrique associé aux charges piégées n'est pas suffisant pour libérer ces charges) et par conséquent le taux du déclin de potentiel diminue.

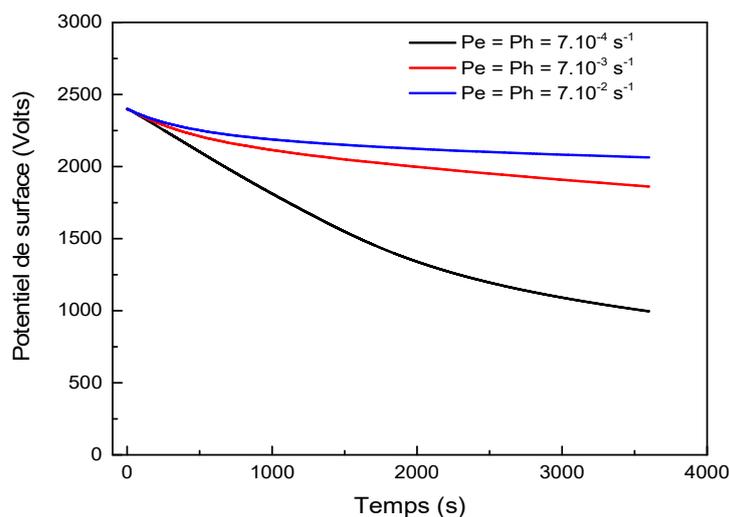


Figure III.11 : Variation du déclin de potentiel de surface pour trois valeurs de coefficient de piégeage.

L'augmentation du coefficient de piégeage joue aussi un rôle important sur le taux de recombinaison total (figure III.13). Comme le montre la figure III.13, pour une valeur du coefficient de piégeage ($7 \cdot 10^{-2} s^{-1}$), le taux de recombinaison total est quasiment nul. Le nombre de charges libres qui traversent le film de PI est très faible, la majorité des charges reste bloquée au voisinage des extrémités du film, et une faible quantité de charges a la possibilité de se recombiner [2]. Par contre, la diminution du coefficient de piégeage ($Pe = Ph = 7 \cdot 10^{-4} s^{-1}$) induit une augmentation du taux maximum de recombinaison, avant de le diminuer pour atteindre un état quasi stable. Nous remarquons que pour les deux valeurs du coefficient de piégeage de $7 \cdot 10^{-3}$ et $7 \cdot 10^{-4} s^{-1}$, le temps d'arrivée de charges au milieu

du film est le même, donc l'augmentation du coefficient de piégeage n'influe pas sur la vitesse de dérive de charges dans le matériau. En effet, lorsque les électrons et les trous se rencontrent au milieu du film, le taux de recombinaison montre un pic, puis il décroît. Pour un coefficient de $7 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, la densité de charges piégées est relativement faible (figure III.12), donc les charges libres vont dériver plus vers l'autre extrémité et se recombineront avec les charges piégées.

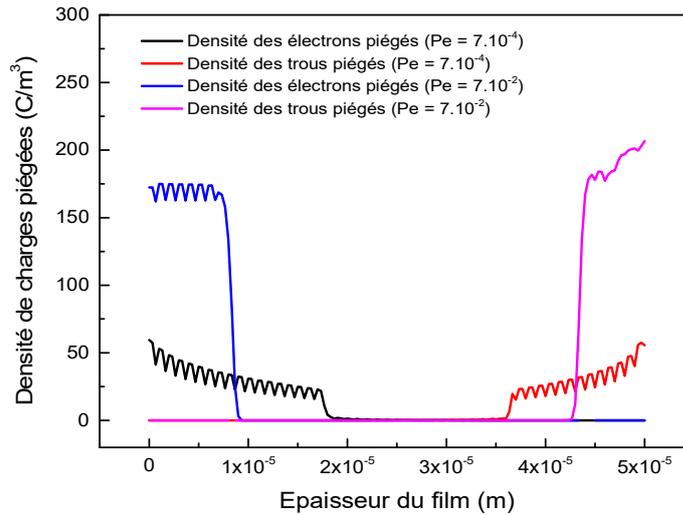


Figure III.12 : Densité de charges piégées en fonction de l'épaisseur du film pour deux valeurs du coefficient de piégeage.

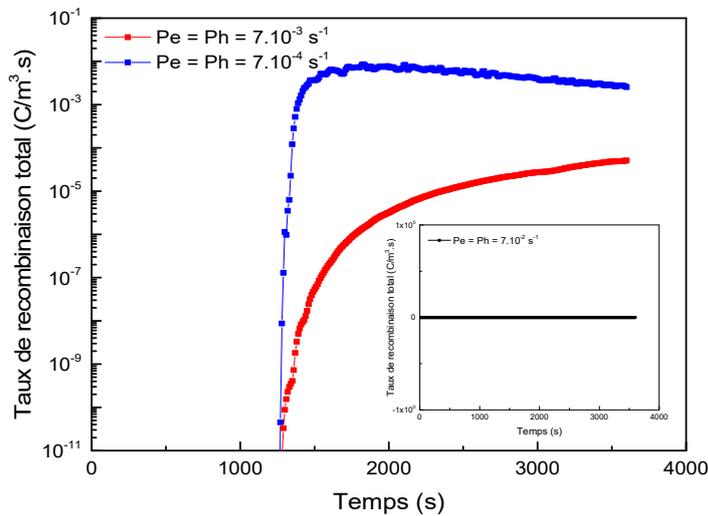


Figure III.13 : Taux de recombinaison en fonction du temps pour trois valeurs du coefficient de piégeage.

c. Variation du coefficient de dépiégeage

Le coefficient de dépiégeage est principalement lié à la barrière de dépiégeage correspondant au niveau d'énergie de pièges profonds. La [figure III.14](#), montre l'évolution du déclin de potentiel de surface pour trois valeurs de la barrière de dépiégeage des charges (électrons, trous). Ces valeurs sont tirées de la littérature [25]. Nous remarquons clairement que la variation de la barrière d'injection affecte grandement le déclin de potentiel de surface. En effet, la diminution de la barrière de dépiégeage augmente la densité de charges dépiégées ([figure III.15](#)), ce qui justifie l'augmentation du déclin de potentiel de surface. Pour des valeurs de barrière relativement grandes, la faible décroissance du potentiel de surface est observée et la majorité de charges reste piégées et ne peuvent pas se déplacer.

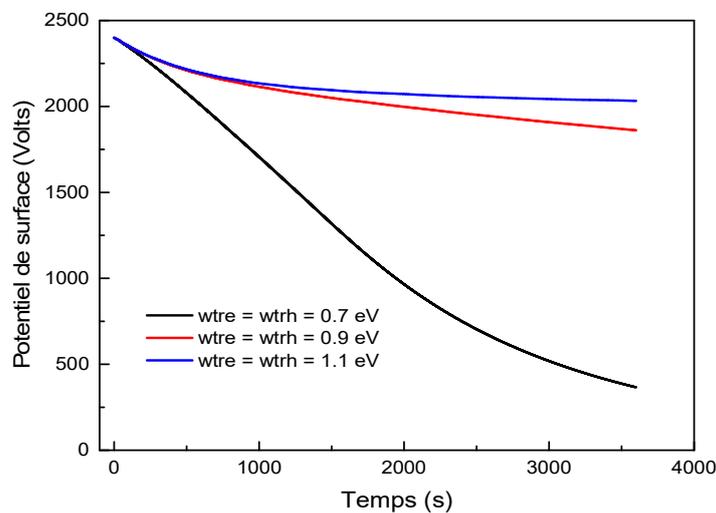


Figure III.14 : Variation du déclin de potentiel de surface pour trois valeurs de la hauteur de la barrière de dépiégeage.

En outre, l'augmentation de la barrière de dépiégeage diminue le taux maximum de recombinaison. Comme le montre la [figure III.16](#), pour les trois valeurs de la barrière de dépiégeage, le taux de recombinaison augmente brutalement en même temps (~ 1300 s), ensuite il atteint un état d'équilibre. L'augmentation du coefficient de dépiégeage n'influe pas sur la vitesse de dérive de charges dans le matériau. Pour une haute barrière de dépiégeage de 1.1 eV, le nombre de charges libres traversant le film est très faible, la majorité des charges reste piégée au voisinage des extrémités du film ($x = 0$, $x = d$), et une petite quantité de charges libres a la possibilité de se recombiner. Par conséquent, le taux de recombinaison est traduit majoritairement par la recombinaison des électrons piégés/trous piégés. Par contre, pour une basse barrière de dépiégeage de 0.7 eV, le nombre de charges libres traversant le film est grand, un équilibre entre charges piégées et charges libres semble atteint [2].

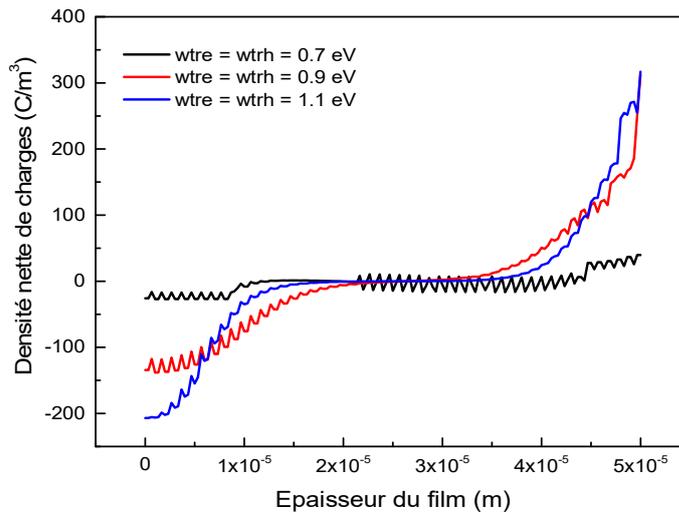


Figure III.15 : Variation de la densité nette de charges en fonction de l'épaisseur du film, pour trois valeurs de la hauteur de la barrière de dépiégeage.

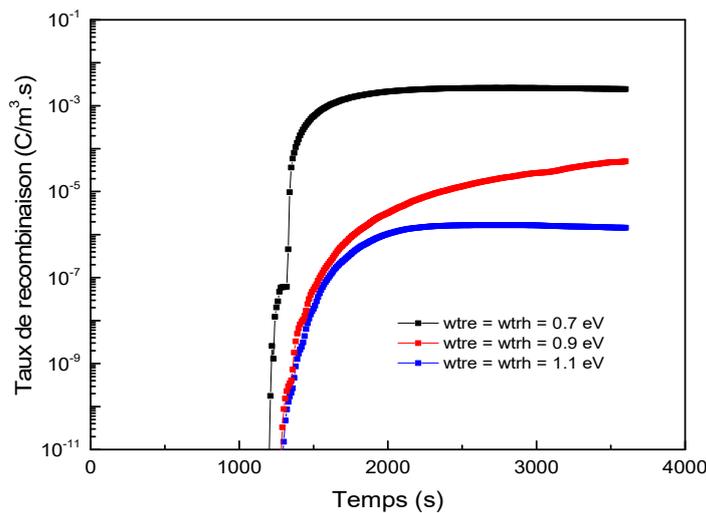


Figure III.16 : Variation du taux de recombinaison en fonction du temps, pour trois valeurs de la hauteur de la barrière de dépiégeage.

d. Discussion

Les paramètres physiques ont une influence différente sur les résultats de simulation des courbes du déclin de potentiel de surface. Ils ont tous un lien avec la densité de charges injectées dans le matériau et le champ électrique. L'augmentation de la mobilité induit une augmentation de la proportion et de la vitesse de pénétration de charges injectées (le temps de transit est inversement proportionnel à la mobilité de charges). En effet, si la quantité de charges accumulées dans le matériau est grande, le champ électrique crée dans l'épaisseur de l'échantillon sera abaissé. Donc les charges déposées sur la surface pénètrent graduellement à

l'intérieur de l'échantillon par un processus d'injection dépendant du champ. Après l'application d'un champ électrique sur le matériau, certaines de ces charges injectées seront piégées et d'autres se rassembleront au milieu de l'échantillon où elles se recombieront avec les charges opposées. En raison de l'accumulation partielle de charges au voisinage des extrémités du film, un champ électrique interne est créé, ce qui va perturber le champ électrique externe. Il est normal que tous les paramètres liés à ce champ électrique (génération de charges dans le film de PI du fait de l'injection Schottky à l'électrode de masse et les charges déposées à la surface libre du film par décharge couronne), jouent un rôle important dans les résultats de simulation.

Les coefficients de piégeage et de dépiégeage influencent grandement sur les résultats du modèle, car ils peuvent influencer directement sur la densité de charges dans le matériau. Nous avons constaté que les coefficients de piégeage et de dépiégeage influencent principalement les résultats dans la région du temps long, contrairement à la mobilité. En réalité, les courbes du déclin de potentiel de surface des films de PI sont contrôlées par différents mécanismes (mécanisme de conduction avec une mobilité dépendante du champ électrique et mécanismes de piégeage et dépiégeage de charges [26]). Le processus de conduction est plus dominant pour un temps court (régime transitoire), alors que les processus de piégeage/dépiégeage est principalement prononcé dans la région du temps long (régime stationnaire). La probabilité de piégeage d'une charge libre dans un piège profond a une corrélation positive avec la mobilité des porteurs et la densité des pièges profonds et la probabilité de dépiégeage d'une charge piégée au centre du piège profond est déterminée par le niveau d'énergie du piège [5, 17]. Le processus de recombinaison, qui est localisé essentiellement au milieu du film, est fortement influencé par la variation du temps de transit.

III.4.2. Validation du modèle de simulation à partir de mesures expérimentales du déclin de potentiel de surface

Les paramètres physiques du modèle responsables du comportement du déclin de potentiel de surface sont déterminés en ajustant les résultats numériques afin d'obtenir le meilleur accord avec les résultats expérimentaux. Le [Tableau III.4](#) présente les valeurs optimisées des paramètres du modèle. Dans ce travail, nous considérons cet ensemble de paramètres pour analyser les sorties du modèle pour différentes températures. Les résultats expérimentaux décrits précédemment (voir section II.4 [chapitre II](#)) ont montré que le niveau d'énergie (profondeur d'énergie) des pièges profonds augmente avec la température. De manière générale, les modifications des autres paramètres en fonction de la température sont

relativement faibles. Nous supposons donc que les paramètres autres que la mobilité et les coefficients de piégeage et de dépiégeage des charges sont constants. Il convient de noter que les hauteurs de barrière de dépiégeage à des températures différentes ont été choisies en fonction du niveau d'énergie des pièges révélé par la distribution de la densité de charges piégées des films de PI (voir section II.4 chapitre II). Les coefficients de recombinaison ont été adoptés à partir de ceux rapportés par Le Roy et *al* [2]. Enfin, les coefficients de piégeage ont été affinés pour obtenir le meilleur ajustement des résultats. La permittivité relative communément acceptée $\epsilon_r = 3,4$ a été utilisée pour le PI. Les paramètres sont symétriques pour les deux types de charges : électrons et trous, sauf indication contraire. Dans cette section du chapitre, nous montrons les résultats de simulation ainsi que leurs discussions.

Paramètres	Valeurs			
	27 °C	40 °C	60 °C	80 °C
Coefficients de piégeage (s^{-1})				
Pe électrons	$6.4 \cdot 10^{-3}$	$7.2 \cdot 10^{-3}$	$7.5 \cdot 10^{-3}$	$9 \cdot 10^{-3}$
Ph trous	$6.4 \cdot 10^{-3}$	$7.2 \cdot 10^{-3}$	$7.5 \cdot 10^{-3}$	$9 \cdot 10^{-3}$
Coefficients de recombinaison ($m^3/C.s$)				
S ₀ électrons piégés/trous piégés	$4 \cdot 10^{-3}$			
S ₁ électrons libres/trous piégés	$4 \cdot 10^{-3}$			
S ₂ électrons piégés/trous libres	$4 \cdot 10^{-3}$			
S ₃ électrons libres/trous libres	0			
Mobilité ($m^2/V.s$)				
Electrons	$7 \cdot 10^{-16}$	$1.1 \cdot 10^{-15}$	$1.4 \cdot 10^{-15}$	$2 \cdot 10^{-15}$
Trous	$7 \cdot 10^{-16}$	$1.1 \cdot 10^{-15}$	$1.4 \cdot 10^{-15}$	$2 \cdot 10^{-15}$
Densité maximale de pièges (C/m^3)				
à électrons	208			
à trous	208			
Hauteur des barrières pour l'injection Schottky (eV)				
Electrons	1.13-1.15			
Trous	1.13-1.15			
Hauteur des barrières pour le dépiégeage (eV)				
wtre Electrons	0.97	1.02	1.06	1.1
wtrh Trous	0.97	1.02	1.06	1.1
Densité initiale de charges (C/m^3)				
Electrons	0			
Trous	0			

Tableau III.4 : Valeurs des paramètres du modèle après l'étape d'approche des résultats expérimentaux.

Les courbes du déclin de potentiel de surface expérimentales et simulées, obtenues sur un film de PI de 50 μm d'épaisseur et pour un potentiel initial V_0 de 2400 V ($E_0 = 48 \text{ MV/m}$), sont comparées à la [figure III.17](#). Les courbes du déclin de potentiel de surface prévues par le modèle montrent un bon accord avec celles mesurées pour quatre valeurs de la température, qui sont en fait les seuls résultats expérimentaux accessibles.

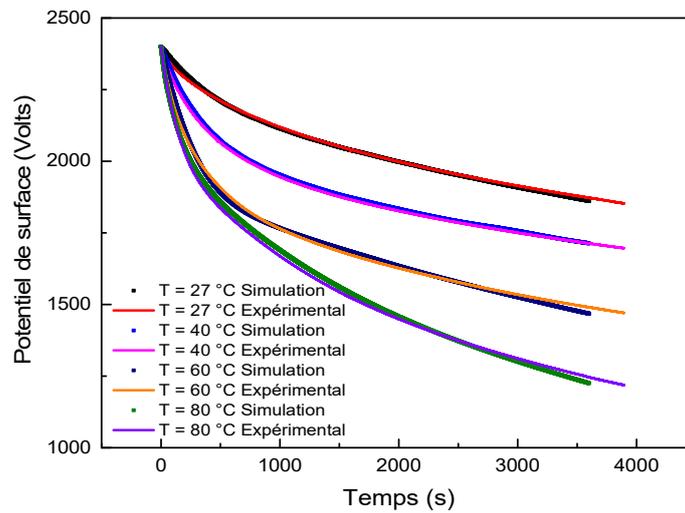


Figure III.17 : Comparaison des courbes du déclin de potentiel de surface expérimentales et simulée pour différentes valeurs de la température.

a. Profils de densité de charges

La [figure III.18](#) montre les profils de densité nette de charges pour différentes températures à deux temps de simulation (500 et 3600 s), sous un potentiel initial de -2400 V.

Tout d'abord à $t = 500 \text{ s}$ ([figure III.18.a](#)), nous remarquons qu'à $T = 27 \text{ °C}$, peu de charges (électrons au niveau de la surface libre (interface air/matériau) et trous à l'interface matériau/électrode de masse) s'injectent dans le film de PI. Les charges injectées sont accumulées dans le film à des distances de l'ordre de $1 \times 10^{-5} \text{ m}$. Lorsque la température est de 40 °C , les charges injectées augmentent et migrent profondément dans le volume de l'échantillon (distances de l'ordre de $2 \times 10^{-5} \text{ m}$). En effet, à faible température, les charges pénètrent légèrement dans le volume de l'échantillon à cause des faibles valeurs de la mobilité des charges. Lorsque la température est d'environ $60\text{-}80 \text{ °C}$, la densité de charges injectées est grande, et les charges atteignent le milieu du matériau en raison de l'augmentation de la mobilité de charges. Quand les charges positives et négatives se rencontrent, elles produisent une zone d'alternance, de sorte qu'elles entraînent le début de la recombinaison des charges ([figure III.18.b](#)). En effet, lorsque la température augmente, les charges vont acquérir une

énergie supplémentaire (énergie thermique) pour surmonter certains pièges peu profonds, et donc participent au processus de conduction. Nous avons également constaté que la répartition des charges est symétrique dans le volume du film pour les différentes valeurs de température.

A $t = 3600$ s (figure III.18.c), la propagation de charges injectées aux extrémités du film augmente rapidement et se rencontrent dans le volume de l'échantillon (formation de la zone d'alternance à hautes et faibles températures). Il est clairement observé que la propagation des charges s'accompagne d'une diminution de la densité de charges. Cette diminution est plus prononcée à haute température. Cependant, la diminution est plus significative pour les trous, ce qui résulte une dissymétrie dans la répartition de charges dans le volume pour les hautes températures.

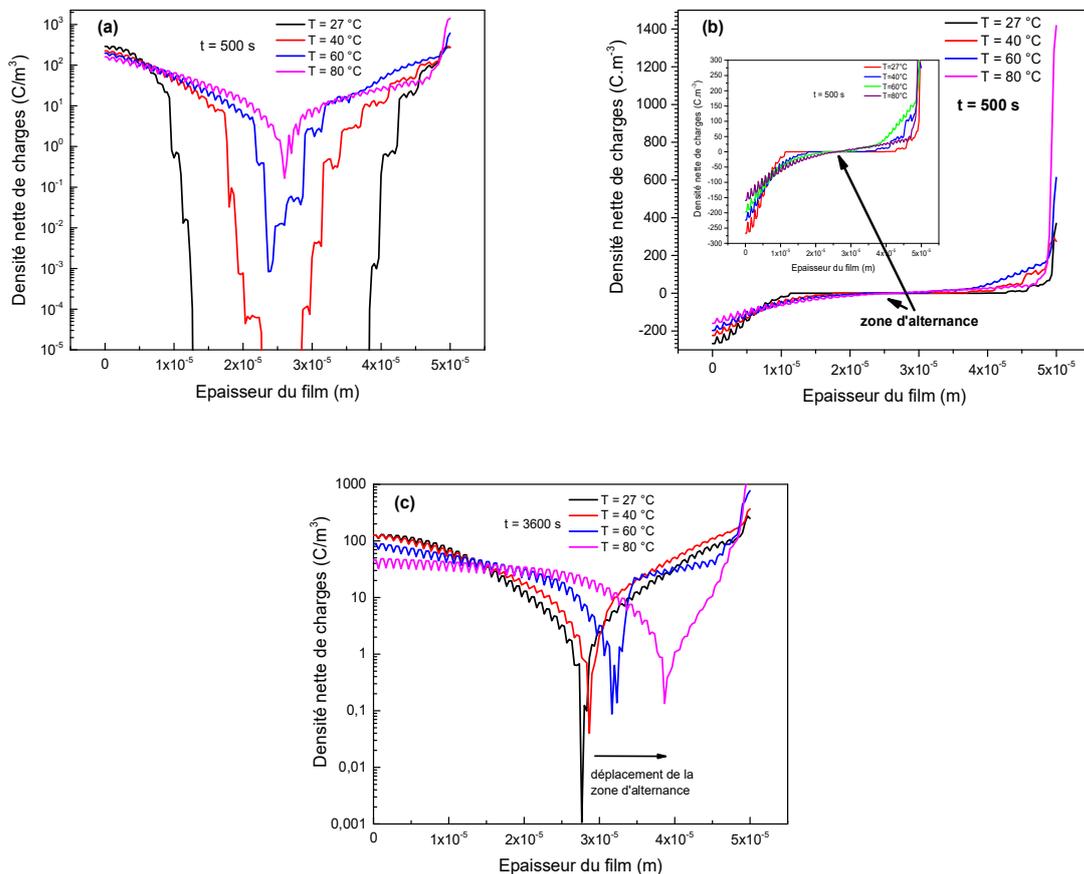


Figure III.18 : Densité nette de charges en fonction du temps pour différentes températures (a) $t = 500$ s (valeurs absolues), (b) $t = 500$ s (échelle linéaire), (c) $t = 3600$ s (valeurs absolues).

Les figures III.19 et III.20, montrent respectivement les profils de la densité d'électrons et de trous libres pour différentes températures à deux temps de simulation ($t = 500$ s et $t = 3600$ s). Nous avons observé l'apparition des paquets de charges au voisinage des

extrémités des films (électrons à $x = 0$ et trous à $x = d$) au début du déclin. L'effet de la température sur la vitesse de propagation de charges injectées (élargissement de la distribution de charges avec la température) a été également remarqué sur ces figures. Lors de cette propagation, nous constatons une légère diminution dans la hauteur des paquets d'électrons, au voisinage de $x = 0$, avec l'augmentation de la température (ce qui confirme l'augmentation de la densité de charges injectées dans le volume). Cela est attribué à l'augmentation de la probabilité de dépiégeage avec la température. De plus, nous avons remarqué qu'à $t = 500$ s, la vitesse de propagation des électrons et des trous libres augmente avec l'augmentation de la température, alors qu'à $t = 3600$ s, on voit que la propagation des trous libres s'est reculé avec la température.

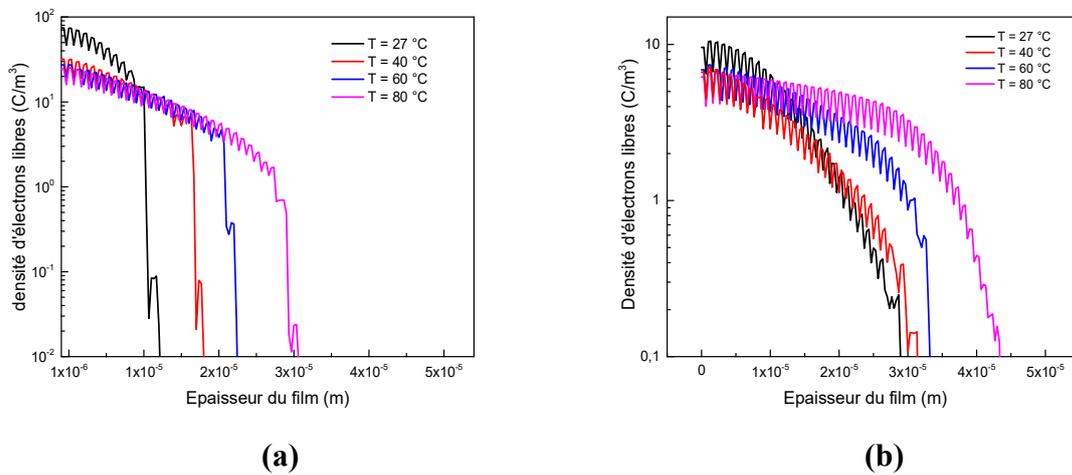


Figure III.19 : Evolution de la densité d'électrons libres en fonction de l'épaisseur du film pour différentes températures, a) à $t = 500$ s et b) à $t = 3600$ s.

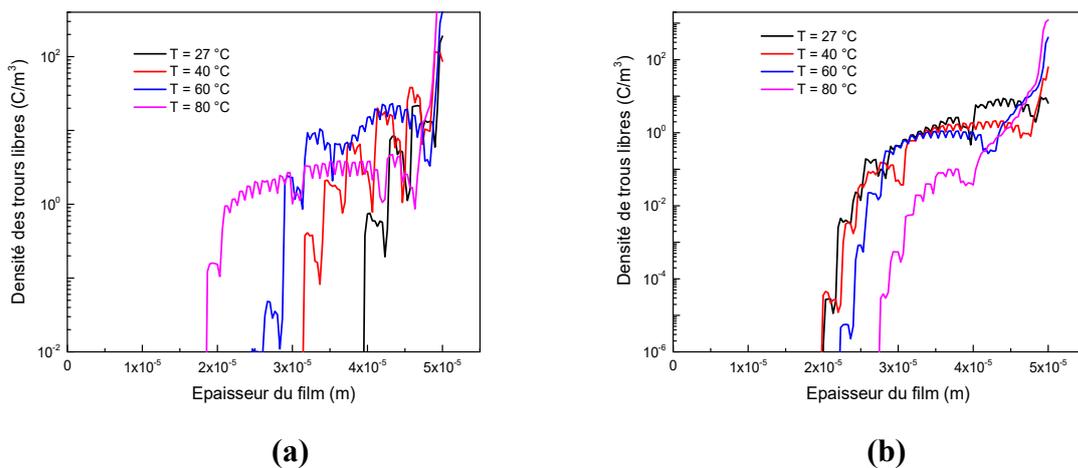


Figure III.20 : Evolution de la densité de trous libres en fonction de l'épaisseur du film pour différentes températures, a) à $t = 500$ s et b) à $t = 3600$ s.

La [figure III.21](#) montre la différence dans la distance de pénétration entre les électrons et les trous pour une faible et une haute température (temps de simulation égale 3600 s). Il est clairement observé que pour $T = 27\text{ °C}$, les trous et les électrons ont la même vitesse de pénétration. Par contre, pour $T = 80\text{ °C}$, nous avons constaté que la distance de pénétration est accentuée par la température pour les électrons alors qu'elle est réduite pour les trous.

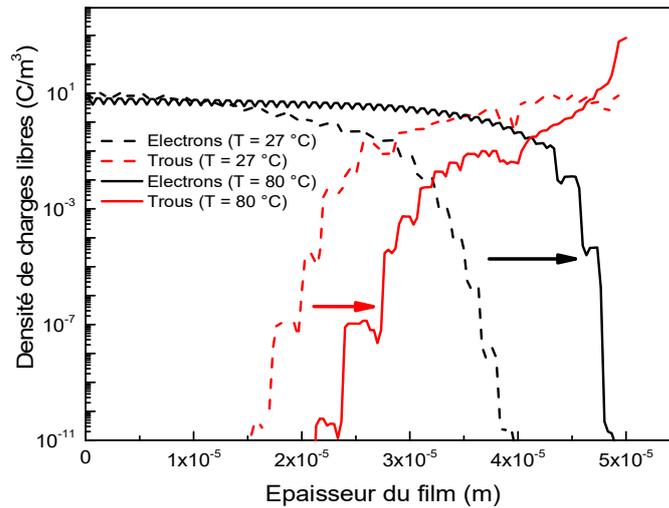


Figure III.21: Evolution de la densité de charges libres en fonction de l'épaisseur du film pour deux différentes températures (27 et 80 °C), à $t = 3600\text{ s}$.

La [figure III.22](#), représente la densité des électrons et des trous piégés pour différentes températures à deux temps de simulation ($t = 500\text{ s}$ et $t = 3600\text{ s}$). Il est clairement montré que la densité d'électrons piégés a diminué avec l'augmentation de la température, tandis que la répartition d'électrons/trous piégés n'était pas symétrique dans le volume du film à $t = 3600\text{ s}$. La diminution de la densité d'électrons piégés est attribuée à l'augmentation de la probabilité de dépiégeage avec la température. En effet, à haute température, lors du transport de charges injectées vers l'autre extrémité du film, leur densité diminue considérablement en raison du processus de piégeage et les charges piégées deviennent fortement dominantes dans le volume de l'échantillon. Par conséquent, la recombinaison de charges sera effectuée par les charges libres et piégées. Comme on peut le voir sur la [figure III.23](#), à $T = 80\text{ °C}$, la probabilité de recombinaison des charges libres est relativement faible comparée à celle des charges piégées : la diminution de la densité des charges libres tout au long de leur trajet et en particulier jusqu'à l'autre extrémité du film est due à la haute densité des charges piégées de signe opposé.

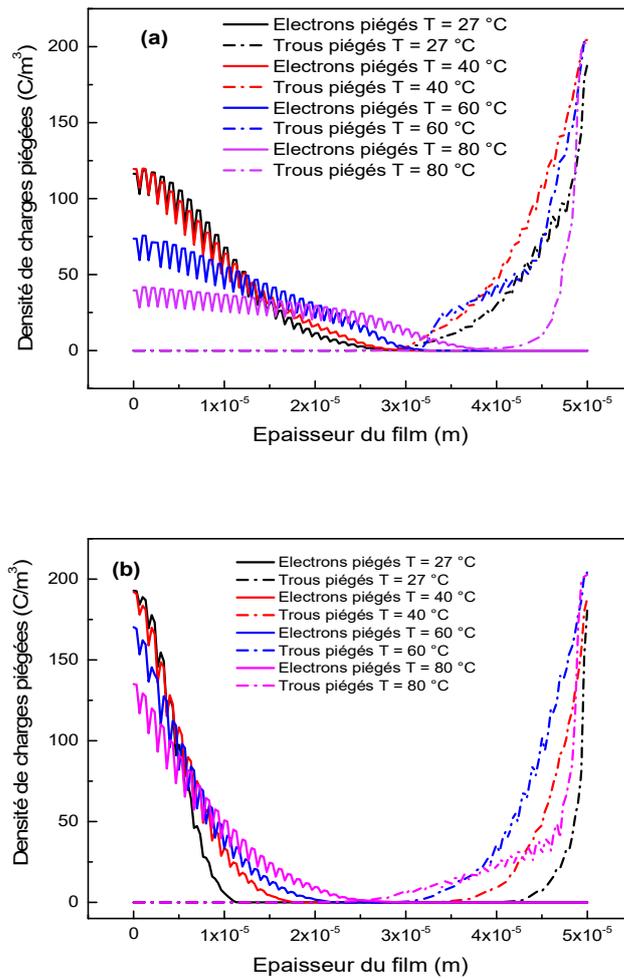


Figure III.22 : Evolution de la densité de charges piégées en fonction de l'épaisseur du film pour différentes valeurs de température, a) à t = 500 s et b) à t = 3600 s.

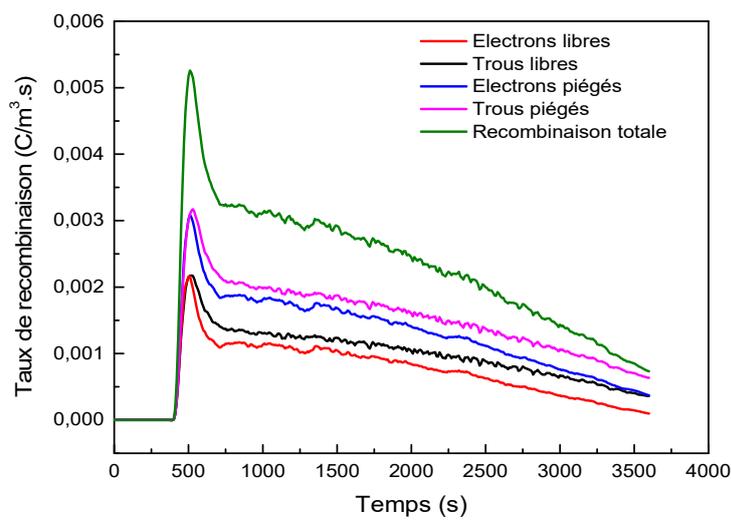


Figure III.23 : Taux de recombinaison total en fonction du temps à T = 80 °C.

Pour mieux comprendre le comportement des trous et des électrons injectés respectivement dans les interfaces matériau/électrode de masse et air/matériau à haute température (80 °C), nous avons reporté sur la [figure III.24](#) pour différents temps de simulation (50, 100, 300, 1500 et 3600 s), la distribution spatiale de la densité des trous libres ([figure III.24.a](#)) et trous piégés ([figure III.24.b](#)) ainsi que celle des électrons libres ([figure III.24.c](#)) et électrons piégés ([figure III.24.d](#)).

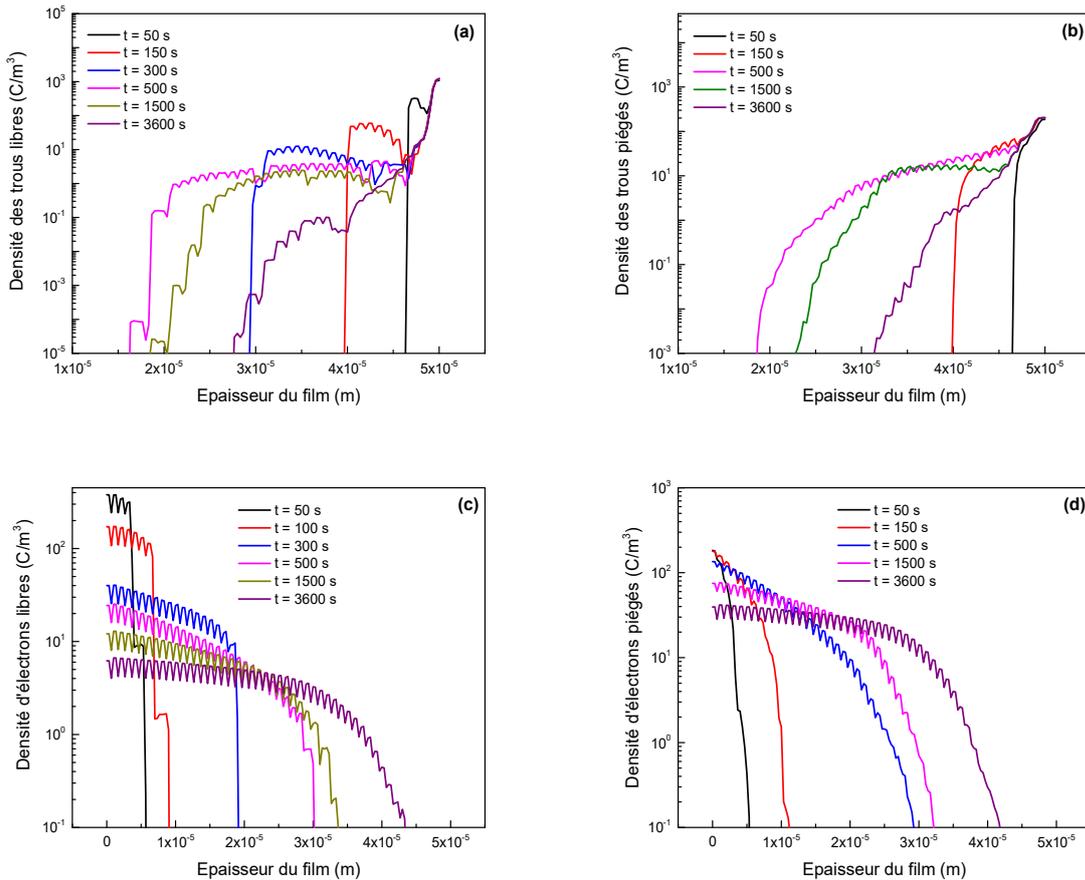


Figure III.24 : Distribution spatiale de la densité de charges pour différents temps de simulation, a) trous libres, b) trous piégés, c) électrons libres, d) électrons piégés.

Les résultats que nous avons obtenus montrent que l’augmentation du temps de déclin induit une diminution du front de charges libres et piégées. Ce dernier se déplace plus profondément dans le volume de l’échantillon. Sauf, pour les trous libres et piégés, où on voit que la largeur de la distribution du front de charges augmente avec l’augmentation du temps jusqu’à ce qu’elle atteigne le milieu de l’échantillon à $t \sim 500$ s, après ce temps, qui correspond au début de la recombinaison de charges, la densité des trous dans le volume du film commence à diminuer contrairement à la densité des électrons. Ceci s'explique par plusieurs raisons : à la différence de densité entre électrons et trous injectés dans le matériau et à la diminution de la mobilité des trous ainsi qu’à l'augmentation de la probabilité du

dépiégeage de charges des pièges profonds. Cependant, étant donné que la mobilité des trous et les coefficients de piégeage et de dépiégeage sont supposés égaux pour les électrons et les trous, donc la différence de densité entre électrons et trous injectés dans le matériau est la raison la plus probable pour expliquer ce résultat. En effet, lorsque les électrons et les trous se rencontrent au milieu du film, le phénomène de recombinaison aura lieu entre les premiers fronts de charges dans un temps d'environ 500s (voir [figure III.23](#)), ce qui va accentuer la diminution de la densité de charges. Comme la densité des électrons injectés est supérieure à celle des trous, un écart entre les deux sera établi.

b. Flux d'injection

La dynamique de l'accumulation de charges positives est contrôlée par l'injection de charges (injection Schottky à l'interface matériau/électrode de masse). L'injection de trous à l'électrode de masse augmente nettement avec l'augmentation de la température ([figure III.25](#)).

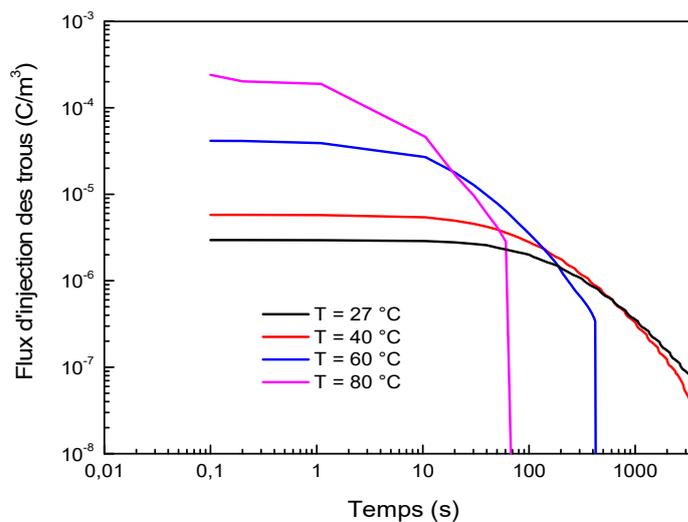


Figure III.25 : Variation du flux d'injection des trous en fonction du temps pour différentes températures.

Nous remarquons qu'au début du déclin de potentiel de surface, les densités de courant d'émission par effet Schottky à $T = 27\text{ °C}$ et $T = 80\text{ °C}$ sont respectivement de l'ordre de $3 \cdot 10^{-6}\text{ A} \cdot \text{m}^{-2}$ et de $2 \cdot 10^{-4}\text{ A} \cdot \text{m}^{-2}$. Par conséquent, la densité de trous dans le matériau à $T=80\text{ °C}$ est beaucoup plus élevée que celle à $T = 27\text{ °C}$. Les charges positives injectées par l'électrode de masse peuvent augmenter le déclin de potentiel de surface et distordent la distribution du champ électrique. Si la température du substrat est élevée, les porteurs de charges peuvent acquérir une énergie cinétique suffisante et être émis par le métal de

l'électrode dans le matériau (injection au niveau de l'électrode de masse [5, 17]). Cependant, la durée d'injection de charges par effet Schottky est diminuée avec l'augmentation de la température, par exemple à $T = 27\text{ °C}$, l'injection des trous a été quasiment constante pendant toute la gamme du temps explorée (3600 s), alors qu'à $T = 80\text{ °C}$, le processus d'injection n'a duré que les 100 premières secondes. En effet, l'injection des électrons et trous dans le matériau se fait par deux différents processus, ce qui induit une dissymétrie dans la quantité et la durée de charges injectées (électrons et trous).

c. Champ électrique

Afin de comprendre l'influence de la présence de charges à l'intérieur du matériau sur la répartition du champ électrique, nous avons représenté sur la [figure III.26](#) la distribution du champ électrique à deux différentes températures (27 et 80 °C). Une faible réduction du champ ($\sim 7\%$) pour $T = 27\text{ °C}$, a été observée aux extrémités du film, tandis que, celui au milieu de l'échantillon restera constant. Par contre, pour $T = 80\text{ °C}$, une réduction remarquable du champ électrique ($\sim 25\%$) a été constatée au milieu de l'échantillon. En effet, la diminution du champ électrique avec le temps, au voisinage des extrémités du film, est due à l'accumulation des charges électriques. Ces charges accumulées créeront un champ interne qui affaiblira le champ électrique au voisinage des extrémités du film ($x = 0$ et $x = d$). Il est bien établi que, dans le cas des homo-charges (les charges injectées sont du même signe que le potentiel de l'électrode d'injection), le champ électrique sera plus faible à l'interface et plus important en volume du matériau [27].

À 80 °C, le champ électrique montre un champ électrique maximal F_{max} au milieu du diélectrique ($x = 25\text{ }\mu\text{m}$) à environ 1000 s. Ce maximum diminue avec le temps en raison du flux et de la coexistence de charges positives et négatives. Le maximum du champ F_{max} s'est déplacé vers l'électrode de masse avec le temps jusqu'à l'atteindre à 3600 s. La diminution du champ électrique est attribuée à la suppression de l'accumulation de charges (aux extrémités du film) dans le volume avec l'augmentation de la température, ce qui signifie que le processus de transport de charges dépasse le processus d'accumulation à haute température.

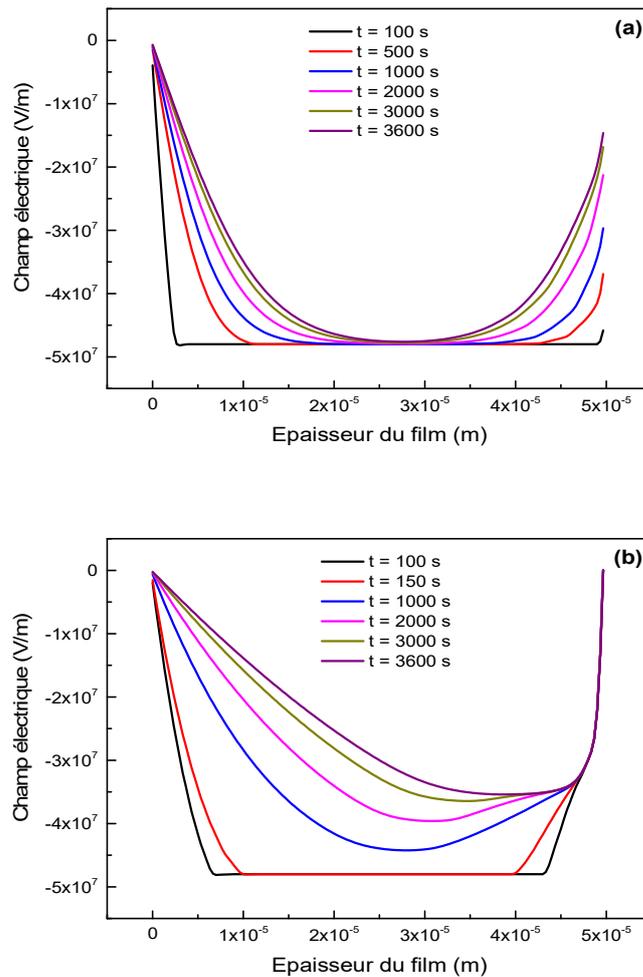


Figure III.26 : Distribution de champ électrique en fonction de l'épaisseur, a) $T = 27^\circ\text{C}$, b) $T = 80^\circ\text{C}$.

La [figure III.27](#) montre la répartition des charges et du champ électrique dans un film de PI en fonction de l'épaisseur du film à 3600 s sous une tension de 2400 V pour deux températures différentes (27 et 80°C). Il est clairement observé que l'évolution spatiale du champ électrique avec différents intervalles du temps est bien corrélée avec l'évolution de la distribution de la densité nette de charges. Le champ électrique est élevé dans la zone d'alternance, où la densité des charges accumulées est la plus faible due à la recombinaison de charges. En effet, le champ électrique interne est déterminé par la combinaison du champ électrique appliqué (créé par la densité de charges négatives déposées sur la surface libre du film) et le champ électrique induit par les charges accumulées. Pour une faible température (27°C), au début du déclin (< 100 s), le champ électrique interne est presque déterminé par la tension appliquée, ce qui permet d'obtenir une distribution uniforme, comme illustrée sur la [figure III.27.a](#). Au fur et à mesure que la charge injectée s'étale dans le volume, le champ électrique va diminuer progressivement aux extrémités (la diminution du champ suit la

distance d'étalement de charges). A cause de l'augmentation de la mobilité de charges et de la probabilité de dépiégeage avec la température (80 °C), la diminution de l'accumulation de charges sera plus prononcée, ce qui conduit à une diminution massive du champ électrique aux extrémités ainsi qu'au milieu du film (figure III.27.b). Comme ceci a été mentionné précédemment, après un temps de 500 s, la densité des trous injectés dans le matériau devient inférieure à celle des électrons. Donc, l'étalement de charges négatives dans le volume du matériau sera plus profond que celle des trous, par conséquent la réduction au champ électrique est supérieure du côté où les électrons sont accumulés. Selon l'équation de Poisson, la dérivée du champ électrique par rapport à la position est proportionnelle à la densité des charges accumulées. Par conséquent, la position à laquelle le champ électrique maximum se produit est polarisée vers l'électrode de masse.

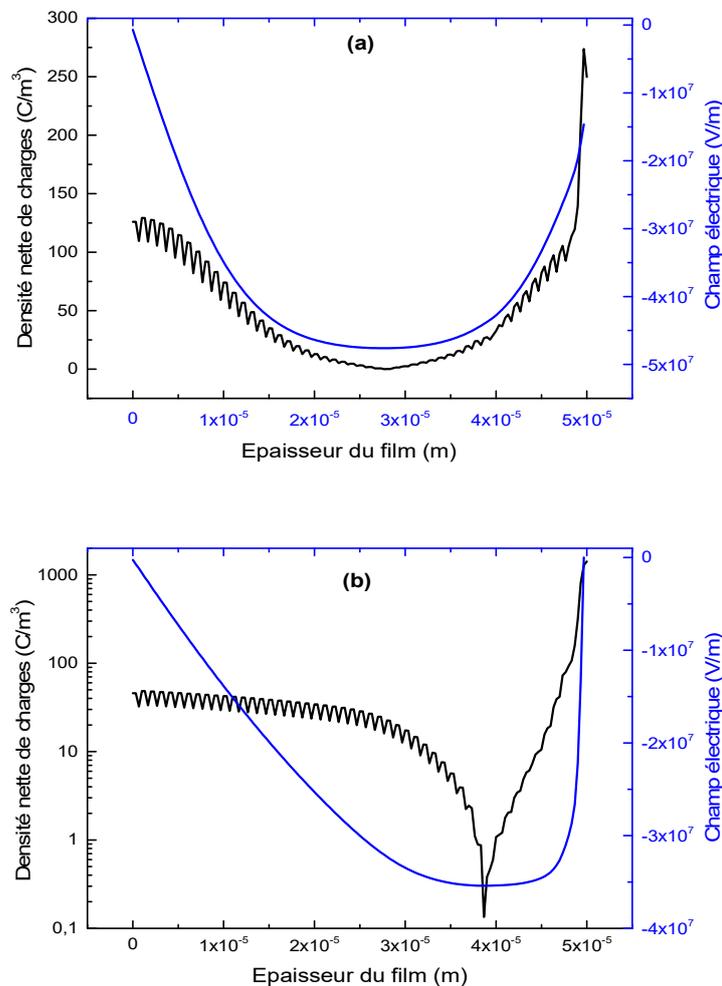


Figure III.27 : Répartition des charges et des champs électriques dans un film de PI en fonction de l'épaisseur du film à $t = 3600$ s, a) $T = 27 \text{ °C}$, b) $T = 80 \text{ °C}$.

Une autre caractéristique intéressante est que, à $T = 80 \text{ °C}$, la densité des charges mobiles est extrêmement faible comparée à celle des charges piégées. Les charges piégées

constituant la majeure partie des charges d'espace. Par conséquent, la diminution du champ électrique est principalement introduite par la charge accumulée par piégeage aux extrémités du film qui induit une diminution de la densité de charges injectés. En bref, dans la zone de faible champ, le transport est limité par les charges piégées.

d. Taux de recombinaison

La figure III.28, montre l'évolution du taux de recombinaison total en fonction du temps pour différentes températures. On voit clairement que le moment où la recombinaison commence (le moment où les deux espèces (électrons et trous) se rencontrent) diminue avec l'augmentation de la température. Ceci s'explique par l'augmentation de la mobilité des porteurs avec la température. A 27 °C, le taux de recombinaison augmente progressivement avec le temps en raison des faibles valeurs de densité et de la mobilité de charges injectées. A haute température (40, 60 et 80 °C), le taux de recombinaison passe par un maximum, ensuite il atteint un état quasi stationnaire.

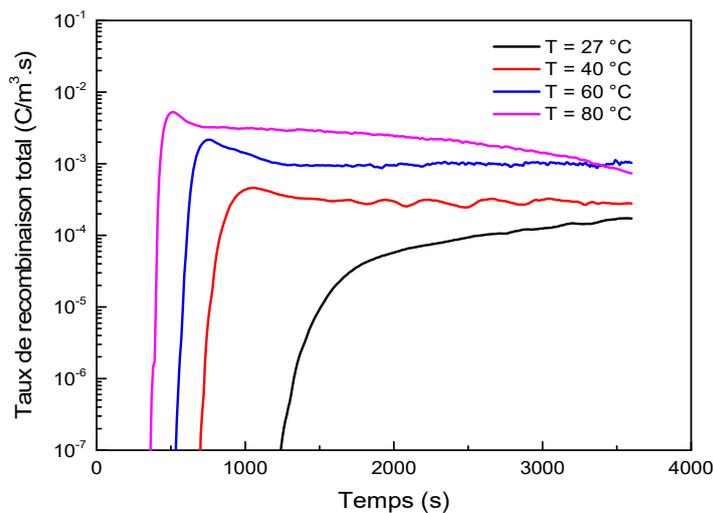


Figure III.28 : Taux de recombinaison totale en fonction du temps pour différentes températures.

De plus, le taux de recombinaison maximal augmente avec la température. Le taux de recombinaison est globalement en dessous de $10^{-4} C.m^{-3}.s^{-1}$ pour une température de 27 °C, alors qu'il dépasse $10^{-3} C.m^{-3}.s^{-1}$ pour une température de 80 °C. Cette augmentation est due à l'augmentation des charges injectées avec la température. Une autre remarque intéressante est que, après un certain temps (1000 s), le taux de recombinaison à 80 °C, commence à diminuer. Cela peut être dû à la diminution massive de la charge, notamment les trous, dans le volume du matériau.

e. Discussion

Juste après le processus de chargement par décharge couronne, une densité initiale de charges négatives est déposée à la surface libre du film de PI et un champ électrique résulte à l'intérieur du matériau. Ce dernier va accélérer les charges négatives déposées et les charges positives (charges de compensation) provenant de l'électrode de masse, pour s'injecter dans le volume du matériau et migrent dans les pièges peu profonds vers l'autre face du film. Elles peuvent être capturées par des pièges formés de groupes carbonyle insaturé [28, 29] ou par la différence de niveau d'énergie entre le dianhydridepyromellitique et 4,4'diaminodiphényléther [30]. Lorsque les charges sont capturées par les pièges profonds, elles seront accumulées localement, provoquant une distorsion du champ électrique dans le matériau. Le champ électrique déformé réduit alors le flux de courant d'émission provenant de l'électrode de masse. Les charges piégées peuvent être libérées des pièges profonds par le processus d'activation thermique lorsqu'elles reçoivent suffisamment d'énergie. Lorsque des électrons libres et des trous se rencontrent dans le matériau, une recombinaison de charges se produit.

Il existe deux sources d'énergie dans notre cas : l'énergie électrique induite par le champ électrique créé par les charges électriques et l'énergie thermique générée par l'échauffement des substrats. Signalons que le mouvement des chaînes moléculaires sera accéléré en augmentant la température, le champ électrique ou la force mécanique [31,32]. En effet, d'une part, l'augmentation de la température de 27 à 80 °C produit une dilatation thermique induisant une modification de la position de la chaîne polymérique et un élargissement de la taille des pores ; la charge peut alors surmonter ces pores plus facilement et par conséquent certains pièges profonds deviennent pièges peu profonds [33]. D'autre part, les charges gagnent assez d'énergie thermique provenant de l'augmentation de la température pour surmonter certains pièges profonds et participer au processus de conduction (la vitesse de transport de charges est accélérée par l'élévation de la température). Par conséquent l'accumulation de charges diminue, ce qui provoque la diminution du champ électrique au milieu du film.

En effet, à température ambiante (27 °C), il est très difficile pour les charges piégées dans les pièges profonds de surface, de se dépiéger et de migrer dans le volume du matériau. Par conséquent, les charges dans les pièges de surface, restent à la surface pendant une longue période et ne contribuent pas au processus du déclin de potentiel de surface, car leurs temps de rétention seront très longs. Par exemple, à $T = 27$ °C, les temps de rétention des charges piégées dans les centres des pièges de 0.87 eV (piège peu profond) et 0.97 eV (piège profond)

calculés par l'équation III.11 sont respectivement 84 s et 3.9×10^3 s. A $T = 80$ °C, les centres de dépiégeage deviennent plus profonds 1.02 eV (piège peu profond) et 1.1 eV (piège profond) (voir section II.4 chapitre II), avec des temps de rétention de 73 s et 1.01×10^3 s, respectivement. Cela confirme que le dépiégeage des charges dans les pièges profonds de la surface peut influencer le processus du déclin de potentiel de surface à température élevée. La dynamique de piégeage/dépiégeage de charges peut affecter la formation ainsi que l'accumulation de la charge d'espace à haute température.

Le contact entre les électrodes métalliques et les isolants peut former différentes barrières de potentiel de contact [34]. Cette barrière de potentiel peut influencer les propriétés de l'injection de charges. Plusieurs modèles supposent une densité de charges constante ou un réservoir infini de charges sur les électrodes (contact ohmique): le courant est alors entièrement contrôlé par les phénomènes de transport de charges en volume. En outre, la loi d'injection par effet Schottky a été utilisée pour décrire l'injection de charges de la couche de charges de surface dans le volume [13,14]. Néanmoins, cette couche ne peut pas être considérée comme un réservoir infini de charges comme s'il s'agissait d'une électrode métallique.

Dans notre modèle, l'injection des trous à l'électrode de masse, par effet Schottky, n'est pas constante, en raison de la diminution du champ électrique avec le temps. Donc le champ électrique et la décharge couronne sont les facteurs d'activation de l'injection de charges aux interfaces (air-isolant et isolant électrode). Néanmoins, l'effet de la température sur la densité des trous injectés à $x = d$ peut être attribué au fait que le flux d'injection décrit par la loi d'injection Schottky (équation III.16) ne peut pas refléter totalement le processus physique au niveau de l'électrode de masse. Selon la loi d'injection Schottky, la quantité de porteurs libres injectés au niveau de l'électrode de masse augmente considérablement avec la température, et par conséquent, les pièges dans le matériau isolant peuvent être remplis plus facilement à des températures plus élevées, ce qui donne une saturation prématurée de la densité des trous piégés et donc des charges libres à $x = d$. Ces résultats de simulation nous ont montré que les charges injectées, à l'électrode de masse, ne reflètent pas le comportement attendu en considérant uniquement la barrière d'injection de trous. En effet, ce travail n'est qu'une première étape dans le développement d'un modèle capable de prévoir le transport de charges dans un film de PI, à haute température.

III.5. Conclusion

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés à la modélisation du déclin de potentiel de surface que nous avons enregistré sur des films de PI soumis à une décharge couronne pour différentes températures. La modélisation est basée sur l'élaboration d'un modèle bipolaire numérique de transport de charges permettant de décrire les phénomènes observés expérimentalement. Nous avons utilisé la base du modèle développé par Le Roy et *al* [2]. Afin d'obtenir un bon accord entre les courbes du déclin de potentiel de surface mesurées et simulées, nous avons appliqué ce modèle pour mettre en évidence l'effet de la température sur la dynamique du potentiel de surface d'un film de PI, qui dépend des processus d'injection et de transport de charges. Nous avons présenté les résultats obtenus par simulation, ainsi que l'influence des paramètres de notre modèle sur ces résultats.

La modélisation a montré que le déclin du potentiel de surface est majoritairement influencé par la température. Les données issues de la simulation montrent que les valeurs des paramètres de simulation décrivant la cinétique du déclin de potentiel tels que la mobilité et le coefficient de piégeage ainsi que la hauteur des barrières pour le dépiégeage, augmentent avec l'augmentation de la température. La réduction du champ électrique au milieu du film est très probablement gouvernée par la suppression de l'accumulation de charges dans le matériau à température élevée. Le flux d'injection augmente avec l'augmentation de la température et les charges positives (trous) injectées par effet Schottky à l'électrode de masse, à haute température, ne reflètent pas le comportement attendu.

Références bibliographiques du chapitre III

- [1] M. Taleb, “Phénomènes aux interfaces des isolants : Mesure et simulation”, Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III, 2011.
- [2] S. Le Roy, “Modélisation numérique des phénomènes de transport électrique dans un isolant polyéthylène sous contrainte électrique”, Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III, 2004.
- [3] D. Min, S. Li, M. Cho, A.R. Khan, “Investigation into surface potential decay of polyimide by unipolar charge transport model”, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol. 41, N°. 12, pp. 3349-3358, December 2013.
- [4] D. Min, S. Li, “Simulation on the influence of bipolar charge injection and trapping on surface potential decay of polyethylene”, IEEE TDEI, Vol. 21, N°. 4, pp. 1627-1636, 2014.
- [5] A.T. Hoang, Y.V. Serdyuk, S. M. Gubanski, “Charge transport in LDPE Nanocomposites Part II-Computational Approach”, Polymers, Vol. 8. 103, 2016.
- [6] S. Pan, D. Min, C. Zhao, G. Li, S. Li, B. Ma, “Space charge accumulation in polytetrafluoroethylene at different temperatures”, The 19th International Symposium on High Voltage Engineering, Pilsen, August 23-28, 2015.
- [7] V. Griseri, C. Perrin, C. Laurent, “Calibration method used for measurements with an open PEA set-up”, Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP), pp.133-136, Canada 2008.
- [8] D.A. Rychkov, A.E. Kuznetsov, A.A. Rychkov, V.A. Goldade, “Electret properties of polyethylene films modified with titanium tetrachloride vapor”, IEEE 14th International Symposium on Electrets (ISE 2011), Montpellier, France, pp.111-112, 28-31 Aug. 2011.
- [9] G. Chen, Z. Xu and L. W. Zhang, “Measurement of the surface potential decay of corona charged polymer films using the pulsed electroacoustic method”, Meas. Sci. Technol., Vol. 18, N°. 5, pp. 1453-1458, 2007.
- [10] Z.Q. Xu, L.W. Zhang, G. Chen, “Decay of electric charge on corona charged polyethylene”, J. Phys. D. Appl. Phys., Vol. 40, N°. 22, pp. 7085-7089, 2007.
- [11] R. Ono, M. Nakazawa, T. Oda, “Charge storage in corona charged polypropylene films analyzed by LIPP and TSC Methods”, IEEE Trans. Ind. Appl., Vol. 40, N°. 6, pp. 1482-1488, 2004.
- [12] S. Le Roy, F. Baudoin, V. Griseri, C. Laurent, G. Teyssède, “Space charge modeling in electron-beam irradiated polyethylene: Fitting model and experiments”, J. Appl. Phys., Vol. 112, N°. 2, pp. 023704(8pp), 2012.
- [13] G. Chen, “A new model for surface potential decay of corona-charged polymers”, J. Phys. D. Appl. Phys., Vol. 43, pp. 055405 (7 pp), 2010.
- [14] Y. Zhuang, G. Chen, M. Rotaru, “Charge injection in gold ground electrode corona charged polyethylene film: Numerical simulation on surface potential decay”, IEEE 14th International Symposium on Electrets (ISE 2011), Montpellier, France, pp. 127-128, 28-31 Aug. 2011.
- [15] A. Chowdry, C.R. Westgate, “The role of bulk traps in metal-insulator contact charging”, J. Phys. D.: Appl. Phys., Vol. 7, pp. 713-725, 1974.

- [16] J.M. Alison, R.M. Hill, “A model for bipolar charge transport, trapping and recombination in degassed crosslinked Polyethylene”, *J. Phys. D : Appl. Phys.*, Vol. 27, pp. 1291-1299, 1994.
- [17] S. Li, D. Min, W. Wang, G. Chen, “Modelling of dielectric breakdown through charge dynamics for polymer nanocomposites”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 23, N°. 6, pp. 3476-3485, 2016.
- [18] S. Le Roy, G. Teyssède, C. Laurent, G.C. Montanari, F. Palmieri, “Description of charge transport in polyethylene using a fluid model with a constant mobility: Fitting model and experiments”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol. 39, N°. 7, pp.1427-1436, 2006.
- [19] M. Kuik, L.J.A. Koster, G.A.H. Wetzelaer, P.W.M. Blom, “Trap-assisted recombination in disordered organic semiconductors”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 107, N°. 25, 256805, 2011.
- [20] M. Kuik, L.J.A. Koster, A.G. Dijkstra, G.A.H. Wetzelaer, P.W.M. Blom, “Non-radiative recombination losses in polymer light-emitting diodes”, *Organic Electronics*, Vo. 13, N°. 6, pp. 969-974, 2012.
- [21] W. Shockley, W.T. Read, “Statistics of the recombinations of holes and electrons”, *Phys. Rev.*, Vol. 87, pp. 835-842, 1952.
- [22] B.P. Leonard, “A stable and accurate convective modelling procedure based on quadratic upstream interpolation”, *Computer Methods in Applied Mechanics Engineering*, Vol. 19, N°. pp. 59-98, 1979.
- [23] E. Belgaroui, I. Boukhris, A. Kallel, G. Teyssède, C. Laurent, “A new numerical model applied to bipolar charge transport, trapping and recombination under low and high DC voltages”, *J. Phys. D. Appl. Phys.*, Vol.40, N°.21, pp. 6760-6767, 2007.
- [24] S. Le Roy, G. Teyssède, C. Laurent, “Numerical methods in the simulation of charge transport in solid dielectrics”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol.13, N°.2, pp. 239-246, 2006.
- [25] D. Min, S. Li, “A comparison of numerical methods for charge transport simulation in insulating materials”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 20, N°. 3, pp. 955-964, June 2013.
- [26] Z. Ziari, S. Sahli, A. Bellel, Y. Segui, P. Raynaud, “Simulation of surface potential decay of corona charged polyimide”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 18, pp. 1408-1415, 2011.
- [27] F. Mortreul, “Etude des mécanismes d’injection et de stockage de charges électrique dans un film mince diélectrique par microscopie à sonde de Kelvin (KPFM)”, Thèse de Doctorat, Université de Toulouse III, 2015.
- [28] J.K. Quamara, A.S. Pillai, “Surface potential decay characteristics and TSDC studies in corona charged Kapton polyimide film”, *ActaPolym.*, Vol. 34, pp. 265-267, 1983.
- [29] J.Q. Lin, Z.B. Xie, W.L. Yang, P.P. Zhang, Y. Liu, H. Lin, X.K. Li, “Effect of $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$ filling particles on the charge carrier trap distribution of polyimide films”, *J. Appl. Polym. Sci.*, Vol. 131, pp. 39821-39828, 2014.
- [30] T. Takada, H. Kikuchi, H. Miyake, Y. Tanaka, M. Yoshida, “Determination of charge-trapping sites in saturated and aromatic polymers by quantum chemical calculation”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 22, pp. 1240-1249, 2015.
- [31] J.E. Mark, *Physical properties of polymers handbook*; Springer: New York, NY, USA, pp. 339-535, 2007.

- [32] F. Kremer, A. Schönhals, *Broadband dielectric spectroscopy*; Springer: Berlin, Germany, pp. 1-98, 2003.
- [33] F. Rogti, M. Ferhat, “Effect of temperature on trap depth formation in multi-layer insulation: Low density polyethylene and fluorinated ethylene propylene”, *J. Appl. Phys. Letters*, Vol. 104, N°. 3, pp. 031605, 2014.
- [34] T. Mizutani, H. Semi, K. Kaneko, “Space charge behavior in low-density polyethylene”, *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, Vol. 7, N°.4, pp. 503-508, 2000.

Conclusion générale

Conclusion générale

Le sujet de notre thèse de doctorat s'inscrit dans le cadre général de l'étude de l'influence de la température sur les évolutions du potentiel de surface d'un film de polyimide (PI) soumis à une décharge couronne générée dans la configuration pointe-grille-surface. Cette technique de mesure du potentiel de surface sans contact au moyen d'une sonde électrostatique vibrante de type Monroe garde une place dans la panoplie des techniques de caractérisation du comportement des matériaux isolants. Notre travail avait pour objectif :

- l'étude de l'effet de la température sur les variations du potentiel de surface et du courant de charge, afin de mieux comprendre l'effet de la température sur les propriétés électriques des films de PI.
- l'élaboration d'un modèle théorique simulant la cinétique du déclin de potentiel de surface des films de PI pour différentes températures. Cette simulation a été menée pour expliquer les mécanismes d'injection et de transport de charges responsables du déclin de potentiel de surface.

Nous avons conduit diverses expériences (mesures du déclin de potentiel de surface, de la distribution du potentiel de surface, du retour de potentiel de surface et du courant de charge par décharge couronne) afin d'étudier le comportement des charges électrostatiques déposées par décharge couronne sur des films de PI, à différentes températures du substrat (27, 40, 60 et 80 °C). Les résultats obtenus ont montré que la décroissance du potentiel de surface et le courant de charge sont activés thermiquement avec l'augmentation de la température du substrat. En effet, lorsqu'on augmente la température, le taux du déclin de potentiel de surface et l'amplitude du courant de chargement augmentent et le pic initial du courant disparaît. L'augmentation du taux de déclin de potentiel est plus prononcée pour les fortes températures. Le comportement du courant de charge en fonction de la température du substrat est en bon accord avec l'évolution du déclin de potentiel de surface. En outre, ces résultats nous ont également montré que le champ électrique et la température du substrat n'influent pas de la même manière sur le processus du déclin de potentiel de surface, en particulier au début du déclin. L'absence d'étalement latéral dans le profil du potentiel de surface confirme l'injection en volume de charges déposées dans les films de PI.

L'étude de l'analyse des résultats expérimentaux du déclin de potentiel de surface pour différentes températures obtenus par une équation bi-exponentielle nous a permis de calculer la densité de charges piégées. Deux pics liés à la valeur maximale de la densité de charges ont

été observés. Nous constatons que la température peut affecter la densité de charges piégées dans des pièges peu profonds et profonds, ainsi qu'elle peut changer les niveaux d'énergie de ces pièges. L'augmentation de la température du substrat induit une augmentation de la densité de pièges peu profonds et une diminution de la densité de pièges profonds. La position des pics liés aux pièges profonds et peu profonds se déplace vers des niveaux d'énergie supérieurs lorsque la température augmente. L'augmentation de la température influe significativement sur le comportement du déclin de potentiel de surface.

Les résultats expérimentaux du déclin de potentiel de surface obtenus pour différentes températures allant de 27 à 80 °C ont été théoriquement simulés en utilisant un modèle mathématique bipolaire de transport de charges s'appuyant sur le modèle de Le Roy. Ce modèle basé sur la prise en considération de l'effet de piégeage et de dépiégeage de charges avec la considération d'une mobilité dépendante de la température, est mieux adapté pour décrire l'effet de la température sur la cinétique du déclin de potentiel de surface. La recombinaison est prise en compte. Nous avons présenté les résultats de simulation obtenus en utilisant ce modèle. L'influence de chaque paramètre de notre modèle sur ces résultats a été soulignée. La modélisation du déclin de potentiel de surface pour différentes températures a révélé les remarques suivantes :

- Le déclin du potentiel de surface est majoritairement influencé par la température.
- Les valeurs des paramètres de simulation décrivant le comportement du déclin de potentiel tels que la mobilité et le coefficient de piégeage ainsi que la hauteur des barrières pour le dépiégeage augmentent avec l'augmentation de la température.
- Les charges positives (trous) injectées par effet Schottky à l'électrode de masse, à haute température, ne reflètent pas le comportement attendu.
- La diminution du champ électrique au milieu du film et l'augmentation de flux d'injection avec l'augmentation de la température.

Liste des travaux

Liste des publications et communications de l'auteur

Publications Internationales

1- 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, N° 2, pp. 421-427, April **2018**, ISSN : 1070-9878

DOI : 10.1109/TDEI.2017.006570

<https://ieeexplore.ieee.org/document/8341633/>

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- H. Mallem, Z. Ziari, S. Sahli, “*Analysis of Polyimide Surface Potential Decay Recorded under Different Sample Temperatures*”, 10^{ème} Conférence de la Société Française d'Electrostatique (SFE) 2016, 29-31 Août **2016**, Université Poitiers, **France**

ISBN : 978-2-9505432-7-1

2- H. Mallem, Z. Ziari, S. Mouissat, S. Sahli, “*Spatial distribution of electric charges in polyimide Kapton HN films after corona charge deposition*”, International Electrical Electronic Engineering and Technologies Conference (ELECTROTECH'15), October 2-3, **2015**, pp. 206-212, Istanbul, **Turkey**

ISBN : 978-605-9207-07-2

3- Z. Ziari, H. Mallem, S. Sahli, “*Influence of the temperature on the surface potential decay of polymer films charged negatively by corona discharge under light radiation*”, IEEE Microwave Symposium (MMS), 2014 14th Mediterranean, December 12-14, **2014**, Marrakech, **Morocco**

ISSN ou ISBN : 978-605-9207-07-2 (978-1-4799-7391-0/14/\$31.00 ©2014 IEEE)

DOI : 10.1109/MMS.2014.7088933

<http://ieeexplore.ieee.org/abstract/document/7088933?reload=true>

4- H. Mallem, Z. Ziari, S. Sahli, “*Etude de l'influence de la température du substrat sur l'écoulement de charges électriques déposées sur la surface d'un film de polyimide*”, 1^{er} Congrès International sur les Plasmas et les Matériaux (CIPM'14), 15-17 Novembre **2014**, **Tlemcen**

Résumé

Dans ce travail, nous avons étudié les phénomènes de transport de charges, dans une plage de température allant de 27 jusqu'à 80 °C, à travers la mesure et l'étude de l'évolution du déclin de potentiel de surface d'un film de PI préalablement chargé par décharge couronne. Les mesures du déclin de potentiel et du courant de charge ont montré que les phénomènes qui gouvernent le transport de charges dans le PI sont activés thermiquement avec l'augmentation de la température du substrat. L'absence d'étalement latéral dans le profil du potentiel de surface confirme l'injection en volume de charges déposées dans les films de PI. Les résultats de mesure de la densité de charges piégées ont montré que la température du substrat peut affecter la densité de charges piégées ainsi que la distribution de pièges dans le volume du matériau. Ces résultats expérimentaux nous ont permis de proposer un modèle mathématique qui simule la cinétique du déclin de potentiel de surface à différentes températures. La validation du modèle élaboré est examinée en comparant les résultats simulés du déclin de potentiel de surface aux résultats expérimentaux.

Mots clés : densité de charges piégées, décharge couronne, polyimide, potentiel de surface, température du substrat.

Abstract

In this work, we studied the phenomena of charge transport, in a temperature range from 27 to 80 °C, by measuring and studying of the evolution of the surface potential decay of a corona charged PI film. The potential decay and the charge current measurements have shown that the phenomena governing the charge transport in the PI are thermally activated with the increase of the sample temperature. The absence of lateral spreading in the surface potential profile confirms the volume injection of deposited charges in the PI films. The trapped charge density results have shown that the sample temperature can affect the trapped charge density as well as the trap distribution in the material volume. These experimental results have allowed us to propose a mathematical model that simulates the kinetics of surface potential decay at different temperatures. Validation of the developed model is examined by comparing simulated results of surface potential decay with experimental results.

Keyword : trapped charge density, corona charging, polyimide, surface potential decay, sample temperature.

ملخص

في هذا العمل، درسنا ظواهر انقال الشحنة، في درجات حرارة تتراوح من 27 إلى 80 درجة مئوية، من خلال قياس و دراسة حركة تغير الكمون السطحي لشريحة من البوليميد الخاضعة مسبقاً للتفريغ الكوروني. أظهرت قياسات انخفاضات الكمون السطحي و قياسات تيار الناتج عن حركة الشحن، أن الظواهر المسؤولة عن نقل الشحنة في البوليميد يتم تنشيطها حرارياً مع زيادة درجة حرارة. غياب الانتشار الجانبي في المقطع العرضي المسجل للكمون السطحي يؤكد أن حقن الشحنات تم نحو العمق في الشرائح. أظهرت نتائج كثافة الشحنة المحبوسة أن درجة حرارة الركيزة يمكن أن تؤثر على هذه الأخيرة وكذلك تؤثر على توزيع مواقع التفخيخ داخل المادة. سمحت لنا هذه النتائج التجريبية باقتراح نموذج رياضي يحاكي حركة انخفاضات الكمون السطحي المحتملة في درجات حرارة مختلفة. تم التحقق من صحة النموذج المطور من خلال مقارنة نتائج محاكاة انخفاضات الكمون السطحي المحتملة مع النتائج التجريبية.

كلمات المفتاح : كثافة الشحن المحبوسة، التفريغ الكوروني، البوليميد، الكمون السطحي، درجة حرارة الركيزة.